

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

MODÈLES MATHÉMATIQUES
D'UN SITE D'IRRADIATION INTERNE
DU RÉACTEUR SLOWPOKE

JACQUES RAZA
DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLOME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE ÉNERGÉTIQUE)
MARS 2007



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 978-0-494-29252-5

Our file Notre référence

ISBN: 978-0-494-29252-5

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

MODÈLES MATHÉMATIQUES
D'UN SITE D'IRRADIATION INTERNE
DU RÉACTEUR SLOWPOKE

présenté par : RAZA Jacques

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. MARLEAU Guy, Ph.D., président

M. ZIKOVSKY Lubomir, Ph.D., membre et directeur de recherche

Mme VARIN Élisabeth, D. Sc., membre

Remerciements

Je tiens à remercier monsieur Gregory Kennedy de m'avoir permis de me joindre à son équipe de recherche, me permettant ainsi de compléter ce projet de recherche.

Je tiens à remercier mon directeur de recherche, monsieur Lubomir Zikovsky qui m'a conseillé et encouragé tout au long de ce projet de recherche.

Je tiens également à remercier monsieur Guy Marleau et madame Élisabeth Varin qui m'ont aussi conseillé sur certains aspects techniques importants du projet.

J'exprime ma gratitude à la direction de la centrale nucléaire Gentilly-2 d'Hydro-Québec, pour son soutien et pour me permettre d'utiliser les infrastructures de la centrale pour m'aider à réaliser ce projet d'étude.

Je veux remercier tous les membres de ma famille; ma femme Marie, ma fille Michelle, et mon fils Ghyslain, pour leur patience, leurs sacrifices et leur appui. Je veux souligner de façon particulière le soutien technique de Ghyslain, qui a été crucial au succès du projet, de même que ses nombreux conseils pour améliorer la qualité de ce travail.

Résumé

Objectifs

L'objectif principal de ce projet de recherche consiste à développer des modèles mathématiques représentatifs pour l'analyse par activation neutronique dans un site d'irradiation interne d'un réacteur Slowpoke. Un autre objectif important vise à corriger les masses mesurées d'éléments par analyse par activation neutronique, à l'aide de ces modèles mathématiques. En effet, le phénomène de perturbation du flux neutronique est la cause directe d'une sous-estimation des masses réelles.

Hypothèses

Nous avons supposé que les résultats de perturbation du flux mesurés dans l'un des sites internes après le premier chargement de combustible du réacteur Slowpoke de l'École Polytechnique de Montréal demeuraient valides après le deuxième rechargement du réacteur.

Nous avons aussi supposé que la distribution spatiale des neutrons thermiques, leur spectre continu d'énergie, de même que la dépendance en énergie cinétique des neutrons des sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique sont des facteurs qui permettent une représentation valide des résultats d'analyse par activation neutronique. Nous avons également supposé que le flux neutronique est isotrope dans le référentiel du laboratoire.

Méthodes expérimentales

Nous avons employé ces résultats expérimentaux pour valider nos modèles mathématiques d'un site d'irradiation interne. Les résultats que nous avons obtenus grâce à nos modèles sont cohérents avec ceux des différents auteurs.

Nous avons déterminé une corrélation globale précise des résultats expérimentaux de la perturbation du flux en fonction du volume d'échantillon et de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique. Celle-ci est valide pour des volumes d'échantillons cylindriques variant d'environ 0,1 à 1,3 ml et une plage de section efficace macroscopique d'absorption neutronique allant jusqu'à 5 moles-b de sept (7) éléments ayant des numéros atomiques (Z) variant, de 5 à 79.

Méthodes semi-analytique et numérique

Nous avons conçu un modèle mathématique de transport neutronique semi-analytique, afin de représenter le comportement neutronique dans un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke, en présence de divers éléments ayant des volumes et des concentrations variés. Ce modèle combine une solution de l'équation de Boltzmann pour un cylindre fini, par la méthode des harmoniques sphériques et une expression comportant deux (2) fonctions harmoniques cylindriques, afin de simuler la perturbation du flux.

À l'aide de ce modèle semi-analytique, nous avons réalisé des analyses de régressions non linéaires des résultats expérimentaux, par la méthode des écarts quadratiques minimums.

Nous avons également produit un modèle de transport neutronique numérique d'un cylindre en 2-D, par la méthode des ordonnées discrètes de schème S_g . Dans les deux cas, nous avons supposé un spectre d'énergie de Maxwell pour les neutrons thermiques prédominant dans les sites internes, aux basses énergies. De plus, nous avons pris en compte la dépendance en énergie des sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique.

Afin de concevoir et implanter ces divers modèles, nous avons utilisé un logiciel de calcul symbolique, plutôt que les langages usuels de programmation.

Principales conclusions

Les écarts moyens entre les résultats de notre modèle de transport neutronique semi-analytique et les résultats expérimentaux de perturbation du flux sont de l'ordre de 1 %, et donc inférieurs à l'erreur expérimentale fortuite d'environ 2 %.

Les résultats du modèle numérique des ordonnées discrètes présentent un écart moyen d'environ 3 % et un écart-type d'environ 2 % par rapport aux résultats expérimentaux.

Les modèles mathématiques semi-analytique et numérique confirment le caractère universel des courbes de perturbation du flux en fonction de la section macroscopique de capture neutronique radiative, pour sept (7) éléments ayant des propriétés physiques fort différentes. Ils s'avèrent être mathématiquement représentatifs du comportement neutronique dans un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke.

Applications éventuelles

Nous avons également mis au point un processus rapide (ms) et précis (ng) de correction de la concentration mesurée pouvant aisément être implanté dans le code EPAA du laboratoire d'analyses par irradiation neutronique. Cette méthode corrective compense l'effet de la perturbation du flux. L'implantation de ce processus permet d'étendre largement la plage des mesures et d'en améliorer la précision.

Abstract

Objectives

The main objective is to build representative mathematical models of neutron activation analysis in a Slowpoke internal irradiation site. Another significant objective is to correct various elements neutron activation analysis measured mass using these models. The neutron flux perturbation is responsible for the measured under-estimation of real masses.

Hypothesis

We supposed that neutron flux perturbation measurements taken during the École Polytechnique de Montréal Slowpoke reactor first fuel loading were still valid after the second fuelling.

We also supposed that the thermal neutrons spatial and kinetic energies distributions as well as the absorption microscopic cross section dependence on the neutrons kinetic energies were important factors to satisfactorily represent neutron activation analysis results. In addition, we assumed that the neutron flux is isotropic in the laboratory system.

Experimental Methods

We used experimental results from the Slowpoke reactor internal irradiation sites, in order to validate our mathematical models. Our models results are in close agreement with these experimental results.

We established an accurate global mathematical correlation of the neutron flux perturbation in function of samples volumes and macroscopic neutron absorption cross sections. It is applicable to sample volumes ranging from 0,1 to 1,3 ml and macroscopic neutron absorption cross section up to 5 moles-b for seven (7) elements with atomic numbers (Z) ranging from 5 to 79.

Semi-Analytical and numerical Methods

We first came up with a heuristic neutron transport mathematical semi-analytical model, in order to better understand neutrons behaviour in presence of one of several different nuclei samples volumes and mass. In order to well represent the neutron flux perturbation, we combined a neutron transport solution obtained from the spherical harmonics method of a finite cylinder and a mathematical expression combining two cylindrical harmonic functions.

With the help of this model and the least squares method, we made extensive non linear accurate regression analyses of the experimental results.

Also, we devised a numerical neutron transport model using the discrete ordinates method of S_8 scheme. In both cases, we assumed a thermal neutrons Maxwell energy distribution since thermal neutrons are dominant in internal sites. In addition, both of our models used energy dependant microscopic neutron absorption cross sections.

In order to implement and use these mathematical models, we chose to use computer algebra software instead of the more usual ones.

Main Conclusions

The Slowpoke reactor internal irradiation site neutron transport semi-analytical model results are within 1 % of the flux perturbation experimental results which is well within the experimental results error at about 2 %.

The discrete ordinates numerical method results obtained from a 2-D finite cylinder shows an average error of about 3 % and a variance of about 2 % as compared to the experimental results.

The semi-analytical and numerical models clearly confirm that the results for many different elements are located on a unique flux perturbation curve as a function of the macroscopic absorption cross section for a given sample volume. Both models of a Slowpoke internal irradiation site are in close agreement with the experimental flux perturbation results.

Applications

We devised a rapid (ms) accurate (ng) measured concentration correction computing algorithm for an internal irradiation site that can be easily implemented in the existing neutron activation laboratory EPAA software. This corrective method accurately compensates the flux perturbation effect. This process allows more accurate concentration measurements for many elements on a wider concentration range.

TABLE DES MATIÈRES

	<u>PAGE</u>
REMERCIEMENTS.....	iv
RÉSUMÉ	v
ABSTRACT	viii
TABLE DES MATIÈRES	xi
LISTE DES TABLEAUX	xviii
LISTE DES FIGURES	xxi
LISTE DES SIGLES ET ABBRÉVIATIONS.....	xxv
 CHAPITRE 1 – INTRODUCTION	 1
1.1 PROBLÉMATIQUE ET BUTS	1
1.2 HISTORIQUE DE LA PERTURBATION DU FLUX	2
1.3 MÉTHODE.....	5
1.4 PLAN DU MÉMOIRE	9
 CHAPITRE 2 – PHYSIQUE NUCLÉAIRE	 12
2.1 PRÉAMBULE.....	12
2.2 FLUX NEUTRONIQUE ANGULAIRE ET SCALAIRE.....	12
2.3 NEUTRONS THERMIQUES	13
2.3.1 SPECTRE D'ÉNERGIE DES NEUTRONS	
THERMIQUES	13
2.4 COLLISIONS ET SECTIONS EFFICACES	15
2.5 CAPTURE RADIATIVE DES NEUTRONS	17
2.5.1 SECTIONS EFFICACES MACROSCOPIQUES DE	
CAPTURE NEUTRONIQUE RADIATIVE EN moles-b..	18
2.6 TAUX DE RÉACTIONS NUCLÉAIRES.....	19
2.7 ATTÉNUATION DU FLUX NEUTRONIQUE.....	20

2.8 LA DÉPENDANCE EN ÉNERGIE DES SECTIONS EFFICACES	21
2.8.1 SECTION EFFICACE MICROSCOPIQUE DE DIFFUSION.....	21
2.8.2 SECTION EFFICACE MICROSCOPIQUE DE CAPTURE RADIATIVE DES NEUTRONS THERMIQUES.....	21
2.8.2.1 DÉPENDANCE EN ÉNERGIE DES SECTIONS EFFICACES MICROSCOPIQUES D'ABSORPTION DES NEURTRONS THERMIQUES.....	22
2.9 ACTIVITÉ ET ACTIVITÉ À SATURATION.....	27
2.9.1 ACTIVITÉ.....	27
2.9.2 ACTIVITÉ À SATURATION.....	27
2.10 L'EFFET DOPPLER.....	29
2.11 L'ÉQUATION DE TRANSPORT NEUTRONIQUE.....	29
2.11.1 CONDITIONS NÉCESSAIRES À L'ÉQUATION DE TRANSPORT.....	29
2.11.2 L'ÉQUATION DE TRANSPORT DES NEUTRONS.....	30
2.11.3 SYSTÈME DE COORDONNÉES CIRCULAIRES CYLINDRIQUES.....	33
2.12 AUTOPROTECTION, DÉPRESSION DU FLUX ET PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE.....	37
CHAPITRE 3 – ANALYSE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE	43
3.1 HISTORIQUE	43
3.2 BUT	43
3.3 MÉTHODE	43
3.3.1 PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS	44
3.3.2 IRRADIATION DES ÉCHANTILLONS	45

3.3.3	DÉTECTION DES RAYONS GAMMA.....	45
3.3.4	ANALYSE DU SPECTRE D'ÉMISSION DES RAYONS GAMMA DE L'ÉCHANTILLON.....	46
3.3.4.1	IDENTIFICATION DES ISOTOPES ET DES ÉLÉMENTS.....	48
3.3.4.2	CALCUL DES CONCENTRATIONS ABSOLUES DES ISOTOPES ET DES ÉLÉMENTS.....	49
3.4	MESURES DES DIMENSIONS D'UNE CAPSULE DU SITE INTERNE D'IRRADIATION	50
3.5	TABLEAU ET GRAPHIQUE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	51
3.6	DISCUSSION DE L'IMPACT DU CHARGEMENT DE COMBUSTIBLE DU RÉACTEUR SLOWPOKE SUR LES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	53
3.7	ÉVALUATION DE L'INCERTITUDE EXPÉRIMENTALE DE LA PERTURBATION DU FLUX	54
3.7.1	CALCUL DES INCERTITUDES DE DIVERS PARAMÈTRES ET VARIABLES.....	54
3.7.2	RÉSULTATS DU CALCUL DES INCERTITUDES DES DIMENSIONS, DES SURFACES ET DES VOLUMES DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	57
3.7.3	CALCUL DE L'INCERTITUDE ABSOLUE DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE.....	58
3.7.4	CALCUL DES SURFACES DÉLIMITANT LE DOMAINE D'INCERTITUDE DE LA PERTURBATION DU FLUX	59
3.7.5	INCERTITUDE DES MESURES DE SPECTROMÉTRIE GAMMA.....	62
3.7.6	INCERTITUDE ABSOLUE DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE.....	64

3.8	CARACTÈRE UNIVERSEL DES COURBES DE PERTURBATION DU FLUX EN FONCTION DE LA SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE D'ABSORPTION NEUTRONIQUE.....	65
3.9	ANALYSE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DE KENNEDY ET MARCOTTE	66
3.9.1	NOUVELLE APPROCHE GÉNÉRALE JUSTIFIANT UNE FORME D'EXPRESSION D'UNE SOLUTION DE L'ÉQUATION DE TRANSPORT NEUTRONIQUE POUR UN CYLINDRE FINI.....	66
3.10	RÉGRESSIONS NON LINÉAIRES DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	73
3.10.1	CORRÉLATION GÉNÉRALE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	76
3.10.2	ANALYSE STATISTIQUE DE LA CORRÉLATION GLOBALE ET SON AMÉLIORATION PAR LA MÉTHODE DES MOINDRES CARRÉS.....	81
3.11	MÉTHODE DE CALCUL DE LA CONCENTRATION RÉELLE D'UN ÉLÉMENT	91
CHAPITRE 4 - MODÈLE DE TRANSPORT NEUTRONIQUE		
	SEMI-ANALYTIQUE	106
4.1	SOLUTION SEMI-ANALYTIQUE DES FLUX ANGULAIRE ET SCALAIRE.....	106
4.1.1	SOLUTION DU FLUX SCALAIRE MOYEN.....	106
4.2	NEUTRONS THERMIQUES ET QUADRATURE DE L'ÉNERGIE CINÉTIQUE DES NEUTRONS.....	117
4.2.1	NEUTRONS THERMIQUES.....	117
4.2.2	SPECTRE D'ÉNERGIE ET DISCRÉTISATION.....	117

4.2.2.1	MÉTHODE DE DISCRÉTISATION DE L'ÉNERGIE	118
4.2.2.2	QUADRATURE SUR LE SPECTRE D'ÉNERGIE	120
4.2.2.3	MÉTHODE DE CALCUL DE LA PERTURBATION DU FLUX PAR LA SOLUTION SEMI-ANALYTIQUE.....	121
4.3	CALCUL DE LA DÉPRESSION DU FLUX SCALAIRE POUR LES TROIS VOLUMES D'ÉCHANTILLON.....	124
4.3.1	CALCUL DE LA DÉPRESSION DU FLUX PAR LA MÉTHODE SEMI-ANALYTIQUE.....	124
4.3.2	RÉGRESSIONS NON LINÉAIRES DE LA DÉPRESSION DU FLUX EN FONCTION DE LA SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE DE CAPTURE NEUTRONIQUE.....	126
4.3.2.1	RÉGRESSIONS DES FONCTIONS $Da(V)$ et $Db(V)$ EN FONCTION DES PROPRIÉTÉS DES ÉLÉMENTS	127
4.3.2.2	RÉGRESSIONS DES FONCTIONS $Da(V)$ ET $Db(V)$ PAR RAPPORT AU VOLUME.....	136
4.3.3	RÉSULTATS DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE EN FONCTION DE LA SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE DE CAPTURE NEUTRONIQUE RADIATIVE ET V	141
4.4	RÉSULTATS DES SIMULATIONS DE LA PERTURBATION DU FLUX OBTENUS PAR LE MODÈLE SEMI-ANALYTIQUE POUR QUELQUES ÉLÉMENTS.....	144
4.5	ANALYSES STATISTIQUES DES ÉCARTS ENTRE LES RÉSULTATS OBTENUS PAR LE MODÈLE SEMI-ANALYTIQUE ET LES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	153

CHAPITRE 5-TRANSPORT NEUTRONIQUE, MÉTHODE	
NUMÉRIQUE.....	157
5.1 TRANSPORT NEUTRONIQUE, MÉTHODE DES ORDONNÉES	
DISCRÈTES.....	157
5.2 DISCRÉTISATION ANGULAIRE.....	160
5.3 MAILLAGES ANGULAIRE SPATIAL ET ÉNERGÉTIQUE	
POUR UN CYLINDRE CIRCULAIRE 2-D.....	162
5.4 MÉTHODOLOGIE EMPLOYÉE DANS LE CODE DE CALCUL	
PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES.....	164
5.4.1 DISCRÉTISATION DES VARIABLES ANGULAIRES.....	164
5.4.2 CODE DE CALCUL POUR LA MÉTHODE DES	
ORDONNÉES DISCRÈTES.....	166
5.4.2.1 PREMIÈRE SECTION DU CODE DE CALCUL PAR	
LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES...	166
5.4.2.2 SCHÉMA DIAMANT.....	167
5.4.2.3 EXPRESSIONS DES ORDONNÉES DISCRÈTES	
DES COORDONNÉES DES SURFACES ET	
VOLUMES DIFFÉRENTIELS.....	169
5.4.2.4 VALEURS INITIALES DU FLUX ANGULAIRE EN	
TOUT POINT DU MAILLAGE.....	171
5.4.3.1 DEUXIÈME SECTION DU CODE DE CALCUL PAR	
LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES...	172
5.4.3.2 SOURCE DE NEUTRONS ET CONDITIONS	
FRONTIÈRES.....	172
5.4.4 TROISIÈME SECTION DU CODE DE CALCUL PAR LA	
MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES.....	173
5.4.4.1 SYSTÈME DE COORDONNÉES CURVILIGNES..	173
5.4.4.2 DIFFÉRENCES FINIES SPATIALES EN	
COORDONNÉES CURVILIGNES.....	174

5.4.4.3 FORMULES DE QUADRATURE.....	174
5.4.4.4 CYLINDRE 2-D, DIFFÉRENCES FINIES SPATIALES.....	176
5.5 MÉTHODE D'ITÉRATIONS.....	185
5.6 SIMULATION PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES.....	186
5.7 ANOMALIES NUMÉRIQUES OBSERVÉES ET CORRECTIFS APPLIQUÉS LORS DES SIMULATIONS PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES.....	187
5.8 RÉSULTATS OBTENUS PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES.....	192
5.9 COMPARAISON DES RÉSULTATS OBTENUS PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES AUX RÉSULTATS DU MODÈLE SEMI-ANALYTIQUE.....	194
CHAPITRE 6 – CONCLUSIONS	198
BIBLIOGRAPHIE	204

LISTE DES TABLEAUX

	Page
Tableau 2.1 Plage et spectre d'énergie des neutrons thermiques.....	13
Tableau 2.2 Coefficients des sections efficaces microscopiques de capture radiative des neutrons thermiques.....	23
Tableau 3.1 Dimensions d'une capsule d'échantillon pour un site d'irradiation interne.....	50
Tableau 3.2 Précision des pipettes.....	51
Tableau 3.3 Résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte.....	52
Tableau 3.4 Précision absolue des balances du laboratoire de radiochimie de la centrale nucléaire de Gentilly-2.....	55
Tableau 3.5 Incertitudes absolues et relatives des constantes et des fonctions requises pour le calcul de la perturbation du flux neutronique.....	56
Tableau 3.6 Impact des incertitudes absolues et relatives des dimensions R et H sur V.....	57
Tableau 3.7 Incertitudes absolues et relatives sur V , Σ_a et P	59
Tableau 3.8 Activités mesurées d'une chaîne de mesure d'activité avec un échantillon standard.....	63
Tableau 3.9 Résultats des analyses statistiques des écarts des mesures d'activités par rapport à l'activité d'un échantillon standard.....	64
Tableau 3.10 Coefficients des régressions non linéaires de la perturbation du flux en fonction de Σ_a et résultats des analyses statistiques des écarts entre ces régressions et les résultats expérimentaux.	75

Tableau 3.11 Résultats des régressions linéaires pour $D_a(V) = c + dV$	77
Tableau 3.12 Résultats de la régression linéaire de $D_b(V) = e + fV^2$	78
Tableau 3.13 Constantes c, d, e et f coefficients des $Da(V)$ et $Db(V)$ et leurs erreurs relatives pour la première (1 ^{re}) corrélation globale de la perturbation du flux.....	79
Tableau 3.14 Résultats des analyses statistiques des écarts entre la première (1 ^{re}) corrélation globale de la perturbation du flux et les résultats expérimentaux.....	81
Tableau 3.15 Résultats statistiques entre la (2 ^e) corrélation globale améliorée de la perturbation du flux et les résultats expérimentaux.....	88
Tableau 3.16 Taux de convergence de la méthode d'itération pour la correction des concentrations en fonction de Σ_a et V pour le cobalt.	97
Tableau 4.1 Paramètres des énergies discrètes.....	119
Tableau 4.2 Valeurs moyennes de $Da(V)$ en fonction des volumes d'échantillon.....	136
Tableau 4.3 Résultats de l'analyse statistique des écarts de la régression non linéaire de $Da(V)$	136
Tableau 4.4 Valeurs moyennes de $Db(V)$ en fonction des volumes d'échantillon.....	138
Tableau 4.5 Résultats de l'analyse statistique des écarts de la régression non linéaire de $Db(V)$	138
Tableau 4.6 Comparaisons entre la première (1 ^{re}) corrélation et la troisième (3 ^e) corrélation.....	140
Tableau 4.7 Résultats d'analyse statistique des écarts entre les solutions semi-analytiques et les résultats expérimentaux de la perturbation du flux pour sept (7) éléments.....	153

Tableau 5.1	Maillage angulaire, spatial, énergétique et total pour le calcul de la perturbation du flux neutronique d'un cylindre circulaire 2-D, par la méthode des ordonnées discrètes.....	163
Tableau 5.2	Indices directionnels pour S_8	164
Tableau 5.3	Poids pour quadrature de S_8	165
Tableau 5.4	Résultats de l'analyse statistique des écarts entre les résultats obtenus par la méthode des ordonnées discrètes, les résultats semi-analytiques et les résultats expérimentaux pour des échantillons de 1 ml de concentrations variables d'or.....	194

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1 Masses mesurées d'échantillons de cobalt en fonction des masses réelles.	2
Figure 1.2 Site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke 2.....	7
Figure 2.1 Graphique du spectre d'énergie de Maxwell.....	14
Figure 2.2. Schéma d'une capture neutronique radiative.....	18
Figure 2.3 Ggraphique des sections efficaces microscopiques des captures radiatives des neutrons thermiques en fonction de l'énergie pour le niobium et l'aluminium.....	24
Figure 2.4 Graphique des sections efficaces microscopiques des captures radiatives des neutrons thermiques en fonction de l'énergie pour le manganèse, le fer et le cuivre.....	25
Figure 2.5 Graphique des sections efficaces microscopiques des captures radiatives des neutrons thermiques en fonction de l'énergie pour le cobalt et l'or.....	26
Figure 2.6 Graphique du systèmes de coordonnées spatiales et des variables angulaires d'un cylindre circulaire droit.....	33
Figure 2.7 Graphique de la dépression du flux neutronique à proximité d'un échantillon circulaire absorbant.....	41
Figure 2.8 Graphique de la perturbation du flux à l'intérieur et à proximité d'un échantillon cylindrique absorbant.....	42
Figure 3.1 Graphique du spectre d'énergie des rayons gamma émis par l'or Irradié première (1 ^{re}) partie.....	47
Figure 3.2 Graphique du spectre d'énergie des rayons gamma émis par l'or irradié deuxième (2 ^e) partie.....	48

Figure 3.3 Graphique des mesures de la perturbation du flux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique comportant trois courbes paramétrées par le volume d'échantillon.	53
Figure 3.4 Graphique des résultats expérimentaux pour $V=1,0$ ml et des courbes d'erreurs limites.....	61
Figure 3.5 Graphique de la première (1^{re}) corrélation globale de la perturbation du flux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique comportant trois courbes paramétrées selon des volumes d'échantillon.....	80
Figure 3.6 Graphique de la première (1^{re}) corrélation globale de la perturbation du flux, d'une solution semi-analytique et des résultats expérimentaux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique, pour des échantillons de 1,0 ml.....	83
Figure 3.7 Graphique de la première (1^{re}) corrélation globale de la perturbation du flux, d'une solution semi-analytique et des résultats expérimentaux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique, pour des échantillons de 0,5 ml.....	84
Figure 3.8. Graphique de la deuxième (2^{e}) corrélation globale améliorée de la perturbation du flux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique comportant trois courbes paramétrées selon des volumes d'échantillons.....	89
Figure 3.9 Graphique de la masse mesurée en fonction de la masse réelle d'un volume de 1,5 ml de cobalt.....	99
Figure 3.10 Graphique des courbes de correction des masses mesurées pour des échantillons de 0,5 ml de six (6) éléments.....	101
Figure 3.11 Graphique des courbes de correction des masses mesurées pour des échantillons de 1,0 ml de six (6) éléments.....	102
Figure 3.12 Graphique des courbes de correction des masses mesurées pour des échantillons de 1,3 ml de six (6) éléments.....	103

Figure 4.1 Graphique de la distribution radiale du flux neutronique angulaire ou de l'autoprotection	110
Figure 4.2 Distributions radiale et axiale de l'autoprotection selon des coordonnées spatiales a dimensionnelles.....	114
Figure 4.3 Graphique du spectre d'énergie du flux neutronique scalaire pour des noyaux d'or ayant une concentration équivalente de $\Sigma_a = 2.5$ moles-barns, à la position ($\rho = \frac{P}{2}, z = 0$).....	121
Figure 4.4 Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour un volume d'échantillon de 1 ml présentant trois courbes ayant des paramètres $D_a(V)$ différents, alors que les paramètres $D_b(V)$ sont constants à 0,5289.....	133
Figure 4.5 Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour un volume d'échantillon de 1 ml présente trois courbes ayant des paramètres $D_b(V)$ différents, alors que les paramètres $D_a(V)$ sont constants à -0.5.....	134
Figure 4.6 Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour un volume d'échantillon de 1ml présentant la valeur critique de $D_b(V)/D_a(V)=0,7089/-0,57$	135
Figure 4.7 Graphique illustrant le résultat de la régression non linéaire de $D_a(V)$ en fonction de V (ml).....	137
Figure 4.8 Graphique illustrant le résultat de la régression non linéaire de $D_b(V)$ en fonction de V (ml).....	139
Figure 4.9 Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons, d'or.....	142
Figure 4.10 Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour le Bore (B) pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml).....	145
Figure 4.11 Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en	

présence de diverses Σ_a du chlore (Cl).....	146
Figure 4.12 Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de différentes Σ_a du manganèse (Mn).....	147
Figure 4.13 Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et différentes Σ_a du fer (Fe).....	148
Figure 4.14 Graphiques de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a du cobalt (Co).....	149
Figure 4.15 Graphiques de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a du cuivre (Cu).....	150
Figure 4.16 Graphiques de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a d'or (Au).....	151
Figure 5.1 Schéma d'un maillage directionnel sur une sphère unitaire.....	159
Figure 5.2 Schéma d'une sphère unitaire directionnelle S_8 avec les indices angulaires q et p.....	161
Figure 5.3 Schéma diamant.....	168
Figure 5.4 Graphique de la perturbation du flux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique pour des échantillons de 1 ml comportant une courbe pour la solution semi-analytique, la solution obtenue par la méthode des ordonnées discrètes et les résultats expérimentaux.....	193

LISTE DES SIGLES ET ABBRÉVIATIONS

a : indice d'absorption neutronique, coefficient employé dans une fonction caractérisant la

dépression du flux

A : activité, autoprotection, surface du pic de résonance, différentielle de l'autoprotection,

somme du nombre atomique et du nombre de neutrons ($A=Z+N$)

A_j : constante d'intégration, surface verticale d'un anneau

Al : symbole chimique de l'aluminium

A_p : autoprotection

Au : symbole chimique de l'or

b : barn (10^{-24} cm²), coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du

flux

B : le facteur de sensibilité du détecteur gamma, symbole chimique du bore, laplacien,

BASIC : logiciel de programmation

B_i : constante d'intégration, surface horizontale d'un anneau différentiel

$BesselI(0,x)$: fonction de Bessel $I_0(x)$ modifiée de première espèce d'ordre 0

c : capture, coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du flux, paramètre d'un spectre quasi maxwellien

$$c := \frac{\sum_i N_i (\sigma_{s_i}(E) + \nu_i \sigma_{f_i}(E))}{\sum_i N_i \sigma_{t_i}(E)} : \text{le nombre moyen de neutrons secondaires par}$$

collision

C, C^{++} : langages de programmation

CANDU : Canadian Deuterium and Natural Uranium Reactor

Cd : symbole chimique du cadmium

CF : conditions frontières

C_i : unités d'activité, Curies

C_j : concentration de l'élément j

C_m : concentration mesurée

Co : symbole chimique du cobalt

Cr : concentration réelle

cte : constante

Cu : symbole chimique du cuivre

d : coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du flux, paramètre

d : d'un spectre quasi maxwellien, indice de diffusion neutronique, différentielle
depflux : fonction représentant la dépression du flux

d_{ext} : distance d'extrapolation (correction de transport)

1-D : une dimension

2-D : deux dimensions

D : Dérivée totale, coefficient de diffusion neutronique, dimension(s)

$Da(V)$: fonction polynomiale du volume et coefficient d'une fonction harmonique cylindrique, $\exp(Da(V) \Sigma_a)$ de la perturbation du flux

$Db(V)$: fonction polynomiale du volume et coefficient d'une fonction harmonique cylindrique $I_0(Db(V) \Sigma_a)$ de la perturbation du flux

D_p : dépression du flux neutronique

ds : distance différentielle sur une courbe $s(x,y,z)$

e : coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du flux, énergie cinétique des neutrons en eV

$\hat{e}_z$: vecteur de base dans la direction z ou selon la coordonnée z

$\exp$ ou e : fonction exponentielle

E ou E_n : énergie cinétique des neutrons (eV)

EPAA : code de conversion de l'activité mesurée en éléments identifiés et concentrations

(École Polytechnique Analyse par Activation)

épi : épithermique (suffixe)

Eu : symbole chimique de l'euporium

eV : électron volt, unité d'énergie

f : rapport du flux scalaire des neutrons thermiques et des neutrons épithermiques,
coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du flux

f : indice de fission

$|f(x)|$: valeur absolue de $f(x)$

F : le flux de neutrons relatif au flux de référence

$F_2(\xi)$: fonction arbitraire de ξ

Fe : symbole chimique du fer

FORTTRAN : langage de programmation (Formula Translation)

g : coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du flux, unités de
masse (grammes)

G : nombre de groupes de neutrons

Ge : symbole chimique du germanium

grad : gradient, vecteur $\text{grad}(f(x,y,z)) = \left(\frac{\partial}{\partial x} f(x,y,z), \frac{\partial}{\partial y} f(x,y,z), \frac{\partial}{\partial z} f(x,y,z) \right)$

h : coefficient employé dans une des fonctions décrivant la dépression du flux

h : hauteur

H : hauteur du contenu de l'échantillon dans la capsule d'un peu plus de 1ml, noyau
d'hydrogène

i : indice indiquant parfois un isotope ou indice radial ou indice arbitraire

$I_{\text{rés}}$: intégrale de résonance

$\int f(x) dx$: intégrale indéfinie

I_0 : fonction de Bessel modifiée de première espèce d'ordre zéro

j : indice indiquant parfois un élément ou indice longitudinal ou indice arbitraire

J_0 : fonction de Bessel de première espèce d'ordre zéro

k : indice employé pour gérer et compter le nombre d'itérations, constante thermique de Boltzmann

K : nombre maximum d'itérations

l : indice employé pour l'énergie discrète

l : libre parcours moyen des neutrons

Li : symbole chimique du lithium

$lmoy$: indice correspondant à l'énergie thermique la plus probable

ll : facteur reliant le nombre d'intervalles distincts d'énergie (LL) au pourcentage de couverture de la plage thermique

LL : nombres d'intervalles distincts d'énergie

LM : pourcentage de la couverture de la plage thermique

m : masse d'un élément en g

ms : millisecondes (1E-03s)

M : masse atomique en g/mole, maxwellien (suffixe), nombre total de mailles

$MAPLE$: logiciel de calcul symbolique créé à l'université de Waterloo, Ontario, Canada

$MATLAB$: logiciel de programmation conçu pour le calcul matriciel efficace

$MCNP$: logiciel de calcul stochastique faisant appel à la méthode Monte Carlo

m_n : masse d'un neutron en MeV

Mn : symbole chimique du manganèse

MOD : méthode des ordonnées discrètes

moy : indice signifiant moyen

n ou n' : neutron, densité de population neutronique, rayonnement neutronique

n_0 : densité de neutrons nominale en n/cm^3

nom : nominal (suffixe)

N : Nombre de noyaux, densité de la distribution des neutrons dans l'espace de phases, nombre de neutrons dans un noyau

N_A : nombre d'Avogadro (6.02221367E+23)

Nb : symbole chimique du niobium

N_i : nombre maximal d'indices radiaux

p : indice directionnel de ξ_p , quantité de mouvement

pg : picogrammes ($1E-09g$)

P : perturbation du flux ou probabilité

$P_n\left(\frac{1}{v_j}\right)$: Polynômes de Legendre

ppb : partie par billion ($1E-09$)

ppm : partie par million ($1E-06$)

q : indice directionnel de ω_q , source de neutrons

Q : source de neutrons

$Q_n\left(\frac{1}{v_j}\right)$: Fonction de Legendre du deuxième genre

r : rayon d'un cylindre ou d'une sphère, coefficient de régression linéaire

R : rayon limite d'un cylindre ou d'une sphère, taux de réaction nucléaire

réf : référence

s : seconde, indice parfois employé pour désigner la dispersion ('scattering'), écart-type

sinh : fonction sinus hyperbolique

SLOWPOKE : Safe Low Power Critical Experiment

SSA: solution semi-analytique

t : temps, totale (section efficace)

th : thermique (suffixe)

T : température (K)

U : symbole chimique de l'uranium, ensemble univers, vecteur U , $U = u \Omega$

v ou v_n : vitesse des neutrons (cm/s)

V : volume

w : poids employé dans une quadrature

x : coordonnée

y : coordonnée

$Y_0(x)$ ou Bessel $Y(0,x)$: fonction de Bessel du deuxième type d'ordre zéro

$Y_{l,m}$: fonction harmonique sphérique

z : coordonnées dans la direction de la hauteur d'un cylindre

Z : numéro atomique

Z_i ou ZI : nombre maximal d'indices longitudinaux

α : variable différentielle du terme d'advection, constante, valeur propre, rayonnement alpha

β : constante, valeur propre, rayonnement bêta

γ : constante, valeur propre, indice signifiant rayon gamma, rayonnement gamma

Γ : largeur partielle d'un pic de résonance

δ : « fonction » delta de Dirac

$\frac{\partial}{\partial x} f(x, t)$: dérivée partielle

Δ : différence finie, incertitude absolue ou relative, laplacien

ε : epsilon, nombre positif aussi petit que voulu ($\varepsilon \ll 1$)

E : énergie cinétique neutronique

ζ : constante, valeur propre

η : cosinus directeur de la direction

θ : angle, facteur de répartition de l'itération

κ : indice, constante, valeur propre

K : distribution du flux scalaire des neutrons épithermiques incluant le spectre d'énergie

λ : la constante de décroissance radioactive, la longueur d'onde de de Broglie

μ : moyenne, cosinus directeur de la direction

ν : nombre de neutrons secondaires produits par fission nucléaire

ξ : cosinus directeur de la direction

π : 3,141592654

ρ : rayon

P : Valeur limite du rayon

σ : section efficace microscopique, écart-type

Σ : section efficace macroscopique, somme

v : volume

ϕ ou Φ : flux neutronique scalaire

ψ ou Ψ : flux neutronique angulaire

ω : coordonnée angulaire

Ω : vecteur de direction

Ω_p : composante du vecteur de direction ou direction discrète

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

1.1 PROBLÉMATIQUE ET BUTS

Le but principal de ce projet consiste à développer des modèles mathématiques représentatifs du comportement neutronique dans les échantillons cylindriques irradiés dans les sites internes du réacteur Slowpoke de l'École Polytechnique de Montréal (Kennedy, 1982).

Un objectif important vise à représenter adéquatement la perturbation du flux neutronique à proximité et dans les échantillons de ces sites d'irradiation neutronique internes. La perturbation du flux neutronique combine la dépression du flux scalaire à l'extérieur d'un corps absorbant et l'autoprotection à l'intérieur de celui-ci. Elles sont causées par la présence d'au moins un isotope ayant une section efficace macroscopique de capture neutronique radiative élevée (De Soete *et al*, 1972).

Le but ultime de cette recherche est de mettre au point une méthode de correction précise et rapide des concentrations ou des masses mesurées des éléments irradiés afin de compenser la perturbation du flux.

Lorsque la perturbation du flux d'un échantillon est importante, la concentration ou la masse mesurée de n'importe quel élément présent dans l'échantillon est sous-estimée par rapport à la concentration ou la masse réelle. La figure 1.1 présente clairement l'impact de la perturbation du flux sur la mesure de la masse d'échantillons de 1,5 ml contenant des masses variées de cobalt-59. La courbe du graphique provient d'un modèle mathématique de transport neutronique semi-analytique d'un site d'irradiation interne présenté au chapitre 4.

Masse de cobalt (g) mesurée en fonction de la masse réelle de cobalt pour $V = 1,0$ ml

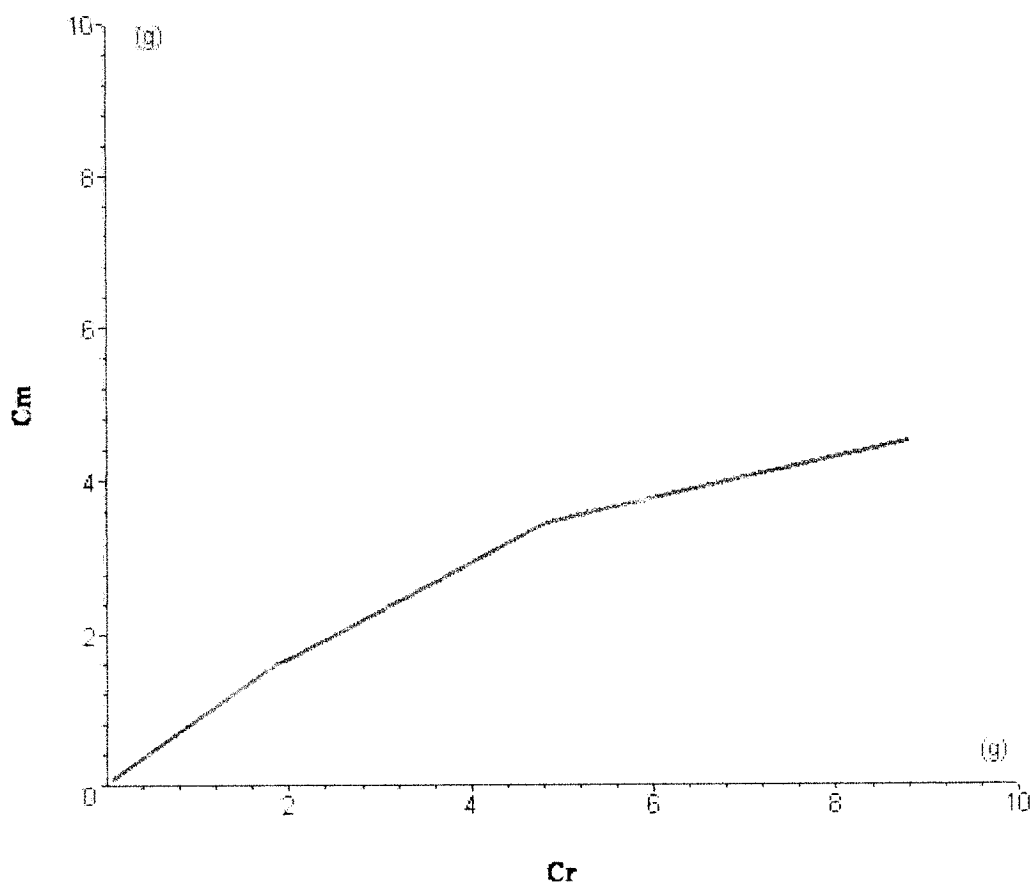


Figure 1.1 : Graphique de la masse mesurée Cm (g) d'un échantillon homogène de cobalt-59 de 1,0 ml en fonction de la masse réelle Cr (g).

1.2 HISTORIQUE DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE

L'étude des facteurs de correction de l'autoprotection des neutrons thermiques a été un sujet très répandu durant les années 1950-1960. La plupart des travaux portaient sur des neutrons mono énergétiques et ignoraient la distribution neutronique dans l'espace géométrique des échantillons pour les pics de résonance (Mo, Ott, 1987).

À la fin de cette décennie, une méthode d'expansion semi-analytique des harmoniques sphériques fut employée pour étudier le phénomène d'autoprotection (Selander, 1960).

Eastwood et Werner (Eastwood et *al*, 1962) procédèrent à l'étude expérimentale de l'autoprotection de feuilles et de fils de cobalt de différents diamètres par la technique d'analyse par activation neutronique sur des alliages de cobalt et d'aluminium, dans le réacteur NRX canadien.

Yamamoto et Yamamoto (Yamamoto et *al*, 1965) employèrent la technique de probabilité des collisions, de même que les diffusions neutroniques pour chacun des pics de résonance des éléments étudiés afin de déterminer les facteurs d'autoprotection individuels.

Rossito et Terrani (Rossito et *al*, 1972) démontrèrent que la perturbation du flux est fortement dépendante de la géométrie de l'échantillon.

Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984) mesurèrent la perturbation du flux des neutrons thermiques en fonction de la masse de quelques éléments et du volume de l'échantillon cylindrique, dans un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke(1). L'indice (1) associé au nom du réacteur Slowpoke signifie que le réacteur fonctionnait avec son premier chargement de combustible. À cette époque, le réacteur Slowpoke avait encore son chargement initial de combustible fortement enrichi (Kennedy, 1982).

Carter (Carter, 1982) employa la méthode de calcul Monte Carlo alors que Nolthenius et Carter (Gonçalves et *al*, 2001) calculèrent l'autoprotection des sections efficaces des résonances applicables au taux de réactions multigroupes.

McGarry (McGarry, 1986) étudia l'autoprotection d'échantillons d'uranium (U-238) et de cobalt (Co-59), qui sont des matériaux principalement diffusants. Il étudia également l'or (Au-197) avec son imposant premier pic de résonance d'absorption neutronique d'environ 18 kb à 4,9 eV.

Également en 1986, Mo et Ott (Mo et al, 1987) effectuèrent des mesures d'activité, de minces feuilles d'or, de manganèse, de tungstène et de thorium suite à l'activation de celles-ci par des neutrons rapides.

Gonçalves, Martinho et Salgado (Gonçalves et al 2001) étudient spécifiquement l'autoprotection des neutrons épithermiques en présence du premier pic de résonance de certains noyaux absorbeurs de neutrons présents dans des échantillons sous forme de tiges cylindriques, de minces feuilles ou même de sphères (Gonçalves, Martinho et Salgado, 2001, 2002, 2003, Salgado, Gonçalves et Martinho, 2004).

Ils employèrent le code de calcul Monte Carlo MCNP (Gonçalves, Martinho et Salgado, (2001, 2002, 2003), Salgado, Gonçalves et Martinho, 2004, Fröhner, 2000) pour estimer les rapports des sections efficaces de diffusion et de capture neutronique. Ces sections efficaces sont des fonctions de l'énergie cinétique des neutrons. Les facteurs d'autoprotection étudiés dépendent eux-mêmes de ces rapports de sections efficaces.

Ils proposent une corrélation non linéaire pour représenter l'ensemble des résultats obtenus sur une courbe unique. Ils démontrent également que l'autoprotection dépend aussi de la géométrie et des dimensions des échantillons analysés.

1.3 MÉTHODE

En tenant compte de la distribution spatiale des neutrons, le spectre d'énergie des neutrons et de la dépendance en énergie des sections efficaces microscopiques de capture radiative des neutrons des noyaux présents, nous prévoyons améliorer significativement les prédictions calculées de la perturbation du flux.

Notre méthodologie consiste en élaboration de modèles mathématiques de transport neutronique; un modèle semi-analytique et un modèle numérique d'ordonnées discrètes tenant compte des facteurs précédents. Ensuite, nous calculons le flux neutronique scalaire moyen dans les échantillons, que nous insérons dans les définitions de l'autoprotection, de la dépression du flux et de la perturbation du flux. Nous simulons de la sorte des échantillons comportant l'un de sept (7) éléments choisis, à des concentrations variées et selon trois (3) volumes d'échantillons spécifiques.

Notre approche emploie deux types de modèles mathématiques, un modèle semi-analytique alors que l'autre est un modèle numérique de transport neutronique. Nous les avons conçus afin de représenter adéquatement les phénomènes présents dans des domaines de faibles dimensions physiques (1 ml) dans un site d'irradiation interne (Reuss, 2003).

Les modèles étudiés appliqués à la simulation du site interne d'irradiation du réacteur Slowpoke sont :

- le modèle d'un cylindre circulaire 2-D (ρ, z, h) obtenu par la combinaison d'une solution semi-analytique du flux angulaire (Davison, 1957, Gonçalves, 2001) et de la quadrature de l'énergie cinétique des neutrons.

- le modèle numérique d'un cylindre circulaire 2-D (ρ, z, E) obtenu par la méthode des ordonnées discrètes S_8 , (Lewis et Miller, 1993, Bell et Glasstone, 1970, Davison, 1957, Reuss, 2003, Greenspan, 1968).

Afin de construire et de valider les modèles, nous employons des résultats expérimentaux de la perturbation du flux obtenus dans un site interne du réacteur Slowpoke (1) de l'École Polytechnique de Montréal. Nous déterminons une corrélation globale de la perturbation du flux mesurée en fonction du volume des échantillons et de la section efficace macroscopique de capture neutronique radiative de l'un des sept éléments présents.

L'étape suivante consiste à comparer les résultats obtenus des modèles mathématiques aux résultats expérimentaux. Ceci est fait à l'aide d'analyses statistiques, afin de déterminer la précision relative des modèles, tout en tenant compte de l'incertitude fortuite relative des mesures expérimentales. Nous avons estimé cette incertitude expérimentale afin d'établir une référence aux fins de comparaisons.

Finalement, nous tentons de concevoir un processus itératif de correction des concentrations ou masses mesurées en utilisant la corrélation globale de la perturbation du flux pour obtenir rapidement des valeurs réelles précises.

La figure 1.2 présente un schéma d'un site d'irradiation interne. L'indice (2) associé au nom du réacteur Slowpoke signifie qu'il fonctionnait avec son deuxième chargement de combustible.

Site d'irradiation neutronique interne

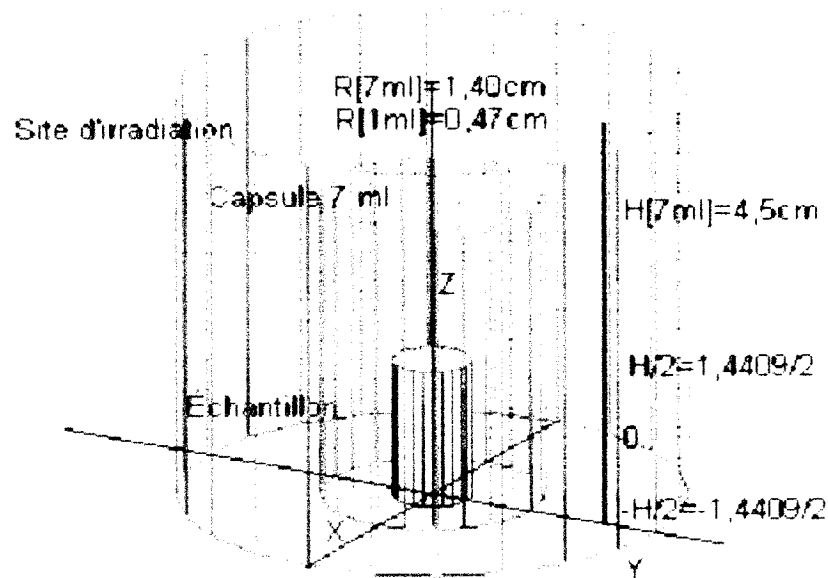


Figure 1.2 : Site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke (2) de l'École Polytechnique de Montréal.

Afin de réaliser la majeure partie des calculs de ce projet de recherche, nous faisons usage d'un logiciel de calcul symbolique appelé Maple 9.5 (Heck, 2003, Char et *al*, 1983, Pavelle et *al*, 1981, Monagan, 2002). À l'aide de ce logiciel, nous avons également conçu des codes de calcul numérique afin de déterminer le flux neutronique angulaire, le flux neutronique scalaire et la perturbation du flux.

D'autres auteurs (Murray, 2005, Warsa, 2002, Warsa, 2004) ont également employé un logiciel de calcul symbolique pour calculer le laplacien d'un réacteur sous la forme d'un cylindre elliptique, pour trouver des solutions analytiques pour des blocs rectangulaires hétérogènes et aussi pour calculer des transformées de Fourier en 3-D sur des tétraèdres appliquées à la convergence par itération de la source pour les méthodes

(Fully Consistent Diffusion Synthetic Acceleration) FCDSA et (Simplified Wareing-Larsen-Adams) SWLA.

Les principales hypothèses sur lesquelles reposent nos modèles sont les suivantes :

1. Le contenu des échantillons est spatialement homogène. Cette hypothèse est généralement justifiée dans l'analyse par activation neutronique (De Soete et *al*, 1972).
2. La loi des chocs est isotrope dans le référentiel du laboratoire. En fait, cet énoncé est inexact, puisqu'au mieux, la loi des chocs est isotrope dans le référentiel du centre de masse (Hébert, 2006). La justification de notre choix est de simplifier les modèles.
3. Nous ne considérons que la présence des neutrons thermiques dans le site d'irradiation interne.
4. Nous supposons un spectre d'énergie maxwellien des neutrons thermiques dans les sites internes. Cette hypothèse s'avère inexacte à cause du taux d'absorption important des neutrons qui va à l'encontre d'un équilibre thermique sur laquelle repose la distribution de Maxwell (Henry, 1975, Reuss, 2003). De plus, à de faibles énergies thermiques il existe des interactions entre les noyaux présents dans l'échantillon incluant la solution de glucose. Ces interactions invalident le libre mouvement des noyaux que requiert cette distribution (Hébert, 2006).
5. Dans nos modèles de transport neutronique, nous négligeons les collisions élastiques des neutrons au profit des collisions d'absorption neutronique. Cette situation est assurément non physique, car il ne peut y avoir de taux de réaction nucléaire sans taux de collisions élastiques. Cependant, nous justifions partiellement cette hypothèse par le fait que dans plusieurs des cas simulés le taux d'absorption neutronique est

nettement plus élevé que le taux de collisions élastiques. De plus, nous n'avons pas négligé les sources de neutrons provenant de la fission et des collisions élastiques hors de l'échantillon, tel que discuté au paragraphe 7.

6. Les résultats de perturbation de flux mesurés dans un site interne du réacteur Slowpoke ont été obtenus lors du premier chargement en combustible du réacteur Slowpoke. Le chargement initial de combustible était alors fortement enrichi en ^{235}U alors que le chargement actuel (deuxième chargement) n'est que légèrement enrichi. Nous croyons que la réfection et le rechargement du réacteur visaient à conserver les distributions angulaires et spatiales originales et tout particulièrement le flux scalaire nominal.
7. Nous avons utilisé des conditions frontières de type Mark en imposant un flux neutronique angulaire $\psi_{\text{ext}}(p, \xi, \mu, E)$ nominal aux surfaces externes des échantillons. Le flux angulaire aux frontières suit une distribution d'énergie de Maxwell applicable aux neutrons thermiques. Ces conditions frontières sont équivalentes à la présence d'une source de neutrons sur les surfaces externes (Case, Hoffman, Placzek, 1953). Toutefois, il aurait été préférable d'appliquer ces conditions à des surfaces virtuelles localisées à des distances extrapolées, par une correction de transport. Ceci nous aurait permis de séparer l'autoprotection de la dépression du flux dans l'espace d'un site interne.

1.4 PLAN DU MÉMOIRE

Le chapitre 2 présente les concepts de physique nucléaire nécessaires pour analyser le problème et pour le résoudre par les différentes méthodes employées dans cette étude.

Le chapitre 3 couvre la présentation et l'analyse de résultats expérimentaux de la perturbation du flux neutronique obtenus dans un site interne du réacteur Slowpoke. Les mesures ont été faites pour différentes concentrations de quelques éléments fortement absorbants de neutrons et pour trois volumes distincts d'échantillon (Kennedy et Marcotte, 1984).

L'analyse de ces résultats nous permet d'en estimer l'incertitude relative fournie de même que déterminer une corrélation globale de la perturbation du flux en fonction du volume et de la section macroscopique d'absorption neutronique. Cette corrélation est obtenue en deux étapes en appliquant un processus itératif suivi d'une régression non linéaire par la méthode des moindres carrés. Nous présentons également une méthode itérative de solution à implanter. Elle corrige rapidement et avec précision les concentrations mesurées affectées par la perturbation du flux.

Le chapitre 4 présente un modèle mathématique semi-analytique et heuristique de la perturbation du flux composé de deux parties. La première partie est une solution de l'équation de transport par la méthode des harmoniques sphériques (Davison, 1957, Henry, 1975, Bell et Glasstone, 1970, Reuss, 2003, Bussac et Reuss, 1985). La deuxième partie provient d'une solution d'un modèle de transport exclusivement absorbant des neutrons. Ces modèles sont appliqués à quelques éléments de masses atomiques et de sections efficaces microscopiques de capture neutronique différentes.

Le chapitre 5 montre l'application de la méthode des ordonnées discrètes (Lewis et Miller, 1993, Reuss, 2003, Bussac et Reuss, 1985, Chandrasekhar, 1950, Greenspan et *al*, 1968, Bell et Glasstone, 1970) pour simuler la perturbation du flux pour des échantillons ayant des concentrations variables de l'un des sept éléments choisis. Certains des éléments de cette sélection sont identiques à ceux étudiés

expérimentalement dans un site interne du réacteur Slowpoke. Un modèle d'un cylindre fini (2-D) est obtenu par la méthode numérique des ordonnées discrètes (Lewis et Miller, 1993).

Enfin, le chapitre 6 présente nos discussions et nos conclusions sur les résultats obtenus par le modèle de transport semi-analytique et le modèle de transport numérique, selon la méthode des ordonnées discrètes. Ces résultats mathématiques sont ensuite comparés aux résultats expérimentaux. Nous présentons nos objectifs et le degré de succès obtenus à les rencontrer. Des conclusions pertinentes sont alors présentées avec des recommandations susceptibles d'améliorer les modèles. et d'élargir le champ de notre étude.

CHAPITRE 2

PHYSIQUE NUCLÉAIRE

2.1 PRÉAMBULE

Puisqu'une partie importante de ce projet consiste à étudier les interactions des neutrons avec des noyaux de différents éléments et isotopes, nous présentons certains concepts pertinents de physique nucléaire.

La distribution spatiale des neutrons dans le milieu composé de noyaux uniformément distribués dans les échantillons, la densité de probabilité de l'énergie cinétique des neutrons et la dépendance en énergie des sections efficaces microscopiques de capture neutronique radiative sont des facteurs déterminants de cette étude.

2.2 FLUX NEUTRONIQUE ANGULAIRE ET SCALAIRE

Dans ce projet, nous utilisons fréquemment le flux neutronique scalaire moyen d'un échantillon, afin de déterminer la perturbation du flux. Le flux neutronique scalaire moyen dans un échantillon cylindrique circulaire se calcule par l'expression suivante,

$$\phi_{moy} = \frac{\int_{E_{n_1}}^{E_{n_2}} \int_{-\frac{H}{2}}^{\frac{H}{2}} \int_0^{2\pi} \int_0^P \rho \phi(\rho, \theta, z, E_n) \sin(\theta) d\rho d\theta dz dE_n}{\int_{E_{n_1}}^{E_{n_2}} \int_{-\frac{H}{2}}^{\frac{H}{2}} \int_0^{2\pi} \int_0^P \rho \sin(\theta) d\rho d\theta dz dE_n}, \quad (2.1)$$

avec $r(\rho, \theta, z)$ le vecteur position. Dans le calcul de cette moyenne, nous avons aussi intégré par rapport à la variable E_n , l'énergie cinétique des neutrons.

2.3 NEUTRONS THERMIQUES

Le rapport de la densité de population des neutrons thermiques à celle des neutrons épithermiques dans un site interne d'irradiation a été mesuré. Pour un neutron épithermique présent dans le site interne, il y a environ 18 neutrons thermiques présents (St-Pierre et Kennedy, 2004).

Ceci nous permet de conclure que le flux scalaire des neutrons thermiques domine largement celui des neutrons épithermiques dans un site d'irradiation interne. Ceci nous permet de simplifier nos modèles.

Le flux des neutrons thermiques scalaire nominal du réacteur dans un site d'irradiation interne est connu avec une précision adéquate. Le flux scalaire nominal des neutrons thermiques est $1,0\text{E}+12 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ (Kennedy et Marcotte, 1984, Kennedy, 1982, St-Pierre et Kennedy, 2004, Kennedy et Marleau, 1997).

2.3.1 SPECTRE D'ÉNERGIE DES NEUTRONS THERMIQUES

Le tableau 2.1 présente la plage d'énergie, et le spectre d'énergie des neutrons thermiques que l'on retrouve en majorité dans les sites internes, en absence de noyaux absorbeurs (Lamarsh, 1972).

Tableau 2.1 : Plage et spectre d'énergie des neutrons thermiques

	Plage d'énergie	Spectre d'énergie de Maxwell
Neutrons thermiques	0 à 0,5 eV	$\Phi_M(E) = \frac{2 \pi v_0 n_0 \sqrt{2} \sqrt{\frac{1}{m_n}} E e^{\left(-\frac{E}{k T}\right)}}{(\pi k T)^{(3/2)}} \quad (2.2)$

$v(0)$: vitesse des neutrons thermiques (cm/s) correspondants à une énergie cinétique de

0,0253 eV (à $T=20$ C ou 293 K),

n_0 : densité des neutrons thermiques,

m_n : masse d'un neutron en MeV,

E : énergie cinétique des neutrons thermiques en eV,

k : constante de Boltzmann

T : température en K.

La figure 2.1 présente le spectre d'énergie des neutrons thermiques, que nous supposons maxwellien.

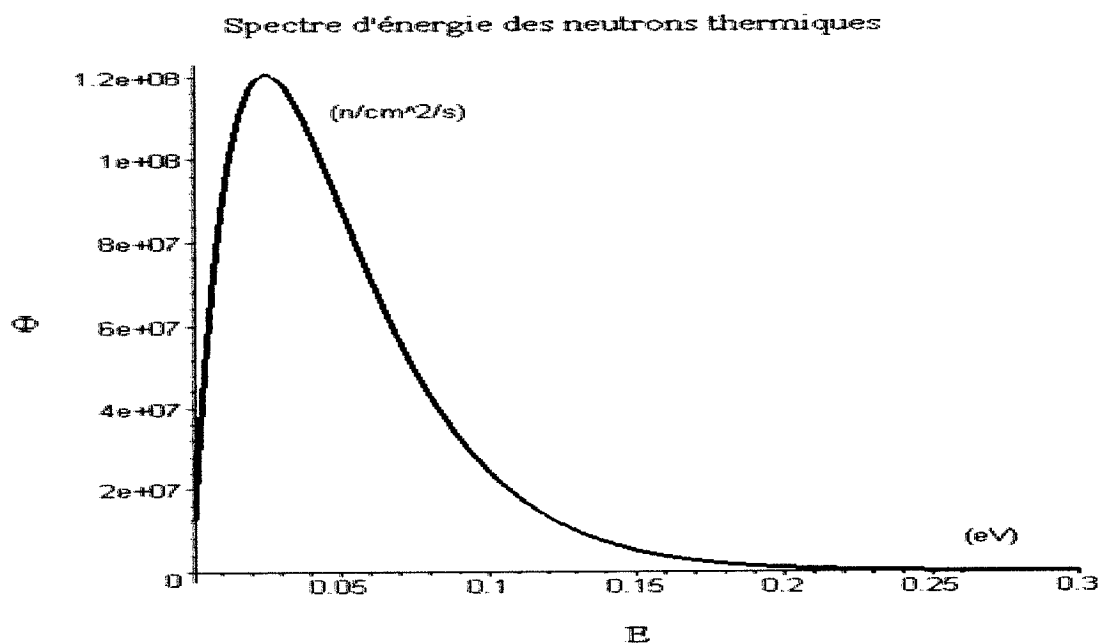


Figure 2.1 : Graphique du spectre d'énergie de Maxwell ($\text{n/cm}^2/\text{s}$) en fonction de l'énergie cinétique des neutrons thermiques en eV, pour les neutrons thermiques du site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke, avec un flux scalaire nominal de $1,0\text{E}+12 \text{ n/cm}^2/\text{s}$.

Par définition, les neutrons thermiques sont les neutrons issus de la fission nucléaire et qui ont été ralentis dans le modérateur jusqu'à atteindre un équilibre thermique avec le modérateur à sa température (20 à 30 C) en absence de réactions d'absorption neutronique. Puisque les échantillons sont susceptibles d'avoir des éléments fortement absorbants, il est douteux que le spectre des neutrons soit exactement maxwellien (Reuss, 2003, Henry, 1975, Glasstone et Sesonske, 1994, Bell et Glasstone, 1970, Hébert, 2005).

Nous supposons néanmoins que le spectre d'énergie des neutrons thermiques est une distribution de maxwellienne (Terletsii, 1975) en absence de toutes autres données ou modèles spectraux.

L'énergie la plus probable des neutrons thermiques à 20 C est de 0,0253 eV et est celle choisie par convention pour caractériser les neutrons thermiques (Glasstone et Sesonske, 1994).

Puisque les neutrons thermiques sont en équilibre thermodynamique avec le modérateur, le taux de ralentissement des neutrons jusqu'aux énergies thermiques est nécessairement égal au taux d'augmentation d'énergie des neutrons thermiques. À de très basses énergies, les neutrons sont susceptibles d'interagir avec les faibles potentiels moléculaires et d'être partiellement ou complètement liés avec ces atomes ou molécules, ce qui perturbe l'état thermique des neutrons (Bell et Glasstone, Hébert, 2005, Squires, 1996).

2.4 COLLISIONS ET SECTIONS EFFICACES

Nous supposons que la densité de population spatiale des noyaux j est uniforme dans les échantillons. Les noyaux j présents dans un échantillon sont caractérisés par une densité ou un nombre de noyaux par unité de volume, soit,

$$N_j = \frac{\rho_j N_A}{M_j} \text{ (noyaux/cm}^{-3}\text{)} \quad (2.3)$$

où ρ_j est la masse volumique (g/cm^3), M_j est la masse atomique de l'isotope j (g/mole) considéré. N_A est le nombre d'Avogadro (Tuli, 2000, Parrington et al, 1996).

Les interactions entre le flux neutronique (angulaire ou scalaire) et l'ensemble de noyaux peuvent être de différentes natures. Il peut s'agir de collisions élastiques (n, n) ou inélastiques ($n, n' + \gamma$) entre un neutron et l'un des noyaux. Il peut également s'agir d'une capture d'un neutron par un noyau qui résulte en émissions de rayons X, d'un ou quelques rayons gamma (n, γ) ou encore de particules alpha (n, α) ou bêta (n, β) ou de protons (n, p) ou même encore de fragments de fission et de quelques ν neutrons, suite à la fission nucléaire (n, f) du noyau composé qui constitue l'ensemble neutron-noyau activé (Blanc, 1999).

Ces réactions nucléaires sont généralement dépendantes de l'énergie cinétique des neutrons incidents, des noyaux et des potentiels nucléaires et électromagnétiques des noyaux concernés. C'est pourquoi il faut considérer la dépendance en énergie des flux neutroniques et des sections efficaces microscopiques des diverses réactions auxquelles peuvent participer les noyaux présents.

Nous avons fait le choix d'avoir une loi de choc isotrope dans le référentiel du laboratoire dans le but de simplifier les modèles de transport neutronique.

Les collisions inélastiques sont très improbables dans les conditions existantes d'un site d'irradiation interne.

Le suffixe s dans la section efficace de diffusion d'un neutron par un noyau j $\sigma_{s_j}(r, E_n)$ est utilisé pour représenter le terme anglais « scattering », signifiant diffusion.

La probabilité d'une interaction i entre un neutron et un noyau j sur une distance différentielle ds dans un milieu composé de noyaux j (Henry, 1975, Reuss, 2003) s'exprime de la façon suivante,

$$\Sigma_i(r, E_n) ds = N_j \sigma_{i_j}(r, E_n) ds, \quad (2.4)$$

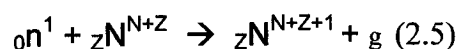
où $\Sigma_i(r, E_n)$ est appelée la section efficace macroscopique de la réaction i avec les noyaux j.

Les unités de la section efficace microscopique étant cm^2 (ou barn= $1\text{E}-24 \text{ cm}^2$), la section efficace microscopique est analogue à la surface de la projection d'un noyau cible sur un plan normal à Ω , à laquelle le neutron incident fait face. En fait, cette surface circulaire est généralement différente de la surface correspondante du noyau cible.

En généralisant à toutes les réactions nucléaires, la relation entre les probabilités et les sections efficaces microscopiques, chacune des probabilités des réactions nucléaires est directement proportionnelle à la section efficace microscopique de cette réaction nucléaire (i) avec les noyaux j, $\sigma_{i_j}(r, E_n)$ (cm^2 ou b, pour barn, $1\text{E}-24 \text{ cm}^2 / \text{b}$) (Hébert, 2006).

2.5 CAPTURE RADIATIVE DES NEUTRONS

Les sections efficaces microscopiques de capture radiative des neutrons thermiques (n, γ), sont généralement déterminées à partir de la radioactivité des noyaux du produit de la réaction,



Les valeurs de radioactivité ainsi obtenues sont, équivalentes aux activités induites dans les noyaux ${}_ZN^{N+Z+1}$ par cette réaction. (De Soete et *al*, 1972, Perdijon, 1967, Blanc, 1999). La figure 2.2 illustre la capture neutronique radiative d'un neutron par un noyau cible.

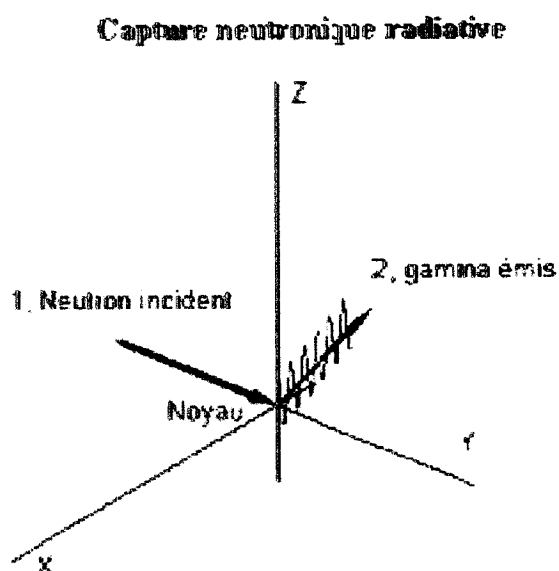


Figure 2.2 : Schéma d'une réaction de capture neutronique radiative. Le photon 2 est émis par le noyau activé par la capture du neutron incident (1). Généralement, l'émission du photon se produit après un décalage en temps caractéristique du noyau excité.

2.5.1 SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE DE CAPTURE NEUTRONIQUE RADIATIVE EN moles-b

L'équation suivante définit une variable universelle de section efficace macroscopique de capture neutronique permettant de comparer les effets de la perturbation du flux des éléments et isotopes pour différentes concentrations,

$$\Sigma_{a_i} = \frac{m_i \sigma_{a_i}}{M_i} \cdot (2.6)$$

m_i est la masse en g de l'élément ou l'isotope i dans l'échantillon irradié, M_i est la masse atomique en g/mole de l'isotope ou l'élément i dans l'échantillon irradié et σ_{a_i} est la section efficace d'absorption neutronique en barn de l'isotope ou l'élément i dans l'échantillon irradié (Kennedy et al, 1984). Le choix des unités en b (barn) au lieu de cm^2 de la section efficace microscopique d'absorption neutronique permet d'avoir des valeurs de section efficace macroscopique à une échelle plus conviviale, par exemple de 0 à 8 moles-b.

2.6 TAUX DE RÉACTION NUCLÉAIRE

Le taux de réaction i entre les neutrons et les noyaux j dans un volume différentiel dV et dans la plage différentielle d'énergie dE , en régime permanent (statique), s'exprime alors par l'équation suivante,

$$R_{ij}(r, E_n) = \Sigma_{ij}(r, E_n) \phi(r, E_n) dV dE_n, (2.7)$$

où $\phi(r, E_n)$ correspond au flux neutronique scalaire ayant pour unités $\text{n/cm}^2/\text{s}$.

En prenant en compte la densité de probabilité en énergie de la section efficace macroscopique et la densité de population du flux scalaire (Henry, 1975, De Soete et al, 1972) le taux intégré de la réaction i par cm^3 par s est alors obtenu de la façon suivante,

$$R_{ij}(r) = \int \Sigma_{ij}(r, E_n) \phi(r, E_n) dE_n. (2.8)$$

2.7 ATTÉNUATION DU FLUX NEUTRONIQUE

Au fur et à mesure que le flux neutronique (angulaire ou scalaire) interagit avec les noyaux du milieu, il diminue progressivement au cours de son parcours ds dans le milieu. Il y a donc une atténuation progressive de la densité de population neutronique et donc du flux neutronique avec la distance s .

Tout comme pour les flux, les sections efficaces peuvent être aussi dépendantes de la position, selon la constitution du milieu. Cependant, dans nos modèles, nous considérons que les sections efficaces sont indépendantes de la position, puisque les noyaux sont uniformément distribués.

Cependant, nous considérons que les sections efficaces sont dépendantes de l'énergie. Il est possible de déterminer l'expression mathématique décrivant cette atténuation en fonction du parcours des neutrons (Lewis et Miller, 1983), celle-ci s'écrit de la façon suivante,

$$\phi(s, E_n) = \phi(s = 0, E_n) e^{\left(-\sum_j \sigma_j(E_n) s \right)}, \quad (2.9)$$

où $\phi(s = 0, E_n)$ correspond au flux neutronique scalaire à $s = 0$.

Lorsqu'ils interagissent avec des noyaux légers, les neutrons thermiques donnent principalement des réactions (n, γ) ou diffusent dans le milieu (Reuss, 2003). Les sections efficaces microscopiques d'activation sont les sections efficaces microscopiques de capture neutronique radiative.

2.8 LA DÉPENDANCE EN ÉNERGIE DES SECTIONS EFFICACES

2.8.1 SECTION EFFICACE MICROSCOPIQUE DE DIFFUSION

Les sections efficaces microscopiques de diffusion élastique sont relativement constantes (indépendantes de l'énergie cinétique des neutrons) pour la plupart des modérateurs sur une grande plage d'énergie (Glasstone et Sesonske, 1994). Le ralentissement des neutrons est en majeure partie causé par les collisions élastiques de diffusion par le modérateur (H_2O). Le ralentissement des neutrons épithermiques et thermiques résulte en des spectres caractéristiques d'énergie de ces classes de neutrons.

La diffusion par les collisions inélastiques peut être ignorée pour les neutrons thermiques. (De Soete et *al*, 1972, Cohen, 1971, Lamarsh, 1972, Jelley, 1990).

2.8.2 SECTION EFFICACE MICROSCOPIQUE DE CAPTURE RADIATIVE DES NEUTRONS THERMIQUES

La formule de simple niveau de Breit-Wigner est généralement employée afin de calculer les sections efficaces microscopiques des réactions nucléaires entre les neutrons épithermiques et les noyaux. La caractéristique principale de la densité de probabilité en énergie de ces sections efficaces est la présence de pics de résonance. Cette formule a la forme suivante (Fröhner, 2000)

$$\sigma_{i,f} = \frac{\pi \lambda_p^2 \Gamma_i \Gamma_f}{(E - E_r)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (2.10)$$

Puisque la réaction nucléaire considérée est (n, γ) alors $i = n$ et $f = \gamma$.

Γ_i : Largeur partielle Γ_n (eV)

Γ_f : Largeur partielle Γ_γ (eV)

Γ : Largeur partielle totale (eV)

λ_p : Longueur d'onde de De Broglie des neutrons en fonction de leurs énergies cinétiques (cm)

E_n : Énergie cinétique des neutrons incidents (eV)

E_γ : Énergie de la résonance (eV)

2.8.2.1 DÉPENDANCE EN ÉNERGIE DES SECTIONS EFFICACES MICROSCOPIQUES D'ABSORPTION DES NEUTRONS THERMIQUES

La largeur totale (en MeV) du 1^{er} pic de résonance pour l'absorption de la plupart des éléments est généralement beaucoup plus élevée que l'écart d'énergie en eV du 1^{er} terme du dénominateur. Cela nous permet de poser que

$$(E - E_i)^2 \ll \frac{1}{4} \Gamma_i^2. \quad (2.11)$$

Il est alors possible de dériver la corrélation suivante pour la section efficace microscopique de capture des neutrons thermiques (Lamarsh, 1972, Bussac et Reuss, 1985),

$$\sigma_{a_j}(E_n) = \frac{C_j}{\sqrt{E_n}}, \quad (2.12)$$

à partir de la formule de Breit-Wigner (2.10).

En inspectant cette dernière expression, nous pouvons constater que lorsque E_n s'approche de zéro, la section efficace microscopique de capture neutronique tend vers l'infini, ce qui est physiquement impossible. Nous pouvons améliorer la précision de la formule déterminant la section efficace microscopique de capture neutronique en ajoutant une constante à cette expression, qui devient donc,

$$\sigma_{a_j}(E_n) = \sigma_{a_{j_0}} + \frac{\sigma_{a_{j_1}}}{\sqrt{E_n}} \quad (2.13)$$

où $\sigma_{a_{j_0}}$ et $\sigma_{a_{j_1}}$ sont des constantes.

Nous avons calculé les coefficients $\sigma_{a_{j_0}}$ et $\sigma_{a_{j_1}}$ de plusieurs éléments par régressions logarithmiques (Baillargeon et al, 1975, Korn et Korn, 2000) à partir de données de capture radiative de la bibliothèque ENDF-B-VI (ENDF/B-VI DATA LIBRARIES, 2001). Le tableau 2.2 présente les coefficients ainsi obtenus.

Tableau 2.2 : Coefficients des sections efficaces microscopiques de capture radiative des neutrons thermiques, pour l'équation (2.13).

Numéro	Élément	A	$\sigma_{a_{j_0}}$ (cm ²)	$\sigma_{a_{j_1}}$ (cm ² √eV)
1	B	11	4,1780084 E-24	1,2097325 E-22
2	Na	23	-1,6188196 E-26	8,7410931 E-26
3	Al	27	8,483711218 E-30	3,3389086973 E-26
4	Cl	35	-7,6739656 E-26	5,2518432 E-24
5	Mn	55	-1,002166325 E-26	2,116639078 E-24
6	Fe	56	-3,634278122 E-27	4,113779296 E-25
7	Co	59	-1,544024840E-24	0,2645550955E-23
8	Cu	63	6,012412170 E-24	1,936033157 E-27
9	Nb	93	-5,409032566 E-28	5,721470093 E-26
10	Au	197	1,487422055 E-24	1,569131128 E-23

Les figures 2.3 à 2.5 présentent des courbes de fonction d'énergie des sections efficaces microscopiques des sept (7) éléments étudiés. Dans la figure 2.3, nous constatons que la fonction d'énergie de la section efficace du niobium est légèrement

plus élevée que celle de l'aluminium, alors que le niobium a une masse atomique (Parrington et *al*, 1996) intermédiaire (92,905038 g/mole) supérieure à celle de l'aluminium (26,9815384 g/mole).

Cependant un autre élément de masse intermédiaire, le zirconium (91,224 g/mole) a lui aussi une section efficace microscopique de capture neutronique très faible (Parrington et *al*, 1996, ENDF/B-VI Data Libraries, 2001). Ceci est attribuable au nombre de neutrons (50) qui est rapproché d'un des nombres magiques 2, 6, 8, 14, 20, 28, 50, 82, 126 (Lamarsh, 1972). En effet, pour le zirconium, son isotope le plus abondant est le Zr-90 qui contient $Z=40$ protons, $A-Z=50$ neutrons et $A=90$ nucléons.

Section efficace microscopique d'absorption neutronique pour Al et Nb, données de ENDF/B-VI

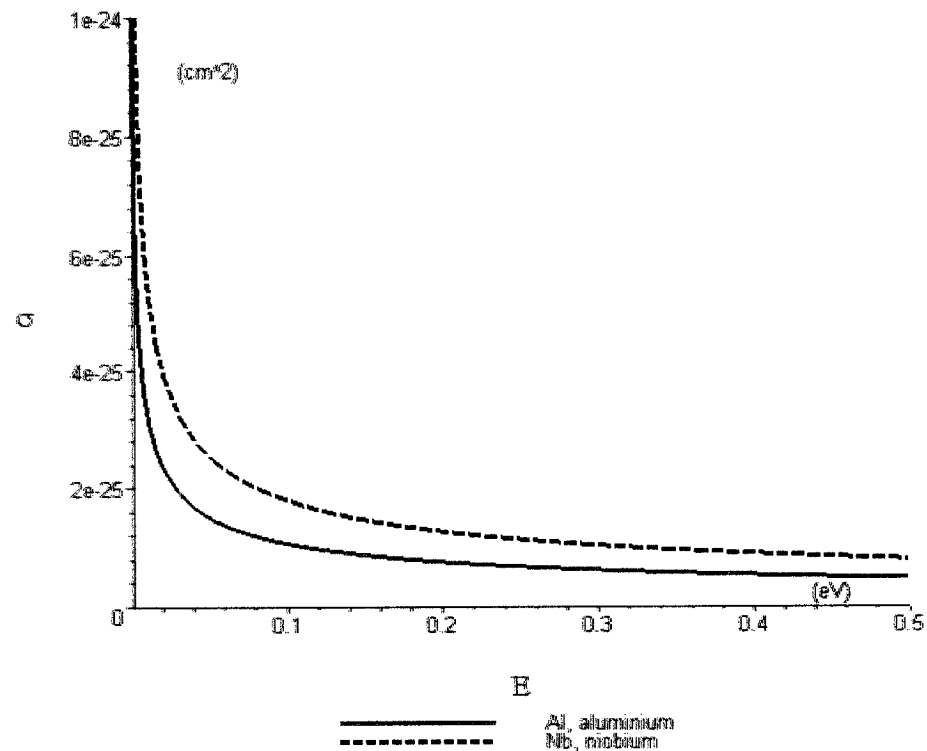


Figure 2.3 : Graphique de la section efficace microscopique de capture neutronique radiative (cm^2) en fonction de l'énergie cinétique des neutrons (eV), pour l'aluminium et le niobium.

Section efficace microscopique d'absorption neutronique : Mn, Fe, Cu, données ENDF/B-VI

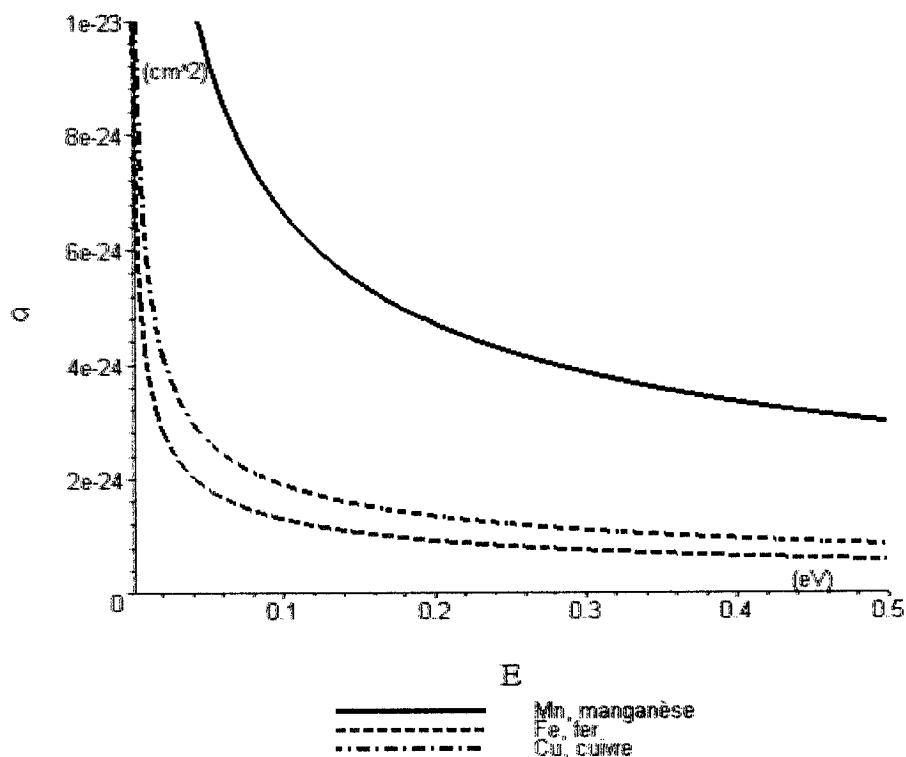


Figure 2.4 : Graphique de la section efficace microscopique de capture neutronique radiative (cm^2) en fonction de l'énergie cinétique des neutrons (eV), pour le manganèse, le fer et le cuivre. Même si le nombre de nucléons du manganèse (55) est inférieur à ceux du fer (56) et du cuivre (63), la distribution en énergie de la section efficace de capture neutronique du manganèse est nettement supérieure à celles du fer et du cuivre.

Section efficace microscopique d'absorption neutronique pour Co,Au données ENDF/B-VI

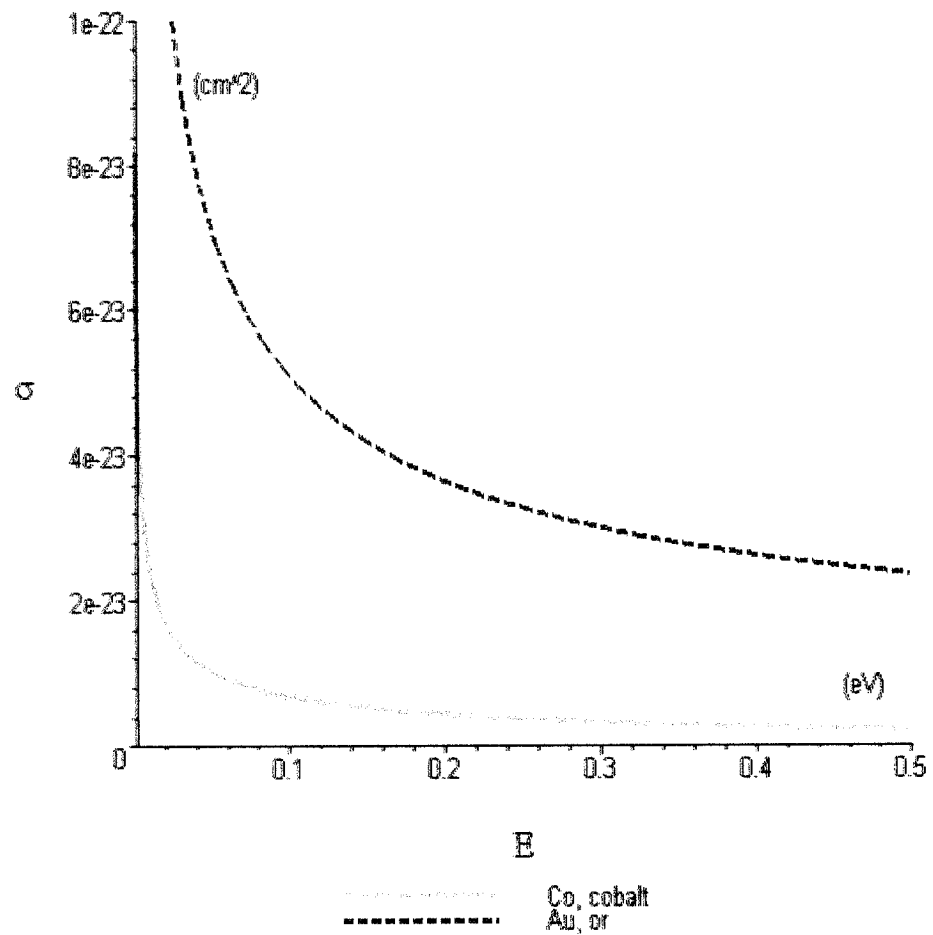


Figure 2.5 : Graphique de la section efficace microscopique de capture neutronique radiative (cm^2) en fonction de l'énergie cinétique des neutrons (eV), pour le cobalt et l'or. Puisque l'or ($^{197}_{79}\text{Au}$) est un noyau nettement plus lourd que le cobalt ($^{59}_{27}\text{Co}$), sa distribution en énergie est également nettement supérieure à celle du cobalt et des autres noyaux étudiés.

Puisque la section efficace microscopique d'absorption neutronique des éléments est inversement proportionnelle à la racine carrée de l'énergie cinétique des neutrons pour de faibles énergies, le taux de réaction d'absorption neutronique est majoré pour les neutrons de faibles énergies cinétiques.

2.9 ACTIVITÉ ET ACTIVITÉ À SATURATION

2.9.1 ACTIVITÉ

Lorsqu'un noyau est activé suite à une collision inélastique avec un neutron ou une capture de ce dernier, il est susceptible de passer à un état quantique plus stable par l'émission d'un ou quelques rayons gamma. L'expression mathématique de l'activité d'un groupe de noyaux activés est égale au produit du taux de désintégration nucléaire λ_j et du nombre de noyaux N_j . Elle prend donc la forme suivante (Knoll, 2000) :

$$A_j = \lambda_j N_j .(2.14)$$

2.9.2 ACTIVITÉ À SATURATION

L'activité à saturation est l'activité d'un corps ayant atteint l'équilibre entre le taux de formation des noyaux activés et le taux de désintégration de ces noyaux. Puisque les temps de désintégration des noyaux varient, il suffit de déterminer cette activité après un temps d'irradiation significativement plus élevé que la demi-vie des noyaux activés (environ 3 à 5 fois la demie-vie). Puisque la variation dans le temps du nombre de noyaux j est égale à la différence entre le taux de formation des noyaux j et leur taux de désintégration ou encore l'activité du noyau j , la variation dans le temps s'exprime (Vukadin, (1991, 1994)) par l'expression suivante,

$$\frac{d}{dt} N_j(t) = R_{i_j}(t) - A_j(t) , (2.15)$$

ou encore,

$$\frac{d}{dt} N_j(t) = N_i(t) \sigma_{a_i} \phi(r) - \lambda_j N_j(t) , (2.16)$$

en considérant que la réaction de formation du noyau j est une réaction de capture radiative (réaction d'absorption neutronique) du noyau i .

Par définition, l'activité à saturation signifie que le taux de formation du noyau j est égal à son taux de désintégration ou encore,

$$\frac{d}{dt} N_j(t) = 0 \quad (2.17)$$

$$\text{et } R_{a_{ij}} = A_{j_{\infty}} \quad (2.18)$$

En supposant une distribution spatiale uniforme des noyaux et des neutrons et une dilution infinie des noyaux absorbants, cette activité à saturation s'exprime alors de la façon suivante (De Soete *al*, 1972, Knoll, 2000, L'Annunziata, 1998),

$$A_{j_{\infty}} = \sum_{a_i} \phi(r) \quad (2.19)$$

En régime permanent (stationnaire), la densité de population neutronique $n(r, \Omega, E_n)$ ou le flux neutronique scalaire peuvent être connus par l'activation d'un noyau de référence de faible concentration ou de faible masse, pour lequel nous pouvons mesurer l'activité neutronique induite par la détection des rayons gamma émis.

En effet, puisque nous pouvons calculer la section efficace macroscopique de capture neutronique radiative (d'activation), à partir de la masse de l'élément composé des noyaux j , nous pouvons également calculer le flux neutronique scalaire en supposant que l'irradiation a été suffisamment longue pour obtenir l'activité à saturation. Dans ce cas, (De Soete et *al*, 1972, Perdijon, 1967, Blanc, 1999, L'Annunziata, 1998, Knoll, 2000) le flux neutronique scalaire est obtenu de l'expression suivante,

$$\phi(r, E_n) = \frac{A_{(n, \gamma)_j}}{\Sigma_{(n, \gamma)_j}(E_n)} \quad (2.20)$$

Le flux neutronique scalaire en un point précis d'un réacteur est généralement connu avec une précision absolue de 5%. St-Pierre et Kennedy (St-Pierre et Kennedy,

2004) mesurèrent la distribution spatiale du flux scalaire des neutrons thermiques et épithermiques, sans effet de perturbation du flux, dans les sites d'irradiation internes.

2.10 L'EFFET DOPPLER

Dans ce projet, l'effet Doppler est négligé. En effet pour les sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique dont la dépendance en énergie est $\frac{1}{\sqrt{E}}$ pour les neutrons thermiques, il n'y a aucun effet Doppler. (Hébert, 2006)

2.11 L'ÉQUATION DE TRANSPORT NEUTRONIQUE

La théorie du transport neutronique repose essentiellement sur l'équation de transport dérivée par Boltzmann dans le cadre de ses études sur la physique statistique et la thermodynamique. L'équation de Boltzmann fut plus particulièrement dérivée pour l'étude de la cinétique des gaz (Harris, 2004, Chapman et Cowling, 1964, Kirkwood et al, 1958, Terletskii, 1975, Chandrasekhar, 1950).

2.11.1 CONDITIONS NÉCESSAIRES À L'ÉQUATION DE BOLTZMANN

Cette même équation peut être utilisée pour le comportement dynamique d'un groupe de neutrons à condition de respecter certaines conditions qui assimilent le comportement neutronique à celui d'un gaz.

Les hypothèses ou prémisses sous-jacentes à l'utilisation de l'équation de transport pour représenter le comportement dynamique des neutrons sont présentées dans Harris, Henry et Lewis et Miller (Harris, 2004, Henry, 1975, Lewis et Miller, 1993).

2.11.2 L'ÉQUATION DE TRANSPORT DES NEUTRONS

Voici l'équation de transport neutronique de Boltzmann sous sa forme différentielle (Lewis et Miller, 1993),

$$\frac{\partial \psi(r, \Omega, E_n, t)}{\partial t} + (\Omega \cdot grad) \psi(r, \Omega, E_n, t) + \frac{\Sigma_t(r, E_n) \psi(r, \Omega, E_n, t)}{V} = q(r, \Omega, E, t) \quad (2.21)$$

Il faut noter que ces auteurs définissent la section efficace macroscopique comme étant le produit du nombre de noyaux par cm^3 et la section efficace microscopique. Lorsque cette dernière est exprimée en cm^2 , alors la section efficace macroscopique a pour unités les cm^{-1} . Notre définition de la section efficace macroscopique est décrite par l'équation (2.4). Par conséquent nous divisons les sections efficaces macroscopiques des équations de transport neutronique par V , afin d'être en accord avec la définition de Lewis et Miller.

Le deuxième terme est la dérivée directionnelle, elle peut s'exprimer sous la forme d'un opérateur vectoriel comme suit,

$$\frac{d}{ds} = \Omega \cdot grad, \quad (2.22)$$

où s représente la distance parcourue par la particule dans la direction Ω .

Ici, $q(r, \Omega, E_n, t)$ représente les sources de neutrons, incluant les neutrons produits par la fission et les neutrons d'énergie E à la position r_p se déplaçant dans la direction Ω_p diffusés à l'énergie E_n à la position r se déplaçant dans la direction Ω . Le terme de source de neutrons est composé d'un terme de production de neutrons par fissions nucléaires et un autre terme de production par ralentissement des neutrons, comme suit,

$$q(r, \Omega, E_n, t) = \iint \left(\left(\sum_{j=1}^K \frac{\chi_j(E_n) v_j \Sigma_f(r, E)}{V} \right) + \frac{\Sigma_s(r, (\Omega_p) \cdot \Omega, E \rightarrow E_n)}{V} \right) \psi(r, \Omega_p, E, t) dE d\Omega_p, \quad (2.23)$$

v_j et $\chi_j(E_n)$ correspondent au nombre de neutrons produit par fission et au spectre des neutrons de fission du noyau fissile j respectivement. $\Sigma_s(r, (\Omega_p) \cdot \Omega, E \rightarrow E_n)$ et $\Sigma_f(r, E)$ représentent les sections efficaces macroscopiques de diffusion et de fission nucléaire respectivement.

Le premier terme de l'équation (2.21) contient la variable u qui représente la vitesse des neutrons. Dans le troisième terme de la même équation, V représente le volume du milieu et $\Sigma_t(r, E_n)$ est la section efficace macroscopique totale.

Afin de construire un modèle du site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke, nous limiterons notre étude au comportement statique des neutrons pour lequel nous avons besoin de l'équation de transport en régime permanent (stationnaire) ayant la forme suivante,

$$(\Omega \cdot \text{grad}) \psi(r, \Omega, E_n) + \frac{\Sigma_t(r, E_n) \psi(r, \Omega, E_n)}{V} = q(r, \Omega, E_n). \quad (2.24)$$

Dans un système de coordonnées cylindriques circulaires, l'application de l'opérateur d'advection à l'équation de transport résulte en la forme suivante (Lewis et Miller, 1993, Bell et Glasstone, 1970), en 2-D (ρ, ζ) nous avons (Lewis et Miller, 1993),

$$\begin{aligned}
& \frac{\mu \cos(\omega) \left(\left(\frac{\partial}{\partial \rho} \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right) \rho + \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right)}{\rho} \\
& - \frac{\mu \cos(\omega) \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) + \mu \sin(\omega) \left(\frac{\partial}{\partial \omega} \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right)}{\rho} \\
& + \xi \left(\frac{\partial}{\partial \zeta} \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right) + \frac{\Sigma_t(E_n) \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n)}{V} = q(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n)
\end{aligned}$$

, (2.25)

où μ , ξ et ω sont des variables angulaires associées à la direction Ω des neutrons.

La figure 2.6 présente un schéma détaillé du système de coordonnées cylindriques de même que des variables angulaires du vecteur de direction Ω .

2.11.3 SYSTÈME DE COORDONNÉES CYLINDRIQUES CIRCULAIRES

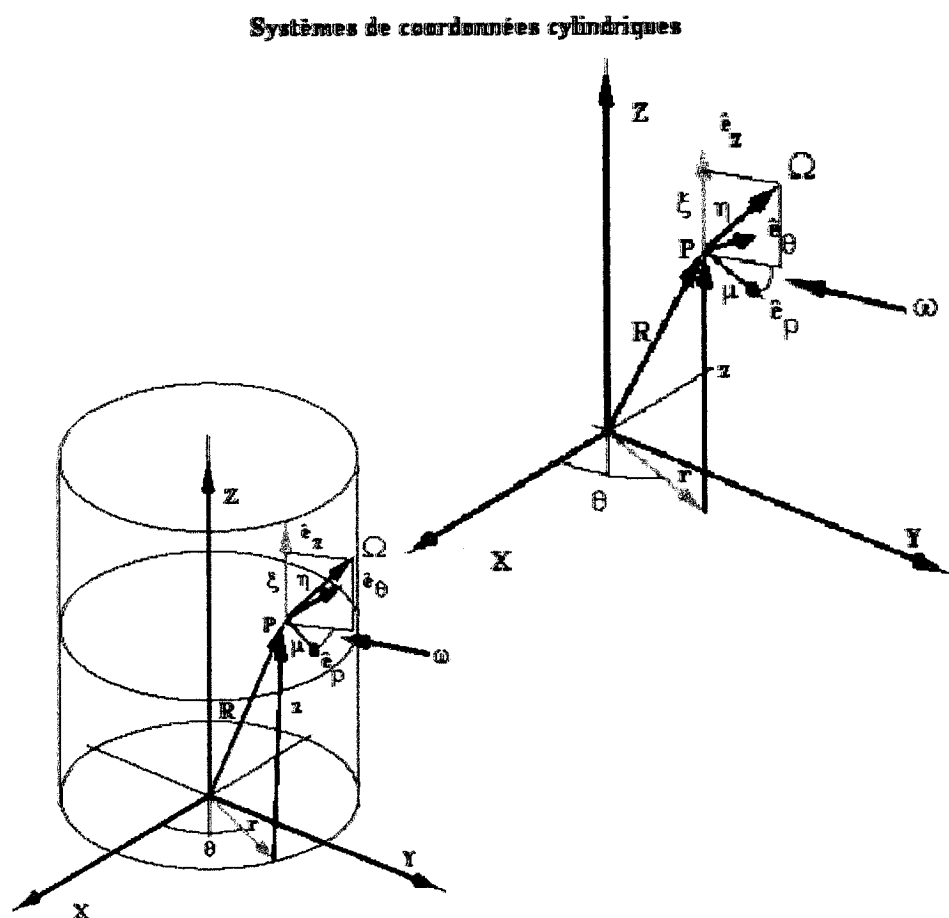


Figure 2.6 : Système des coordonnées et des variables angulaires du vecteur de la direction $\mathbf{\Omega}$, dans un système de coordonnées cylindriques circulaires. Le schéma cylindrique à gauche présente les coordonnées et les variables angulaires dans un échantillon. Le schéma de droite expose plus précisément les relations géométriques entre les coordonnées et les variables angulaires de la direction $\mathbf{\Omega}$. (Lewis et Miller, 1993)

Afin d'adapter l'équation de transport neutronique à la modélisation du flux neutronique dans un échantillon absorbant d'un site interne, les hypothèses raisonnables suivantes sont posées.

- a) La source des neutrons de fission n'est pas directement requise dans nos modèles. La source directe des neutrons de fission est remplacée par des conditions frontière appropriées. (Case, de Hoffman et Placzek, 1953)
- b) Le processus des collisions de diffusion des neutrons est isotrope pour des éléments intermédiaires et lourds, mais anisotrope pour les noyaux légers, en particulier les noyaux H et D (deutérium) dans le système du centre de masse (Hébert, 2005, Bussac et Reuss, 1985, Henry, 1975).
- c) Puisque, les échantillons sont spatialement homogènes, la densité de population des noyaux est invariable. Ainsi, les sections efficaces microscopiques de diffusion et d'absorption des neutrons épithermiques et thermiques sont indépendantes de la position.
- d) Les sections efficaces microscopiques de diffusion des neutrons épithermiques et thermiques varient peu avec l'énergie pour plusieurs éléments. Nous posons qu'elles sont indépendantes de E_n . (Bussac et Reuss, 1985)
- e) Puisque, nous posons que les sections efficaces microscopiques de diffusion pour les neutrons épithermiques et thermiques sont indépendantes de la position, de Ω et E_n pour plusieurs éléments considérés.
- f) La section efficace microscopique d'absorption est seulement fonction de l'énergie cinétique des neutrons.
- g) Puisque les sections efficaces microscopiques de diffusion ont des valeurs constantes pour les éléments étudiés et que les sections efficaces microscopiques d'absorption sont seulement fonction de l'énergie neutronique alors, les sections efficaces macroscopiques totales de

plusieurs éléments sont aussi seulement une fonction de l'énergie neutronique. L'expression suivante illustre cette conclusion.

$$\Sigma_t(E_n) = \Sigma_a(E_n) + \Sigma_s \quad (2.26)$$

- h) Lorsque les éléments concernés ont des sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique nettement plus élevées que leurs sections efficaces microscopiques de diffusion, alors les sections microscopiques totales sont approximativement égales aux sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique. L'énoncé précédent étant aussi applicable aux sections efficaces macroscopiques, l'expression suivante illustre cette conclusion,

$$\Sigma_t(E_n) = \Sigma_a(E_n) \quad (2.27)$$

- i) De plus, nous anticipons des flux neutroniques angulaires et scalaires faibles, en présence de noyaux absorbants.

En considérant que les sources des neutrons sont déterminées par les conditions frontières, nous pouvons poser le terme à droite de l'équation précédente à zéro avec $q(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) = 0$.

L'équation (2.24) devient donc,

$$(\Omega \cdot grad) \psi(r, \Omega, E_n) + \Sigma_a(E_n) \psi(r, \Omega, E_n) = 0 \quad (2.28)$$

avec les conditions frontière suivantes,

$$\psi(r = R, \Omega, E_n) = \psi_{nom} \quad (2.29)$$

Dès lors, nous pouvons obtenir la nouvelle équation en coordonnées cylindriques circulaires 2-D (ρ, ζ) , selon l'équation (2.28), mais ayant la forme de l'équation (2.25) avec $\Sigma_t(E_n)$ remplacé par $\Sigma_a(E_n)$. L'équation (2.25) ainsi modifiée devient alors,

$$\begin{aligned}
& \frac{\mu \cos(\omega) \left(\left(\frac{\partial}{\partial \rho} \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right) \rho + \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right)}{\rho} \\
& - \frac{\mu \cos(\omega) \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) + \mu \sin(\omega) \left(\frac{\partial}{\partial \omega} \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right)}{\rho} \\
& + \xi \left(\frac{\partial}{\partial \zeta} \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n) \right) + \frac{\sum_a(E_n) \psi(\rho, \zeta, \mu, \omega, E_n)}{V} = 0
\end{aligned} \quad (2.30)$$

pour laquelle la solution incomplète a la forme suivante

$$\begin{aligned}
& \psi(\rho, z, \xi, \omega, E_n) = \\
& {}_{-CI_F2} \left(\xi, \frac{1}{\sin(\omega) \rho}, E_n \right) e^{(\alpha(\rho - P))} e^{\left(- \frac{\text{csgn}(\cos(\omega)) \cos(\omega) \left(|\zeta| - \frac{H}{2} \right) \left(\mu \alpha + \frac{\sum_a(E_n)}{V} \right)}{\sqrt{1 - \xi^2}} \right)}
\end{aligned} \quad (2.31)$$

après avoir remplacé les variables ρ et ζ par les variables $\rho - P$ et $|\zeta| - \frac{H}{2}$ qui sont plus conviviales pour imposer les conditions frontières.

La fonction csgn est définie comme suit,

« Si $\text{Re}(x) > 0$ ou $\text{Re}(x) = 0$ et $\text{Im}(x) > 0$) alors $\text{csgn} = 1$ », (2.32)

« Si $\text{Re}(x) < 0$ ou $\text{Re}(x) = 0$ et $\text{Im}(x) < 0$) alors $\text{csgn} = -1$ », (2.33)

et les conditions frontières sont

$$\psi(\rho = P, \Omega, E_n) = \psi_{nom}, \quad (2.34)$$

$$\text{et } \psi\left(|\zeta| = \frac{H}{2}, \Omega, E_n\right) = \psi_{nom} \quad (2.35),$$

en considérant que $\zeta = 0$ se trouve à mi-hauteur du cylindre circulaire.

Il faut bien noter que nous avons supposé que $\Sigma_s \ll \Sigma_a$ et donc que $\Sigma_a \sim \Sigma_t$.

Toutefois, il aurait été préférable de poser ces conditions frontière à des distances extrapolées (correction de transport; Henry, 1975) afin de prendre en compte la dépression du flux hors de l'échantillon.

2.12 AUTOPROTECTION, DÉPRESSION DU FLUX ET PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE

La source d'irradiation neutronique d'un échantillon provient du cœur (près du centre) du réacteur. Les neutrons de la source se déplacent donc du centre du réacteur vers la surface externe de l'échantillon puis vers le centre de ce dernier (Kennedy, 1982, St-Pierre et Kennedy, 1994).

Le phénomène d'autoprotection peut être mis en évidence en irradiant une série d'échantillons contenant des poids variables d'un élément donné, à partir d'un poids extrêmement faible jusqu'à un poids très élevé. Nous pourrions alors constater que la masse prédite de cet élément dans l'échantillon tend à être de plus en plus faible que la masse réelle.

L'atténuation du flux neutronique par les noyaux absorbants de l'échantillon fait en sorte que l'activité spécifique (Activité par unité de volume) induite au centre de l'échantillon est inférieure à l'activité spécifique en périphérie (De Soete et *al*, 1972, Perdijon, 1967, Henry, 1975, Lewis et Miller, 1993). Il s'en suit que la densité de probabilité d'émissions de rayons gamma en réponse à l'activation (n, γ) des noyaux présents dans l'échantillon a le même comportement. Il en découle que le flux des rayons gamma reçus par le détecteur n'est pas représentatif d'un échantillon uniformément activé.

L'autoprotection est le résultat de cette atténuation du flux neutronique causée par les réactions d'absorption neutronique qui dépendent de l'amplitude et de la dépendance en énergie de la section efficace macroscopique d'absorption des neutrons et de la distribution spatiale du flux neutronique scalaire.

Lorsqu'un corps absorbant est placé dans un milieu dispersif, le flux neutronique est toujours perturbé à l'intérieur et à l'extérieur de l'échantillon. Près du corps absorbant, un gradient du flux neutronique existe de façon à ce que le flux neutronique décroisse vers l'échantillon. Cet effet s'appelle la dépression du flux. Cette dépression est due au fait que la proportion des neutrons absorbés est désormais indisponible pour diffuser à rebours vers le modérateur et ainsi maintenir un flux constant (de Soete et *al*, 1972). La combinaison de l'autoprotection à l'intérieur de l'échantillon et de la dépression du flux qui se manifeste à l'extérieur de celui-ci est la perturbation du flux.

En fait, la dépression du flux et donc la perturbation du flux résultent directement de l'autoprotection, car en absence de celle-ci, ni la dépression du flux ni la perturbation du flux ne peuvent exister.

Il en résulte que la détection des noyaux dont nous souhaitons déterminer la concentration ou la masse à l'aide de leur émission de rayons gamma est nécessairement réduite par rapport à un cas idéal d'activité spatialement uniforme.

La définition mathématique de l'autoprotection (De Soete, 1972) est établie par la relation suivante,

$$A_p = \frac{\phi_{\text{moy}}}{\phi_{CF}} \quad (2.36),$$

où ϕ_{moy} est le flux neutronique scalaire moyen dans l'échantillon (voir équation (2.1)), ϕ_{CF} est le flux neutronique scalaire aux frontières ou aux surfaces externes de l'échantillon ($\rho = P, |z| = \frac{H}{2}$) et A_p est l'autoprotection (De Soete et al, 1972).

Il est important de noter que lorsque l'autoprotection devient plus importante, l'atténuation du flux neutronique devient aussi plus importante à cause d'une section efficace macroscopique d'absorption neutronique élevée, cela signifie que le flux neutronique scalaire moyen de l'échantillon diminue de même que le rapport (2.45).

La définition mathématique de la dépression du flux neutronique est établie (De Soete et al, 1972) par la relation suivante,

$$D_p = \frac{\phi_{CF}}{\phi_L}, \quad (2.37)$$

où ϕ_L représente le flux neutronique scalaire loin de l'échantillon et de la zone de dépression du flux. Il s'agit donc du flux neutronique scalaire existant en absence de noyaux absorbants dans l'échantillon d'un site interne. Une autre approche pour déterminer L serait de choisir une distance extrapolée par une correction de transport où ϕ_L devrait être le flux scalaire nominal du réacteur Slowpoke.

La définition mathématique de la perturbation du flux neutronique est établie par la relation suivante,

$$P = \frac{\phi_{moy}}{\phi_L} \quad (2.38)$$

ou encore est le produit de l'autoprotection (2.36) et de la dépression du flux (2.37),

$$P = A_p D_p \quad (2.39)$$

En pratique, la perturbation du flux est obtenue par le rapport du flux neutronique scalaire moyen de l'échantillon à mesurer et le flux neutronique scalaire moyen d'un élément de référence ayant une section efficace microscopique très petite et qui est fortement dilué dans l'échantillon (Kennedy et Marcotte, 1984, Gonçalves et *al*, (2001, 2002, 2003), Salgado et *al*),

$$P = \frac{\phi_{moy_j}}{\phi_{moy_{réf}}} . (2.40)$$

Le flux neutronique scalaire moyen de référence est égal au flux neutronique scalaire nominal du réacteur Slowpoke, tel que représenté par l'équation suivante,

$$\phi_{moy_{réf}} = \phi_{nom} \quad (2.41).$$

La figure 2.7 présente la dépression du flux à proximité d'un échantillon absorbant.

Dépression du flux neutronique à proximité d'un corps absorbant

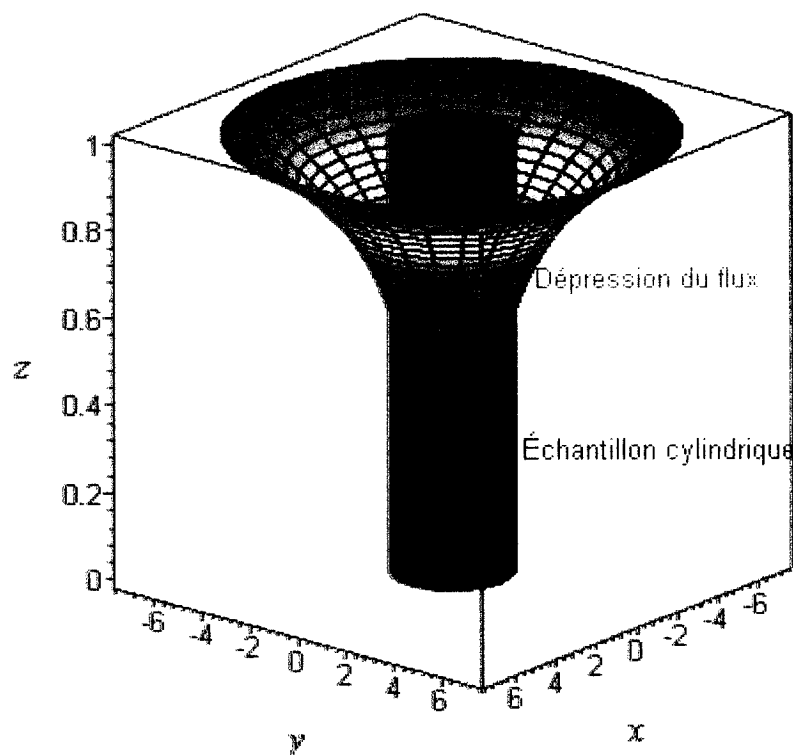


Figure 2.7 : Dépression du flux neutronique à proximité d'un échantillon cylindrique circulaire absorbant.

La figure 2.8 présente la perturbation du flux, causé par l'autoprotection dans l'échantillon et la dépression du flux à proximité de celui-ci.

Perturbation du flux neutronique à proximité et dans un corps absorbant

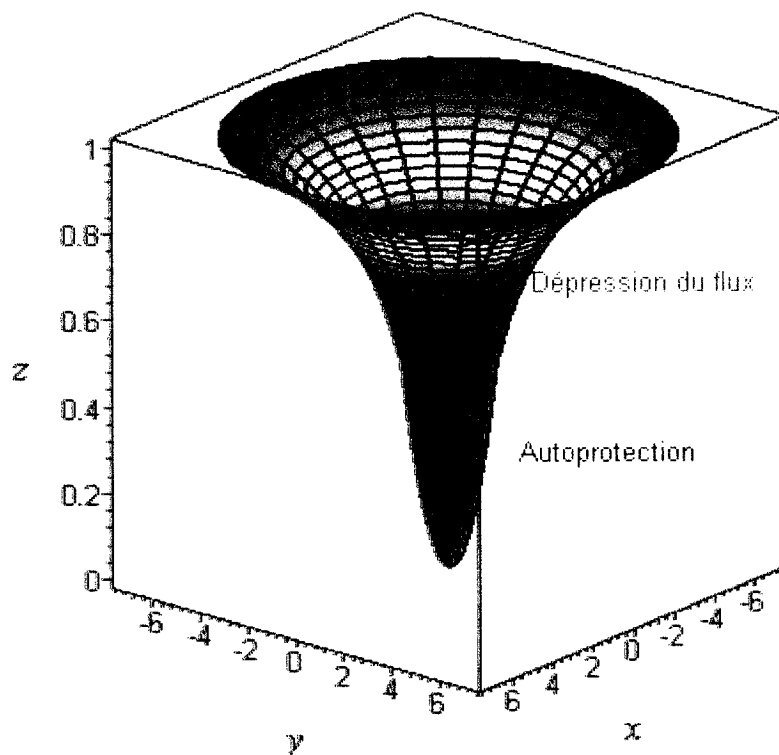


Figure 2.8 : Graphique de la perturbation du flux neutronique, à proximité et dans un échantillon cylindrique circulaire absorbant. Cette perturbation est l'effet combiné de l'autoprotection dans l'échantillon et la dépression du flux neutronique.

CHAPITRE 3

ANALYSE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE

3.1 HISTORIQUE

L'analyse par activation neutronique fut découverte en 1936 par Hevesy et Levi (Glascock, 2005). Ils constatèrent que certains éléments devenaient radioactifs après avoir été irradiés par une source de neutrons. Ils réalisèrent rapidement le potentiel de détection et de mesure de concentration offert par l'irradiation d'échantillon.

3.2 BUT

L'analyse par activation neutronique est une technique nucléaire pour identifier les éléments et en déterminer les concentrations dans un grand nombre de matériaux. Elle est caractérisée par l'irradiation d'un échantillon d'un matériau homogène par un flux neutronique élevé qui le rend radioactif (De Soete et *al*, 1972, Perdijon, 1967).

3.3 MÉTHODE

La masse et le volume d'un échantillon homogène d'un ou plusieurs éléments sont initialement déterminés avec précision. Ensuite, cet échantillon est irradié par un flux neutronique d'intensité connue provenant du coeur du réacteur. L'irradiation est alors suivie de la mesure du spectre d'énergie des rayons gamma émis par les noyaux activés dans un assemblage hors du réacteur.

Les isotopes radioactifs créés par cette irradiation émettent des rayons gamma dont les énergies caractéristiques pour chaque isotope permettent de les identifier, même à de très faibles concentrations.

La concentration d'un isotope est directement proportionnelle à la surface sous la courbe d'un pic de résonance dans le spectre d'énergie des rayons gamma mesuré par un

détecteur qui les absorbe. Les signaux du détecteur sont alors transmis à un analyseur multicanal qui les transmet ensuite à un ordinateur pour analyse numérique par un code spécialisé. L'analyse effectuée par ce code de calcul permet d'identifier et de déterminer les concentrations des isotopes présents et des éléments dont ils font partie (De Soete et *al*, 1972, L'Annunziata, 1998, Knoll, 2000).

Nous avons utilisé les résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984), afin de les analyser pour nous aider à constituer des modèles de transport neutronique d'un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke. Nous allons maintenant présenter les expériences réalisées, de même que les résultats obtenus.

3.3.1 PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS

Divers échantillons homogènes furent préparés en ajoutant dans une solution de 1 ml de sucre, des quantités variables (masses) d'éléments ayant des sections efficaces microscopiques de capture neutronique radiative élevées sous forme de poudres (Kennedy et Marcotte, 1984). Les éléments étudiés furent le lithium (Li), le bore (B), le chlore (Cl) et le cadmium (Cd).

De plus, une petite quantité de chlorure de sodium (NaCl) dont la masse fut mesurée avec précision était aussi ajoutée dans chacun des échantillons. Le sodium ($\text{Na}^{23} + n \rightarrow \text{Na}^{24} + \gamma$) servait alors de référence pour ces échantillons, puisque sa section efficace microscopique de capture neutronique radiative est très faible pour les énergies thermiques et épithermiques soit $\sigma_{a_{\text{Na}_{23}}}(E = 0.0253) = 0.40 \text{ b}$ et $I_{\text{rés}_{\text{Na}_{23}}} = 0.28 \text{ b}$, l'énergie étant en eV, (Parrington et *al*, 1996) et qu'il était fortement dilué.

Dans ces conditions, chacun des échantillons était alors scellé dans une capsule de polyéthylène d'environ 1,5 ml puis cette dernière était à son tour insérée et scellée dans une capsule de polyéthylène de 7 ml. L'emploi du polyéthylène, (St-Pierre,

Kennedy, 2004) composé de carbone, oxygène et hydrogène est peu susceptible de capturer des neutrons, à cause de leurs faibles sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique permettant ainsi à la très grande majorité de ceux-ci de n'activer que les noyaux de l'échantillon.

Un système de transport pneumatique (Kennedy, 1982) muni d'un système de régulation du temps déplaçait chaque échantillon dans le site d'irradiation no 1 puis hors de celui-ci vers l'assemblage de détection et mesure.

3.3.2 IRRADIATION DES ÉCHANTILLONS

La durée d'irradiation neutronique des échantillons était de 100 s. Lorsque cette limite était atteinte, l'échantillon était déplacé à proximité d'un détecteur de rayons gamma au germanium-lithium (Ge-Li). La figure 1.2 illustre un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke.

Lors de l'irradiation des échantillons, le flux neutronique scalaire était nominal et stable à environ $1,0E+12$ n /cm² /s.

3.3.3 DÉTECTION DES RAYONS GAMMA

L'activité de l'élément de référence (Na²⁴) de chacun des échantillons était également mesurée par le même détecteur (Ge-Li). Les valeurs d'activités obtenues de cet élément de référence en présence d'éléments fortement absorbants, en concentrations variables étaient alors comparées à l'activité d'un échantillon contenant l'élément de référence (Na²⁴) sans aucun des éléments fortement absorbants.

Ces valeurs d'activités permettaient de déterminer le flux neutronique scalaire moyen de chaque échantillon relativement au flux neutronique scalaire moyen de l'échantillon de référence.

Les rapports $\frac{\phi_{moy_j}}{\phi_{moy_{réf}}}$ (équation 2.51) ainsi obtenus représentent la perturbation

du flux neutronique (Kennedy et Marcotte, 1984), pour diverses concentrations de divers éléments absorbants et pour des volumes d'échantillon de 0.5, 1.0 et 1.5 ml.

3.3.4 ANALYSE DU SPECTRE D'ÉMISSION DES RAYONS GAMMA DE L'ÉCHANTILLON

Les détecteurs Ge-Li ont un haut pouvoir de résolution des pics d'intensité des rayons gamma selon leurs énergies. Le signal de sortie du détecteur est proportionnel à l'énergie des rayons gamma absorbée par ce dernier. L'utilisation d'un analyseur multicanal permet de distinguer autant d'intervalles d'énergie qu'il y a de canaux. Ceci permet donc de classer la quantité d'énergie absorbée dans chacun des intervalles d'énergie et ainsi former un spectre discret d'énergie.

Les figures 3.1 et 3.2 présentent la distribution en énergie des rayons gamma émis par l'or activé (^{198}Au) (Idaho National Laboratory, 2006,) suite à une irradiation neutronique. Il s'agit des données obtenues d'un analyseur multicanal en réponse à la détection des rayons gamma (Idaho National Laboratory, 2006, <http://www.inl.gov/gammaray/catalogs/catalogs.shtml>).

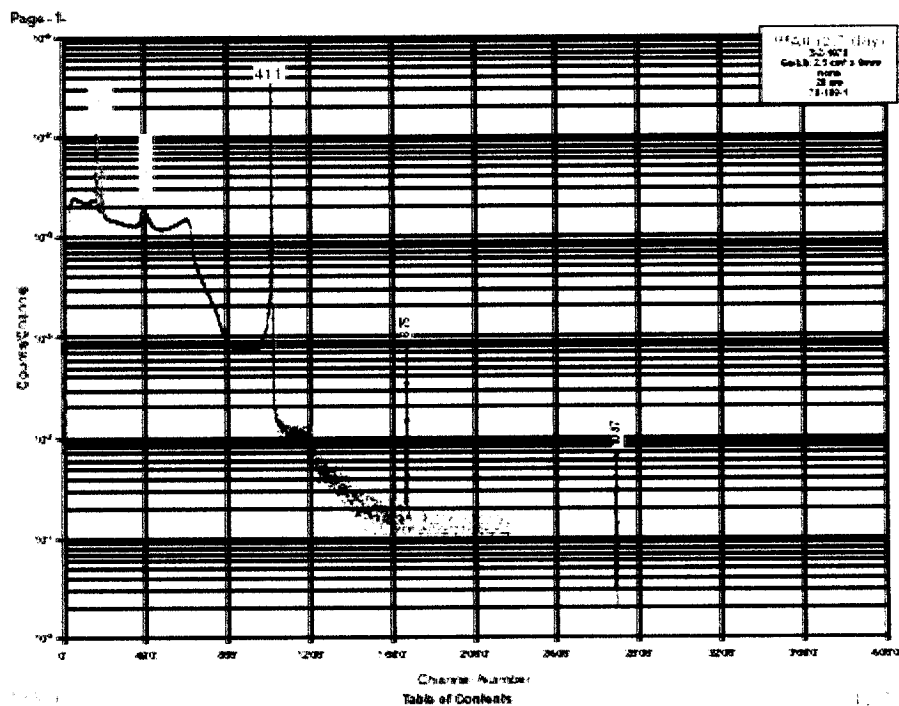


Figure 3.1 : Spectre des rayons gamma de l'or (^{198}Au), suite à l'irradiation neutronique de l'or naturel, 1re partie. L'analyseur multicanal comporte 4000 canaux qui sont représentés sur l'abscisse du graphique. L'ordonnée du graphique représente le nombre de coups par canal.

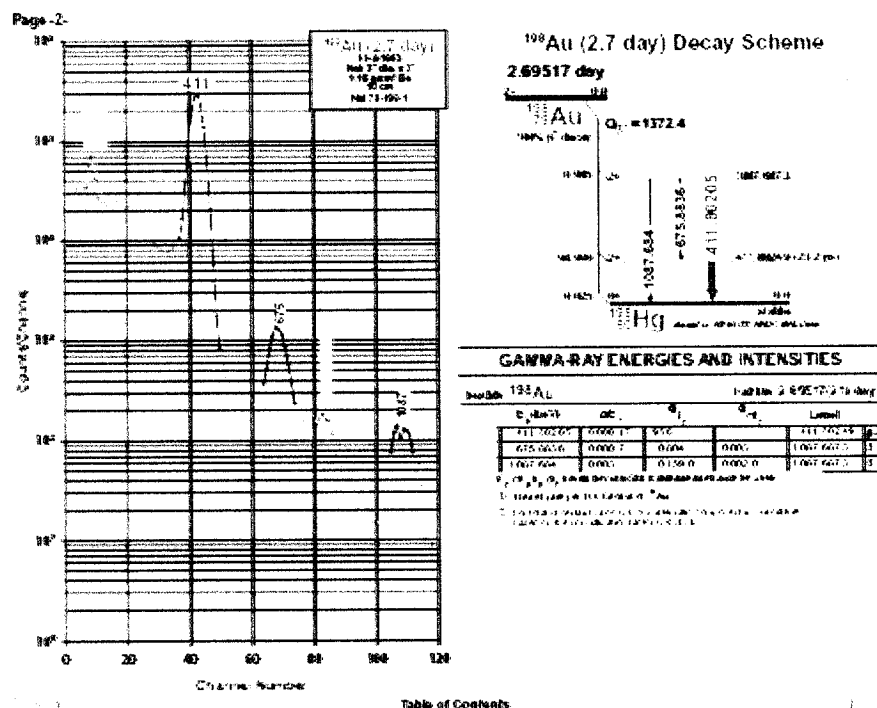


Figure 3.2 : Spectre des rayons gamma de l'or (^{198}Au), suite à l'irradiation neutronique de l'or naturel, 2^e partie. Le schéma à droite présente les modes d'émission de rayons gamma.

De 2000 à 4000 canaux sont requis d'un analyseur multicanal pour obtenir un tel pouvoir de résolution (Knoll, 2000, L'Annunziata, 1998, Corless, 1963, Jarzempa, 1999). C'est la complexité de la suite des résonances gamma qui nécessite l'utilisation d'un ordinateur et d'un code d'analyse approprié (De Soete et *al*, 1972, Knoll, 2000, L'Annunziata, 1998). Au laboratoire du réacteur Slowpoke de l'École Polytechnique de Montréal, le code EPAA accomplit ce rôle.

3.3.4.1 IDENTIFICATION DES ISOTOPES ET DES ÉLÉMENTS

La spectroscopie des rayons gamma permet d'identifier de nombreux éléments à la fois. Les noyaux activés par les réactions de capture neutronique radiative tendent à atteindre un état nucléaire fondamental plus stable en se départissant du surplus d'énergie par l'émission de photons de hautes énergies, des rayons gamma.

Puisque les états d'énergie initiaux et les états d'énergie intermédiaires et finaux sont caractéristiques des noyaux concernés (Jelley, 1990) et des réactions nucléaires impliquées, les émissions des rayons gamma obéissent nécessairement à un spectre d'énergie caractéristique pour un ensemble noyau-réaction nucléaire.

Par la suite, l'analyse spectrale de ces signaux permet d'identifier les noyaux émetteurs en comparant les spectres à ceux de tous les isotopes connus contenus dans une bibliothèque de données du code EPAA.

Dès que le processus d'identification des isotopes est complété, il devient possible de déduire l'identité des éléments en présence, en discernant dans les données disponibles, les abondances des isotopes susceptibles de composer un élément donné.

3.3.4.2 CALCUL DES CONCENTRATIONS ABSOLUES DES ISOTOPES ET DES ÉLÉMENTS

La résolution des mesures de concentration de la plupart des éléments par activation à l'aide d'un flux scalaire de neutrons thermiques d'environ $1,0\text{E}+12$, $\text{n/cm}^2/\text{s}$ est de l'ordre de $1,0\text{E}-09$ g à $1,0\text{E}-12$ g, selon les éléments concernés (L'Annunziata, 1998).

La surface des pics de résonance d'un élément donné dans un échantillon irradié est proportionnelle à l'activité de l'élément qui est à son tour proportionnelle à la masse de celui-ci (De Soete et *al*, 1972, Perdijon, 1967, L'Annunziata, 1998, Knoll, 2000). Dès lors, nous pouvons affirmer que le rapport des masses de l'élément donné et de l'élément de référence dilué (dont la masse est connue) est égal au rapport des activités respectives mesurées.

L'ajustement des plages discrètes d'énergie pour le calcul des surfaces des courbes de détection des rayons gamma associés aux pics de résonance est réalisé par la méthode des moindres carrés.

3.4 MESURES DES DIMENSIONS D'UNE CAPSULE DU SITE INTERNE D'IRRADIATION

Le tableau 3.1 présente les dimensions de la petite capsule de polyéthylène d'environ 1,5 ml dans laquelle l'échantillon homogène est inséré.

Tableau 3.1 : Dimensions d'une capsule pour un site d'irradiation interne (1)

Diamètre externe (cm)	1,200	Rayon externe (cm)	0,600
Diamètre interne (cm)	0,940	Rayon interne (cm)	0,470
Hauteur totale (cm)	2,350	Hauteur équivalente en cm calculée pour un volume cylindrique de 1,00 ml dont le rayon est de 0,470 cm	1,441
Hauteur à l'embouchure (cm)	2,100		
Distance entre le fond du cylindre et l'embouchure (cm)	1,810		

(1) Mesures faites à l'aide d'un vernier Helios extra, Gunzhardt, Germany; précision 0,05 mm ou encore 0,005 cm

Les micropipettes automatiques de 5 ml utilisées de nos jours dans les laboratoires (Laboratoire de chimie, centrale nucléaire Gentilly-2) ont une précision de 0,001 ml. Les pipettes antérieures ayant une marque de graduation à 1 ml ont une précision de 0,006 ml. Les pipettes graduées à 0,1 ml d'intervalle ont une précision de 0,05 ml. Il est probable que ce dernier type de pipette fut utilisé pour mesurer les volumes des échantillons de Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984). L'erreur relative pour un échantillon de 1 ml serait donc d'environ 0,05 ml.

Tableau 3.2 : Précision des pipettes.

Type de pipette	Précision (ml)
Pipette graduée à 0,1 ml d'intervalles	0,05
Pipette avec marque de graduation à 1 ml	0,006
Micropipette automatique récente de 5 ml	0,001

3.5 TABLEAU ET GRAPHIQUE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Pour chacun des volumes d'échantillons, les résultats expérimentaux de la perturbation du flux de tous les éléments analysés sont localisés sur une même courbe. Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984) conclurent que l'écart entre les résultats calculés et les résultats expérimentaux était principalement dû à la dépression du flux. De plus, une fraction importante de l'activité induite dans les éléments lourds par les réactions de capture neutronique radiative pourrait être due aux neutrons épithermiques, qui représentent une fraction de 5 % par rapport aux neutrons thermiques. Ces résultats sont présentés au tableau 3.3.

Tableau 3.3 : Résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et al, 1984)

$\Sigma_a = \frac{m \sigma}{M}$	Perturbation du flux, V=0,5 ml Note(1)	Perturbation du flux, V=1,0 ml Note(1)	Perturbation du flux, V=1,3 ml Note(1)
moles-b			
0,12		0,92	
0,26		0,86	
0,36		0,82	
0,52		0,77	
0,71		0,75	
0,87		0,66	0,72
1,16		0,58	
1,32		0,58	
1,49		0,58	
1,77	0,42	0,54	0,60
1,89		0,49	
2,20			0,55
2,23	0,35		
2,32		0,46	
2,67		0,43	
2,72			0,51
2,83		0,43	
3,40			0,46
3,45		0,40	
3,52	0,28	0,39	
4,44			0,40

$$(1) P = \frac{\phi_{moy}}{\phi_{L, nom}} \quad P = \frac{\phi_{moy}}{\phi_{réf}} \quad \text{lorsque } \Sigma_a (E_n) << 1 \text{ b}$$

La figure 3.3 présente un graphique des résultats expérimentaux de la perturbation du flux de Kennedy et Marcotte obtenus pour trois (3) séries de volumes d'échantillons de divers éléments.

Résultats expérimentaux : Perturbation du flux en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption

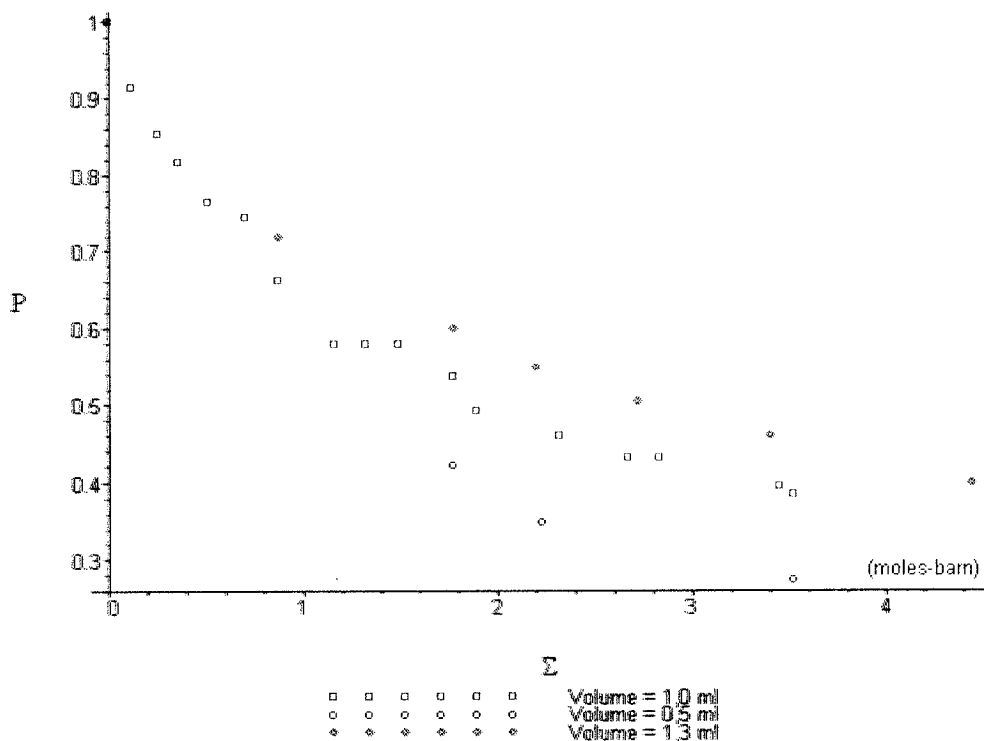


Figure 3.3 : Graphique de la perturbation du flux de divers éléments en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique Σ en moles-barn (Kennedy et Marcotte, 1984).

3.6 DISCUSSION DE L'IMPACT DU CHARGEMENT DE COMBUSTIBLE DU RÉACTEUR SLOWPOKE SUR LES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984) mesurèrent la perturbation du flux dans un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke de l'École Polytechnique de Montréal. Le réacteur en était alors à son chargement initial de combustible nucléaire fortement (90 %) enrichi en U-235.

Avec le deuxième chargement du combustible du réacteur en uranium légèrement enrichi en U-235 (20%), des précautions furent prises afin d'obtenir le même flux neutronique intégré nominal dans les sites internes que pour la première charge de combustible (Marleau, 1996, Marleau et al, 1997).

3.7 ÉVALUATION DE L'INCERTITUDE EXPÉRIMENTALE DE LA PERTURBATION DU FLUX

L'intention de cette démarche est de connaître l'ordre de grandeur des erreurs absolues et relatives des résultats des modèles mathématiques de transport neutronique et des valeurs expérimentales. Ainsi, nous sommes à même de juger de la représentativité mathématique de ces modèles par la précision probable des calculs et en s'assurant que leurs écarts par rapport aux mesures expérimentales sont du même ordre de grandeur que l'incertitude fortuite de ces mesures.

Afin d'analyser l'impact de l'incertitude du volume de l'échantillon sur l'évaluation de la perturbation du flux, des calculs de transport neutronique par la méthode des ordonnées discrètes pour des échantillons de 1,00 et 1,05 ml de chlore ont permis de déterminer un écart moyen de la perturbation du flux de $1,67\text{E-}03$, avec un écart type de $7,09\text{E-}04$. En considérant que l'erreur moyenne du volume mesuré des échantillons est d'environ 0,05 ml (tableau 3.2) et en supposant une valeur de perturbation du flux d'environ $P(\Sigma_a(E_n), V) \sim 1.0$, la variation absolue maximale de la perturbation du flux obtenue est donc de $0,00167 \text{ ml}^{-1}$.

3.7.1 CALCUL DES INCERTITUDES DE DIVERS PARAMÈTRES ET VARIABLES

Par définition, la variable indépendante de Kennedy et Marcotte, (Kennedy et Marcotte, 1984) Σ_a (2.6) a les unités moles-b, nous allons donc déterminer les erreurs absolues et relatives de cette section efficace macroscopique.

Pour ce faire, nous emploierons les formules de l'incertitude absolue et relative d'un produit, d'un quotient ou de toute autre forme de fonction (Tremblay et al, 1970). Il faut donc évaluer l'incertitude fortuite de la masse mesurée, de la section efficace de capture neutronique radiative et de la masse atomique.

En nous basant, sur deux balances au laboratoire de chimie de la centrale nucléaire de Gentilly-2, nous estimons que l'erreur absolue sur la masse mesurée est de l'ordre de $1\text{E-}05$ g ou encore de 1/100 mg, voir le tableau 3.4.

Tableau 3.4 : Précision absolue des balances du laboratoire de chimie à la centrale nucléaire de Gentilly-2.

Marque	Mettler Toledo	Mettler Toledo
Modèle	XS 250	AG 285
Plages	81 g, 220 g	81 g, 210 g
Écart-type	0,01 mg, 0,1 mg	0,01 mg, 0,1 mg

Le tableau 3.5 présente les incertitudes absolues et relatives des constantes et des fonctions (variables dépendantes) requises pour le calcul d'incertitudes de la perturbation du flux.

Tableau 3.5 : Incertitudes absolues et relatives de constantes et de fonctions requises pour le calcul de la perturbation du flux neutronique.

Constantes, fonctions	Incertitudes absolues	Incertitudes relatives	Références
Nombre d'Avogadro N_A (noyaux/mole)	$\Delta(N_A) = 0.1 \cdot 10^{17}$ (noyaux / mole)	$\frac{\Delta(N_A)}{N_A} = 0.1660540187 \cdot 10^{-7}$	(Parrington et al, 1996, Tuli, 2000)
Masse de cobalt-59 m (g) (1)	$\Delta(m) = 0.10 \cdot 10^{-5}$ (g)	$\frac{\Delta(m)}{m} = 0.25 \cdot 10^{-5}$	(Parrington et al, 1996, Tuli, 2000)
Section efficace microscopique d'absorption neutronique σ_a (b) (2)	$\Delta(\sigma_a) = 0.001$ (b)	$\frac{\Delta(\sigma_a)}{\sigma_a} = 0.0000263$	(Parrington et al, 1996, Tuli, 2000)
Masse atomique M (g) (3)	$\Delta(M) = 0.1 \cdot 10^{-5}$ (g)	$\frac{\Delta(M)}{M} = 0.169 \cdot 10^{-7}$	(Tuli, 2000)
Section efficace macroscopique d'absorption neutronique Σ_a (moles-b)	$\Delta(\Sigma_a) = 0.00202$ (moles-b) (4)	$\frac{\Delta(\Sigma_a)}{\Sigma_a} = 0.0000288$ (5)	(Tremblay et al, 1970)

(1) 2,5 g de cobalt-59

(2) = 38,0 b à 0,0253 eV

(3) = 58,933200 g / mole (cobalt-59)

$$(4) \Delta(\Sigma_a) = \Sigma_a \left(\frac{\Delta(m)}{m} + \frac{\Delta(\sigma_a)}{\sigma_a} + \frac{\Delta(M)}{M} \right)$$

$$(5) \frac{\Delta(\Sigma_a)}{\Sigma_a} = \frac{\Delta(m)}{m} + \frac{\Delta(\sigma_a)}{\sigma_a} + \frac{\Delta(M)}{M}$$

D'autres sources possibles d'erreur existent, telles que l'erreur de la durée de l'irradiation, l'erreur de la grandeur du flux neutronique, d'environ 5 % (St-Pierre et *al*, 2004), l'erreur de la mesure du spectre gamma de l'échantillon activé, l'erreur de comptage ou d'analyse des signaux du détecteur et possiblement d'autres sources d'erreurs.

L'erreur de l'analyse du signal de sortie du détecteur peut être décomposée comme suit : erreur reliée à la géométrie de la détection est d'environ 1 %, alors que celle due à la dérive du signal électronique est de 0,3 % (De Soete et *al*, 1972).

3.7.2 RÉSULTATS DU CALCUL DES D'INCERTITUDES DES DIMENSIONS DES SURFACES ET DES VOLUMES DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Le tableau 3.6 présente les erreurs absolues et relatives des dimensions R et H de même que celles des volumes des premières capsules cylindriques circulaires droites contenant les échantillons.

Tableau 3.6 : Impact des Incertitudes absolues et relatives des dimensions R et H sur V.

	V=0,5 ml	V=1,0 ml	V=1,3 ml
H (cm)	0,720	1,441	1,873
$\Delta(H)$ (cm)	5,0E-05	5,0E-05	5,0E-05
$\frac{\Delta(V)}{V}$	2,82E-04 (2)	1,50E-05/2,47E-04 (2)	2,39E-04 (2)

Note (1) : R=0,470 cm

Note (2) : Calcul basé sur $\frac{\partial}{\partial R} V(R, H) = 2 \pi R H$ $\frac{\partial}{\partial H} V(R, H) = \pi R^2$

3.7.3 CALCUL DE L'INCERTITUDE ABSOLUE DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE

Une équation représentant la perturbation du flux neutronique en fonction du volume de l'échantillon et de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique provient d'une dérivation heuristique qui nous donne une équation ayant la forme suivante,

$$P(V, \Sigma_a) = e^{(D_a(V) \Sigma_a)} I_0(D_b(V) \Sigma_a), \quad (3.1)$$

$$\text{avec } D_a(V) = c + dV \text{ et } D_b(V) = e + fV^2. \quad (3.2)$$

À l'aide de ces relations servant de modèle de référence, nous avons analysé l'ensemble des résultats expérimentaux réalisés par Kennedy et Marcotte (Kennedy et *al*, 1984) en réalisant des régressions non linéaires. L'analyse statistique de cette corrélation globale démontre qu'elle représente très bien (tableau 3.16) les résultats expérimentaux.

L'incertitude absolue de la perturbation du flux est équivalente à la valeur absolue de la différentielle totale de sa fonction,

$$\Delta(P(\Sigma_a, V)) = \left| \frac{\partial}{\partial V} P(\Sigma_a, V) \right| dV + \left| \frac{\partial}{\partial \Sigma_a} P(\Sigma_a, V) \right| d\Sigma_a. \quad (3.3)$$

Après avoir évalué les valeurs des dérivées partielles, nous les substituons dans l'équation précédente (3.3) de la différentielle totale, pour obtenir,

$$\begin{aligned} \Delta(P(V, \Sigma_a)) = & \left| (c + dV) e^{((c + dV) \Sigma_a)} I_0((e + fV^2) \Sigma_a) + e^{((c + dV) \Sigma_a)} I_1((e + fV^2) \Sigma_a) (e + fV^2) \right| d\Sigma_a \\ & + \left| d\Sigma_a e^{((c + dV) \Sigma_a)} I_0((e + fV^2) \Sigma_a) + 2 e^{((c + dV) \Sigma_a)} I_1((e + fV^2) \Sigma_a) fV \Sigma_a \right| dV \\ & . \quad (3.4) \end{aligned}$$

En substituant les valeurs numériques des variables, des paramètres et des coefficients c, d, e, et f (tableaux 3.10 et 3.11) dans l'équation précédente (3.4), nous obtenons l'erreur absolue et l'erreur relative basées sur un volume de 1,0 ml et une valeur médiane de la plage de perturbation de 0,5 ($P = 0,5$),

$$\Delta(P) = 0.000462 \text{ et } \frac{\Delta(P)}{P} = 0.000924, \text{ ou } 0.1 \%. \quad (3.5)$$

Le tableau 3.7 présente les erreurs relatives et absolues du volume V , de Σ_a et de la perturbation du flux, P .

Tableau 3.7 : Incertitudes absolues et relatives sur V , Σ_a et P

Erreurs	V=0,5 ml	V=1,0 ml	V=1,3 ml
$\frac{\Delta(V)}{V}$	2,82E-04 (3)	2,47E-04 (3)	2,39E-04 (3)
$\Delta(\Sigma_a)$	2,0E-03	2,0E-03	2,0E-03
$\frac{\Delta(P)}{P}$	8,7E-04 (2)	9,2E-04 (2)	9,6E-04 (2)

Note (1) : $\Sigma_a = 2.0$ moles-b, $P = 0.50$

Note (2) : basé sur les dérivées partielles de la corrélation globale

Note (3) : basé sur les calculs de $\frac{\partial}{\partial R} V(R, H)$ ou $\frac{\partial}{\partial H} V(R, H)$

3.7.4 CALCUL DES SURFACES DELIMITANT LE DOMAINE D'INCERTITUDE DE LA PERTURBATION DE FLUX

Nous posons les incertitudes relatives $\frac{\Delta(m)}{m}$, $\frac{\Delta(\sigma_a)}{\sigma_a}$ et $\frac{\Delta(M)}{M}$ constantes, afin

de simplifier le calcul d'incertitude. Bien que ces valeurs varient d'une concentration à

l'autre et d'un élément à l'autre, nous considérons que ces changements sont relativement faibles.

La surface de de la perturbation de flux est donc localisée à l'intérieur du volume différentiel $P-dP$ et $P+dP$ dans l'espace de phases (Σ_a, V) avec une précision du premier ordre. La figure 3.4 présente les points expérimentaux de la perturbation du flux avec un échantillon de 1,0 ml en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique, la courbe de corrélation obtenue par régressions non linéaires de même que les courbes d'incertitudes de premier ordre $P+dP$ et $P-dP$.

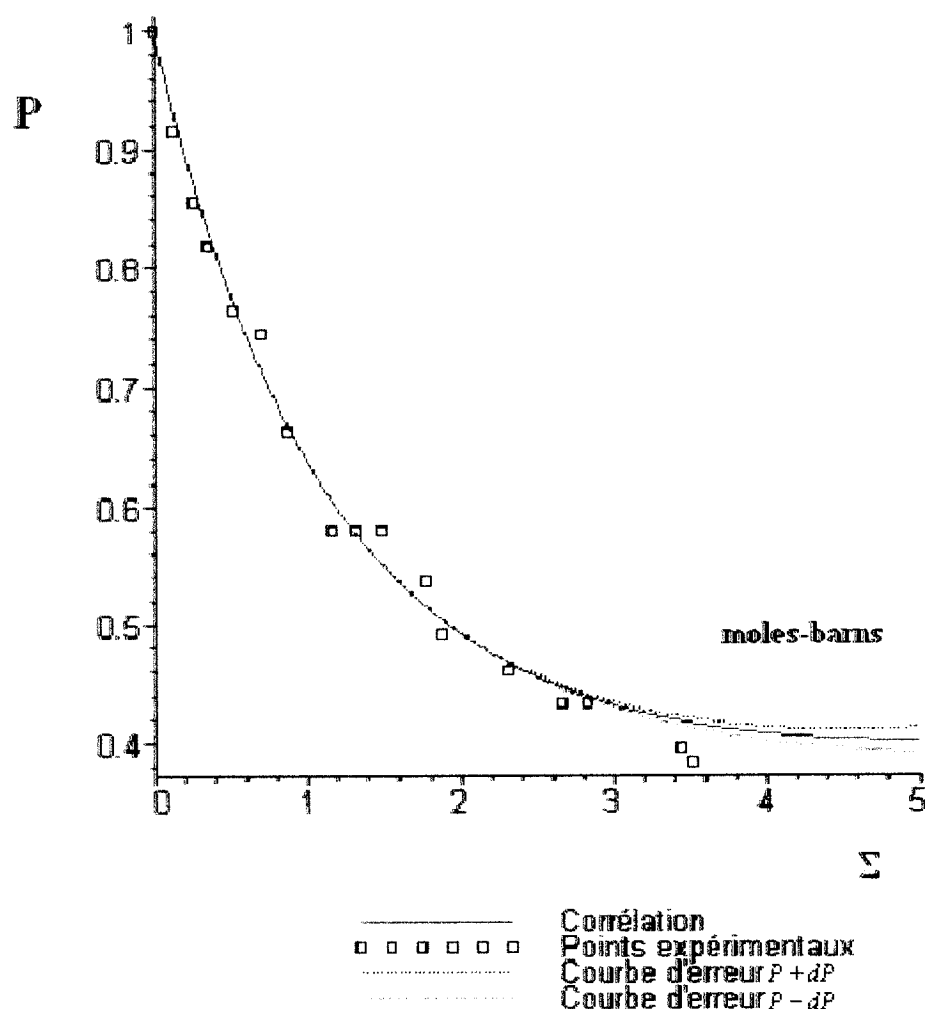


Figure 3.4 : Graphique des points expérimentaux de la perturbation du flux en fonction de Σ (moles-barns) pour $V=1,0$ ml, de la corrélation et des courbes limites d'erreurs fortuites basées sur le calcul d'erreurs.

Nous constatons que les écarts entre la courbe de corrélation et les courbes limites $P-dP$ et $P+dP$ sont extrêmement faibles de $\Sigma = 0$, à environ $\Sigma = 3$. À partir de cette valeur de section efficace macroscopique d'absorption neutronique en moles-b, les écarts deviennent significatifs et croissants avec Σ .

Bien que l'analyse précédente nous fournit certaines informations sur les erreurs absolues et relatives, celles-ci ne sont pas liées uniquement au processus expérimental mis en oeuvre afin de mesurer la perturbation du flux, mais aussi au processus de régression non linéaire qui nous a donné une corrélation ayant des écarts faibles avec les résultats expérimentaux.

Ces courbes limites représentent donc en quelque sorte l'incertitude théorique de la corrélation des résultats expérimentaux et du processus d'évaluation numérique des modèles de transport neutronique, sans tenir compte des erreurs d'arrondissement, ni des erreurs innées de l'évaluation numérique par un ordinateur.

3.7.5 INCERTITUDE DES MESURES DE SPECTROMÉTRIE GAMMA

Afin de pouvoir estimer les erreurs absolues et relatives des résultats expérimentaux, il est nécessaire de pouvoir estimer la précision relative de l'activité mesurée obtenue par une chaîne de mesure de spectrométrie gamma. À cet effet, des résultats de calibration d'une telle chaîne, du laboratoire de chimie de la centrale nucléaire de Gentilly-2, durant l'année 2000 sont employés pour en estimer les deux formes d'erreurs.

L'analyse statistique d'un nombre élevé de mesures réparties pendant un an a pour avantage de prendre en compte une ou des dérives du signal de sortie de la chaîne de mesure et d'obtenir des résultats mesurés représentatifs.

Cette chaîne de mesure des rayons gamma comporte un détecteur au germanium. Le processus de calibration consiste à mesurer l'activité d'un échantillon standard, dont l'activité est connue avec une très grande précision. L'activité de l'échantillon est déterminée à partir de la détection des rayons gamma émis par cet échantillon. Par la

suite, chacune des activités mesurées est comparée à l'activité très précise de l'échantillon standard.

L'échantillon standard est une bouteille contenant de l'euprasiun-152 (Eu-152) ayant une activité de 5,6500 micros Ci. Les activités mesurées par la chaîne de mesure sont présentées dans le tableau 3.8.

Tableau 3.8 : Activités mesurées de la chaîne de mesure d'activité avec un échantillon standard (Eu-152, 5,6500 micros Ci)

[5.6709, 5.6801, 5.7383, 5.7061, 5.6906, 5.6667, 5.6549, 5.6932, 5.6583, 5.6871]
[5.7110, 5.7101, 5.6848, 5.6572, 5.7054, 5.6645, 5.6485, 5.6975, 5.6940, 5.6969]
[5.7105, 5.7060, 5.7011, 5.6913, 5.7038, 5.669, 5.6706, 5.7151, 5.6832, 5.7170]
[5.6813, 5.6941, 5.6167, 5.6545, 5.6884, 5.6229, 5.7096, 5.6738, 5.6986, 5.6595]
[5.6849, 5.6971, 5.6816, 5.6109, 5.6746, 5.6801, 5.6794, 5.6767, 5.6275, 5.7219]
[5.6086, 5.5877, 5.6007, 5.6807, 5.6840, 5.6779, 5.6630]

Le tableau 3.9 présente les résultats de l'analyse statistique de ces données. À partir de ces résultats, nous pouvons conclure que l'activité mesurée est de 5,67 +/- 0,04 micros Ci (ou μ Ci).

Tableau 3.9 : Résultats de l'analyse statistique des mesures de l'activité d'un échantillon standard d'Eu-152 (5,6500 micros Ci)

		Erreurs absolues		Erreurs relatives	
Nombre de mesures	67	Nombre de mesures	67	Nombre de mesures	67
Activité moyenne (micro Ci)	5,67	Erreur absolue moyenne	0,01999	Erreur relative moyenne	0,00353 (0,353%)
Écart type	0,0384	Écart type	0,03845	Écart type	0,00680

3.7.6 INCERTITUDE ABSOLUE DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE

À partir des équations (2.9) et (2.29), l'erreur absolue du flux scalaire moyen devient donc (Tremblay et *al*, 1970)

$$\Delta(\Phi_{moy}) = \Phi_{moy} \left(\frac{\Delta(M)}{M} + \frac{\Delta(A_\gamma)}{A_\gamma} + \frac{\Delta(\sigma)}{\sigma} + \frac{\Delta(m)}{m} \right) \quad (3.6)$$

Puisque la perturbation du flux est définie expérimentalement par l'expression (2.47), en substituant les incertitudes relatives des variables et des paramètres calculés précédemment dans l'équation de l'incertitude absolue de la perturbation de flux,

$$\Delta P(\Sigma_a, V) = P(\Sigma_a, V) \left(\frac{2 \Delta(M)}{M} + \frac{2 \Delta(A_\gamma)}{A_\gamma} + \frac{2 \Delta(\sigma_a)}{\sigma_a} + \frac{2 \Delta(m)}{m} \right) \quad (3.7),$$

celle-ci devient,

$$\Delta P(\Sigma_a, V) = 0.0137 P(\Sigma_a, V) \quad (3.8)$$

L'incertitude relative des résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et *al*, 1984), pour la perturbation du flux est donc de l'ordre d'environ 1,4 %. Cette valeur est en accord avec l'incertitude relative estimée de l'autoprotection calculée par Gonçalves et al (Gonçalves et *al*, 2001) qui est de l'ordre de 2 %. D'autres auteurs (Mo et *al*, 1987, Eastwood et *al*, 1962, Rossito et *al*, 1972, Mc Garry et *al*, 1986, Kennedy et *al*, 1984, Kumpf, 1986) citent des incertitudes relatives d'environ 2 à 3 %, pour des résultats expérimentaux d'autoprotection.

3.8 CARACTÈRE UNIVERSEL DES COURBES DE PERTURBATION DU FLUX EN FONCTION DE LA SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE D'ABSORPTION NEUTRONIQUE

La variable indépendante choisie pour corréler les résultats expérimentaux de la perturbation du flux était la section efficace macroscopique d'absorption neutronique en moles-b, équation (2.9).

Le premier avantage d'employer cette variable est que l'échelle de Σ_a est plus conviviale avec des valeurs de 1 à environ 5 pour les expériences réalisées et qu'elle est normalisée à 0.0253 eV.

Le second avantage est que la courbe obtenue est universelle, c'est-à-dire que pour un volume d'échantillon donné, toutes les concentrations de tous les éléments se retrouvent sur une courbe unique.

3.9 ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX DE KENNEDY ET MARCOTTE

Puisqu'un objectif important de ce projet consiste à représenter avec précision tous les résultats expérimentaux par une corrélation globale et d'en étendre la plage de validité, il faut envisager différentes combinaisons de fonctions.

La forme de la courbe reliant les points expérimentaux s'apparente bien au produit de la fonction exponentielle et de la fonction de Bessel modifiée $I_0(x)$ (Bowman, 1958, Abramowitz et Stegun, 1972, Korn et Korn, 2000, Nikiforov et al, 1983, Spiegel, 1968) qui représente la fonction radiale de la solution de l'équation de diffusion des neutrons.

Les fonctions exponentielles périodiques et les fonctions de Bessel modifiées sont d'ailleurs des fonctions harmoniques des systèmes cylindriques circulaires droits (Korn et Korn, 2000).

3.9.1 NOUVELLE APPROCHE GÉNÉRALE JUSTIFIANT UNE FORME D'EXPRESSION D'UNE SOLUTION DE L'ÉQUATION DE TRANSPORT NEUTRONIQUE POUR UN CYLINDRE FINI

Nous avons tenté d'établir et de justifier la forme de l'expression mathématique de la perturbation du flux à partir de considérations théoriques provenant de l'équation de transport neutronique.

Afin de simplifier la résolution du problème nous avons dérivé une expression heuristique de transport neutronique combinant la solution de l'équation de transport pour un cylindre fini, par la méthode des harmoniques sphériques (Davison, 1957) et les équations (2.31) à (2.35) décrivant une équation de transport dans laquelle nous

négligeons la section efficace macroscopique de diffusion par rapport à la section efficace macroscopique d'absorption neutronique.

D'ailleurs, quelle que soit la géométrie, il est toujours possible de traiter la dépendance du flux neutronique angulaire en ses variables angulaires par une expansion en fonctions harmoniques sphériques (Bell et Glasstone, 1970). Les fonctions harmoniques des surfaces sphériques sont les solutions de l'équation de Laplace en coordonnées sphériques tout comme les fonctions harmoniques d'un système de coordonnées sont les solutions de Laplace dans ce système de coordonnées (Korn et Korn, 2000).

La solution de l'équation de transport neutronique pour le flux angulaire, pour un cylindre fini, par la méthode des harmoniques sphériques (Davison, 1957, équation (12.46)) après les substitutions des expressions pour $\psi_0(r, z)$ (Davison, 1957, (12.43)), $\psi_{1,0}(r, z)$ et $\psi_{1,1}(r, z)$ (Davison, 1957, (12.45)), s'écrit comme suit,

$$\begin{aligned} \psi(r, z, \Omega) = & \frac{1}{4} \left[\left(\sum_{j=1}^{\frac{N}{2} + 1/2} A_j I_0 \left(\frac{\sqrt{v_j^2 + \omega^2} r}{l} \right) e^{\left(\frac{\omega z l}{l} \right)} \right) + 3 I \Omega_z e^{\left(\frac{\omega z l}{l} \right)} \right. \\ & \left. \left(\left(\sum_{j=1}^{\frac{N}{2} + 1/2} \frac{A_j G_1(v_j) \omega I_0 \left(\frac{\sqrt{v_j^2 + \omega^2} r}{l} \right)}{v_j} \right) + \left(\sum_{i=1}^{\frac{N}{2} - 1/2} B_i \sqrt{\beta_i^2 + \omega^2} I_0 \left(\frac{\sqrt{\beta_i^2 + \omega^2} r}{l} \right) \right) \right) \right] + \\ & 3 \Omega_r \cos(-\theta_p + \theta) e^{\left(\frac{\omega z l}{l} \right)} \\ & \left(\left(\sum_{j=1}^{\frac{N}{2} + 1/2} \frac{A_j G_1(v_j) \sqrt{v_j^2 + \omega^2} I_1 \left(\frac{\sqrt{v_j^2 + \omega^2} r}{l} \right)}{v_j} \right) + \left(\sum_{i=1}^{\frac{N}{2} - 1/2} B_i \omega I_1 \left(\frac{\sqrt{\beta_i^2 + \omega^2} r}{l} \right) \right) \right) \right] / \\ & \pi + (\text{autres . termes}) \end{aligned}$$

(3.9), avec les conditions frontière suivantes,

$$\psi_{nom_{Max}}\left(\rho = P, |\zeta| = \frac{H}{2}, \Omega, E_n\right) :=$$

$$\psi_P\left(\rho = P, |\zeta| = \frac{H}{2}, \Omega, E_n\right) = \psi_A\left(\rho = P, |\zeta| = \frac{H}{2}, \Omega, E_n\right) e^{(Da(V)\Sigma_a)} I_0(Db(V)\Sigma_a)$$

(3.10)

$$\text{et } \psi_D(\rho, \zeta, \Omega, E_n) = e^{(Da(V)\Sigma_a)} I_0(Db(V)\Sigma_a)$$

(3.11)

qui contient la fonction exponentielle et la fonction $I_0(x)$ du premier terme à droite de l'égalité de l'équation (3.9). L'équation (3.11) représente la fonction de dépression du flux neutronique hors de l'échantillon. $\psi_{nom_{Max}}$ est le flux angulaire nominal du réacteur Slowpoke pour lequel nous supposons un spectre d'énergie de Maxwell.

En fait, nous aurions dû localiser les conditions frontières au rayon extrapolé (distance extrapolée) par la correction de transport, P_{CF} (Bell et Glasstone, 1970, Lamarsh, 1972, Henry, 1975, Bussac et Reuss, 1985, Reuss, 2003) et aux extrémités verticales $\pm \frac{1}{2} H_{CF}$ de façon à mieux simuler les conditions frontières de la dépression du flux et de l'autoprotection. Pour ce faire, il nous aurait fallu distinguer deux ensembles de coordonnées pour imposer les conditions frontières, soit P et P_{CF} de même que $\pm \frac{H}{2}$ et $\pm \frac{1}{2} H_{CF}$.

Lors de simulations préliminaires par un modèle de diffusion neutronique, nous avons utilisé de telles conditions frontière à des distances extrapolées, mais lors du passage à des modèles de transport neutronique, ces distances extrapolées ne nous ont pas paru nécessaires.

Les variables et paramètres présents dans ces équations sont définis de la façon suivante,

A_j et B_i : Constantes d'intégration

$$c := \frac{\sum_i N_i (\sigma_{s_i}(E) + v_i \sigma_{f_i}(E))}{\sum_i N_i \sigma_{t_i}(E)} : \text{le nombre moyen de neutrons secondaires par}$$

collision

v_j : Racines de l'équation caractéristique de la matrice des coefficients (Davison, 1957, équation (10.7))

ω : Variable de la transformation de Fourier pour la variable z de $\psi_{n,m}(r, z)$

U_z : Composante selon l'axe des z du vecteur U , $U = u \Omega$ avec u la norme du vecteur U

U_r : Composante selon r du vecteur U

$$G_{n_j}(v_j) := (-1)^n \left[P_n\left(\frac{1}{v_j}\right) - \frac{\left(\sum_i N_i (\sigma_{s_i}(E) + v_i \sigma_{f_i}(E))\right) \left(Q_0\left(\frac{1}{v_j}\right) P_n\left(\frac{1}{v_j}\right) - Q_n\left(\frac{1}{v_j}\right)\right)}{\left(\sum_i N_i \sigma_{t_i}(E)\right) v_j} \right].$$

$G_0(v_j) = 1$: Fonction auxiliaire d'ordre 0

$G_1(v_j) = \frac{c-1}{v_j}$: Fonction auxiliaire d'ordre 1 provenant de la fonction auxiliaire

$G_{n_j}(v_j)$ qui est décrite ci-haut.

$\beta_i = \frac{\sqrt{21}}{3}$: Paramètre pour l'approximation P_3

$\beta_1 = \frac{\sqrt{75 + 10\sqrt{15}}}{5}$ et $\beta_2 = \frac{\sqrt{75 - 10\sqrt{15}}}{5}$: Racines positives de l'équation

$$1 - \frac{10}{11} \beta^2 + \frac{5}{33} \beta^4 = 0 \text{ pour l'approximation } P_5$$

$P_a(V)$: Fonction de V dans la fonction exponentielle de l'expression de perturbation

du flux

$P_b(V)$: Fonction de V dans la fonction modifiée de Bessel de l'expression de
perturbation du flux

$D_a(V)$: Fonction de V dans la fonction exponentielle de l'expression de la dépression
du flux

$D_b(V)$: Fonction de V dans la fonction modifiée de Bessel de l'expression de la
dépression du flux

$\psi_A(\rho, \zeta, \Omega, E_n)$: flux neutronique angulaire dans l'échantillon découlant de
l'autoprotection

$\psi_D(\rho, \zeta, \Omega, E_n)$: flux neutronique angulaire associé à la dépression du flux
neutronique

$\psi_P(\rho, \zeta, \Omega, E_n)$: flux neutronique angulaire associé à la perturbation du flux
neutronique

$\psi_{nom_{Max}}(\rho, \zeta, \Omega, E_n)$: flux neutronique angulaire nominal pour lequel nous supposons
un spectre d'énergie de Maxwell

Nous avons choisi d'utiliser une forme similaire pour l'expression du flux neutronique angulaire en employant les fonctions propres présentes dans les trois (3) premiers termes de l'équation (3.9) et dans la solution analytique incomplète (2.31) (les équations (2.31) à (2.33)) solutions de l'équation (2.30) et des conditions frontières (2.34) à (2.35) ou (3.10) et (3.11) en géométrie cylindrique circulaire droite.

En négligeant la fonction $-F_2\left(\xi, \frac{1}{\sin(\omega)\rho}, E_n\right)$, en la posant égale à 1, puis en posant $\xi = 0$ et donc $\mu = 1$ (figure 2.6) et finalement en supposant que $-CI = \psi_{nom_{Max}}(\rho, \zeta, \Omega, E_n) e^{(Da(V)\Sigma_a)} I_0(Db(V)\Sigma_a)$, nous obtenons alors,

$$\psi(\rho, \zeta, \Omega, E_n) = \psi_{nom_Max} \left(P, \frac{H}{2}, \Omega, E_n \right) e^{(D_a(V) \Sigma_a(E_n))} I_0(D_b(V) \Sigma_a(E_n)) e^{(\alpha(\rho - P))} e^{\left(-\text{csign}(\cos(\omega)) \cos(\omega) \left(|\zeta| - \frac{H}{2} \right) \left(\alpha + \frac{\Sigma_a(E_n)}{V} \right) \right)}$$

(3.12)

Le terme substitué à $_C1$ correspond au flux angulaire nominal de spectre maxwellien imposé aux frontières de l'échantillon et incluant la dépression du flux.

Puisque nous avons supposé que $\Sigma_a \gg \Sigma_s$, la partie de l'équation (3.12) qui contient les termes exponentiels provient d'une résolution d'une équation de transport neutronique pour laquelle, il n'y a pas de termes de diffusion, ce qui est non physique. En effet, il ne peut y avoir de réactions, incluant la réaction (n, γ) , sans un minimum de diffusions (Blatt et Weisskopf, 1952). Cependant, il faut noter que dans la physique des plasmas, l'équation de Vlasov est fréquemment employée. Cette équation correspond à l'équation de Boltzmann pour laquelle on néglige les collisions afin de simplifier la résolution de certains problèmes (Reif, 1965, Chapman et al, 1964).

L'esprit de cette démarche n'est pas tant d'avoir une expression rigoureuse et valide du flux angulaire, mais plutôt d'avoir une expression approximative décrivant notre problème, que nous ajustons à des valeurs expérimentales. En ce sens, il s'agit davantage d'une combinaison d'une approche heuristique à une approche empirique.

Finalement, en posant $\omega = 0$, l'équation (3.12) devient donc,

$$\psi(\rho, \zeta, \Omega, E_n) = \psi_{nom_{Max}} \left(P, \frac{H}{2}, \Omega, E_n \right) e^{(D_a(V) \Sigma_a(E_n))} I_0(D_b(V) \Sigma_a(E_n)) e^{(\alpha(\rho - P))} e^{\left(- \left(|\zeta| - \frac{H}{2} \right) \left(\alpha + \frac{\Sigma_a(E_n)}{V} \right) \right)}$$

(3.13), où

P : Valeur de ρ en cm à la surface externe verticale de l'échantillon cylindrique.

H : Hauteur en cm du contenu de l'échantillon cylindrique

α : constante d'intégration proportionnelle au taux de décroissance du flux neutronique selon l'axe des z

ξ : variable angulaire (voir figure 2.6)

ω : variable angulaire (voir figure 2.6)

L'emploi de cette solution approximative permet de réduire la durée des calculs sans compromettre leurs précisions de façon importante.

Puisque la dépression du flux et la perturbation du flux sont définies comme des rapports de flux neutroniques intégrés selon les équations (2.37) et (2.38) comme suit,

$$\frac{\phi_{P, D_p}(r, E)}{\phi_{nom}(r, E)} = \frac{\int \psi_{P, D_p}(r, E, \Omega) d\Omega}{\int \psi_{nom}(r, E, \Omega) d\Omega} \quad (3.14)$$

et que dans les deux cas le dénominateur est le flux neutronique intégré nominal qui est associé à un échantillon pour lequel $\Sigma_a \ll 1$, nous posons que la dépression du flux et sa perturbation sont aussi de la même forme que l'expression du flux angulaire (2.31).

Des expressions de cette forme ont été utilisées pour l'analyse des résultats expérimentaux de perturbation du flux. En premier lieu, nous avons employé une méthode itérative combinant l'utilisation de graphiques de perturbation du flux en fonction de Σ_a , suivi d'analyses statistiques des écarts entre les équations de régressions non linéaires et les résultats expérimentaux.

Les résultats obtenus de cette première méthode furent employés comme valeurs de première itération de la deuxième méthode. Cette dernière consistait à obtenir des régressions non linéaires selon une méthode itérative de résolution d'équations de minimisation d'écarts quadratiques (Knoll, 2000, Edwards, 1979, De Soete et *al*, 1972).

3.10 RÉGRESSIONS NON LINÉAIRES DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Puisque le produit des deux premières fonctions de l'expression (2.40) est non linéaire, nous avons procédé en deux étapes distinctes pour déterminer les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ avec précision. La première méthode employée est une méthode itérative d'essais et d'erreurs. La deuxième étape utilisée consiste en une méthode des moindres carrés pour laquelle les résultats obtenus de la première étape de régression servent de valeurs initiales d'itération.

La première étape itérative d'essais et d'erreurs se décrit comme suit. L'expression de la dépression du flux pour laquelle nous devons déterminer les coefficients fonctionnels, $D_a(V)$ et $D_b(V)$ est la suivante,

$$e^{(D_a(V) \Sigma_a)} I_0(D_b(V) \Sigma_a) \quad (3.15).$$

Cette équation provient des conditions frontières (3.10) et (3.11) appliquées à l'équation (3.13). Il s'en suit que les autres termes de l'équation (3-13) sont égaux à un.

- 1) En premier lieu, suite à une inspection visuelle du graphique des résultats expérimentaux, il s'agit de supposer les valeurs initiales de ces coefficients

fonctionnels

- 2) Calculer la fonction de régression non linéaire à l'aide de ces coefficients fonctionnels
- 3) Superposer sur un même graphique la courbe de la régression non linéaire résultante (perturbation du flux en fonction de Σ_a) aux résultats expérimentaux, pour un volume V donné, pour $l = \{1,2,3\}$ correspondant à $V_1 = 0.5$ ml, $V_2 = 1.0$ ml, $V_3 = 1.3$ ml et $V_4 = \pi r^2 z$. Le volume V_4 n'est utilisé que pour déterminer les distributions radiales et axiales du flux scalaire.
- 4) Modifier les valeurs des coefficients de façon à réduire l'écart moyen entre la courbe de régression et les points expérimentaux et reprendre les étapes requises jusqu'à un écart moyen en apparence satisfaisant,
- 5) Par la suite, la nouvelle régression est analysée statistiquement afin de calculer précisément l'écart moyen, l'écart type et le coefficient de régression,
- 6) Si les résultats statistiques ne sont pas jugés satisfaisants, une nouvelle série d'itérations est initiée jusqu'à ce les paramètres statistiques soient satisfaisants.
- 7) Reprendre les étapes 1 à 6 pour un autre volume V_l , $l = \{1,2,3\}$

Les coefficients de régressions $Da(V)$ et $Db(V)$ déterminés par cette première méthode, pour les échantillons de 0.5, 1.0 ml et 1.3 ml, de même que les résultats d'analyses statistiques obtenus pour les écarts entre les équations de régressions linéaires de la perturbation du flux en fonction de Σ_a (plage de $[0,4]$ moles-b) et les résultats expérimentaux sont présentés dans le tableau 3.10 (Kennedy et Marcotte, 1984).

Tableau 3.10 : Coefficients des régressions non linéaires de la perturbation du flux en fonction de Σ_a et résultats des analyses statistiques des écarts entre ces régressions et les résultats expérimentaux, pour des échantillons de 0,5 1,0 et 1,3 ml sur la plage de Σ_a de [0,4] moles-b.

Volume : 0.5 ml	
Plage de Σ_a valide	[0, 4]
Da(V)	0,8502995
Db(V)	0,919995
N, nombre de points expérimentaux	3
Écart moyen, μ (1)	5.84E-05
Écart type, s (2)	0,0204 (2,0%)
R^2 (3)	0,84 corrélation forte
Volume : 1.0 ml	
Plage de Σ_a valide	[0, 4]
Da(V)	0,59224
Db(V)	0,73099634
N, nombre de points expérimentaux	16
Écart moyen, μ (1)	5,7E-07
Écart type, s (2)	0,0228 (2,3%)
R^2 (3)	0,832 corrélation forte
Volume : 1.3 ml	
Plage de Σ_a valide	[0, 4]
Da(V)	0,3535068
Db(V)	0,3860
N, nombre de points expérimentaux	6
Écart moyen, μ (1)	3,7E-04
Écart type, s (2)	0,0168 (1,7%)
R^2 (3)	0,897 corrélation forte

$$(1) \mu = \frac{\sum_{i=1}^N (P_{corr_i} - P_{exp_i})}{N}$$

valeur moyenne des écarts entre les valeurs expérimentales et les valeurs régressé de la corrélation de la perturbation du flux en fonction de Σ_a . C'est aussi la valeur centrale de la distribution de Gauss par laquelle passe l'axe de symétrie, des

écarts (Korn et Korn, 2000, Press et al, 1992)

$$(2) s = \sigma_e = \sqrt{\frac{\sum_j f_j (m_j - y_{moy})^2}{N - 1}}, \quad \text{l'écart-type } \sigma \text{ qui indique}$$

l'étalement de la courbe autour de la valeur de μ .

$$(3) R^2 = r^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (y_i - y_{i,cor})^2}{\sum_{i=1}^N (y_i - y_{moy})^2} \quad \text{coefficient de régression élevé au carré.}$$

Pour les trois (3) volumes, les corrélations obtenues présentent de fortes corrélations et les écarts moyens sont très faibles. Le coefficient de corrélation de la série de résultats obtenus pour un volume de 1,3 ml est supérieur aux deux autres. De plus, l'écart-type de cette série de résultats pour 1,3 ml est aussi le plus petit des trois séries d'analyses statistiques. Cependant, la série de résultats pour 1,0 ml exhibe l'écart moyen le plus faible. Nous observons que les paramètres $Da(V)$ et $Db(V)$ diminuent en valeur absolue pendant que le volume de l'échantillon croît.

3.10.1 CORRÉLATION GÉNÉRALE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

L'étape suivante consiste à corréler les paramètres $Da(V)$ et $Db(V)$ obtenus des régressions non linéaires de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , en fonction du volume de l'échantillon. La conclusion de cette étape nous donne donc une corrélation non linéaire globale de la perturbation du flux valide pour tous les éléments, pour la plage de Σ_a de [0,4] moles-b et pour tous les volumes d'échantillons.

Après une inspection de la suite des coefficients $Da(V)$ et $Db(V)$, certaines fonctions ($c + dV$, $c - e^{(-dV)}$, $c - \sqrt{dV}$, $c - dV^2$) ont été étudiées qualitativement, afin d'en désigner une qui offre plus de chance de représenter adéquatement les

variations des coefficients selon le volume. La fonction $c + d V$ semble bien représenter le comportement du coefficient $Da(V)$, alors que la fonction $c - d V^2$ semble plus prometteuse pour générer une corrélation satisfaisante de la fonction $Db(V)$.

Par la suite, des graphiques des coefficients $Da(V)$ et $Db(V)$ furent construits en fonction du volume V . Ceux-ci montrèrent clairement que les coefficients $Da(V)$ formaient approximativement une droite dans le plan $Da(V)$ - V , alors que les coefficients $Db(V)$ décrivaient une courbe qui s'apparentait avec la fonction $c - d V^2$.

Une régression linéaire des valeurs de $Da(V)$ en fonction de V réalisée par la méthode des moindres carrés (Press et *al*, 1992, Korn et Korn, 2000, Edwards, 1979, Baillargeon et Rainville, 1975) fournit les résultats satisfaisants présentés dans le tableau 3.11. Ces résultats donnent une corrélation très forte, avec un écart-type d'environ 3% et un écart moyen pratiquement nul.

Tableau 3.11 : Résultats de la régression linéaire pour $D_a(V) = c + d V$

c	1,168283500
d	-0,6102929286
Écart moyen, μ (1)	3,33E-11
Écart type, s (2)	0,029954 (3%)
R^2 (3)	0,9999999966 corrélation très forte

(1) : Écart moyen entre les coefficients de la perturbation du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

(2) : Écart type entre les coefficients de la perturbation du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

(3) : Coefficient de corrélation entre les coefficients de la perturbation du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

Après une linéarisation de la fonction $D_b(V) = e + f V^2$ par le changement de variable $V_p = V^2$, nous obtenons $D_b(V) = e + f V_p$. Il est alors possible d'obtenir facilement une régression linéaire par la méthode des moindres carrés. Par la suite, le

changement de variable inverse $V = \sqrt{V_p}$ convertit cette régression linéaire en régression non linéaire dont les paramètres sont présentés dans le tableau 3.12.

Tableau 3.12 : Résultats de la régression de $D_b(V) = e + fV^2$

e	1,040726528
f	-0,3691116476
Écart moyen, μ (1)	3,33E-11
Écart type, s (2)	0,05144 (5 %)
R^2 (3)	0,9858358 corrélacion très forte

- (1) : Écart moyen entre les coefficients de la perturbation du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.
- (2) : Écart type entre les coefficients de la perturbation du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.
- (3): Coefficient de corrélation entre les coefficients de la perturbation du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

Il s'agit d'une très bonne corrélation, avec un écart moyen extrêmement petit , mais avec un écart type un peu élevé.

Le tableau 3.13 présente les valeurs des constantes c, d, e, f et de $Da(V)$ et $Db(V)$ de même qu'un estimé de leurs erreurs relatives. Les erreurs relatives des coefficients c, d, e et f ont été estimées en supposant qu'ils ont approximativement la même erreur absolue que le volume V, soit $\Delta(V) = 0.0001$.

Tableau 3.13 : Constantes c, d, e, f, coefficients des $D_a(V)$, $D_b(V)$ et erreurs relatives, pour la première corrélation globale de la perturbation du flux obtenue d'une régression non linéaire des résultats expérimentaux pour les trois (3) volumes d'échantillon étudiés.

Constantes et coefficients fonctionnels	Erreurs relatives
$D_a(V) = 1.1682 - 0.6103 V$	$\frac{\Delta(D_a(V))}{D_a(V)} = -0.0001507$
$D_b(V) = 1.0407 + 0.3691 V^2$	$\frac{\Delta(D_b(V))}{D_b(V)} = 0.0001823$
$c = 1.1682$	$\frac{\Delta(c)}{c} = 0.0001$
$d = -0.6103$	$\frac{\Delta(d)}{d} = 0.0002$
$e = 1.0407$	$\frac{\Delta(e)}{e} = 0.0001$
$f = 0.3691$	$\frac{\Delta(f)}{f} = 0.0003$

En substituant les valeurs des fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ obtenues par la première méthode itérative de régressions non linéaires à l'expression suivante,

$$P(\Sigma_a, V) = e^{(D_a(V) \Sigma_a)} I_0(D_b(V) \Sigma_a), (3.16)$$

nous obtenons la corrélation générale suivante,

$$P(\Sigma_a, V) = e^{((c + dV) \Sigma_a(E))} I_0((e + fV^2) \Sigma_a(E)), (3.17) \text{ et}$$

$$P(\Sigma_a, V) = e^{((1.1682 - 0.6103 V) \Sigma_a(E))} I_0((1.0407 + 0.3691 V^2) \Sigma_a(E)), (3.18)$$

Cette corrélation globale est aussi présentée dans la figure 3.5 pour chacun des trois volumes expérimentaux étudiés.

Perturbation du flux pour différentes valeurs de V, 1^{re} corrélation

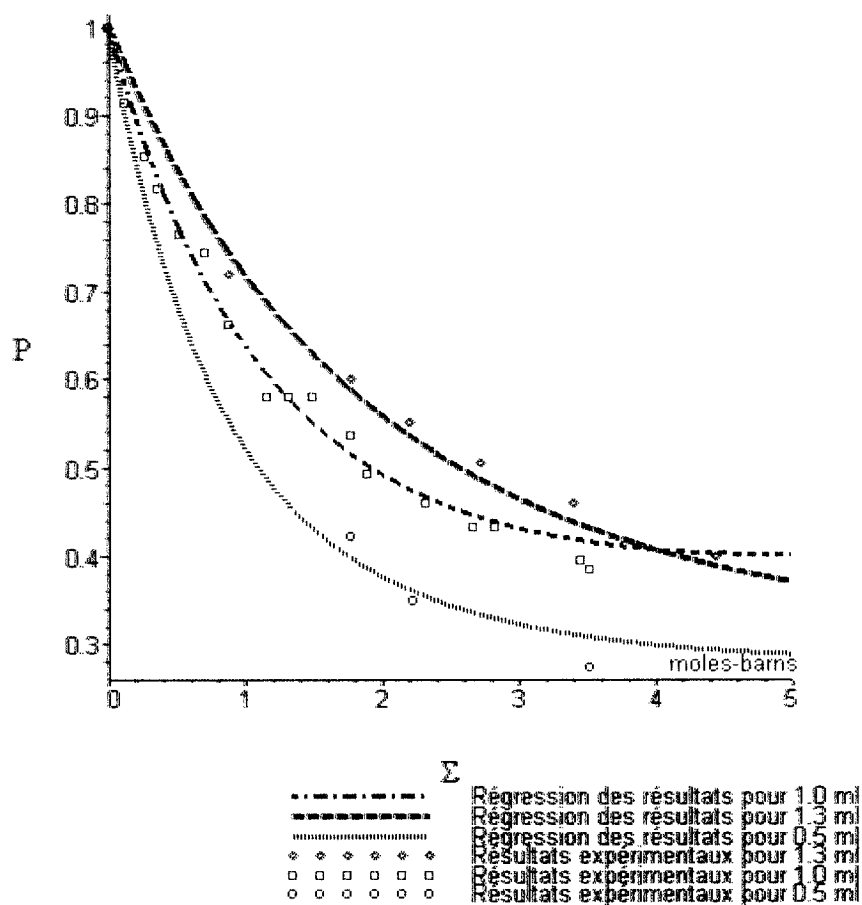


Figure 3.5 : Graphique de la première (1^{re}) corrélation globale de la perturbation du flux en fonction de Σ , (la section efficace macroscopique d'absorption en moles- b), avec le volume de l'échantillon en paramètre. Les points correspondants aux résultats expérimentaux de la perturbation du flux sont aussi présentés sur ce graphique.

Globalement, la figure 3.5 indique que la perturbation du flux augmente (P diminue) en fonction de Σ_a croissant, et augmente davantage (P diminue davantage)

pour de faibles volumes d'échantillons. Les pentes des trois courbes (dérivées partielles de la perturbation du flux par rapport à Σ_a) sont donc plus élevées aux faibles valeurs de Σ_a , qu'à leurs valeurs élevées.

De plus, nous constatons que P augmente avec un volume d'échantillon croissant.

3.10.2 ANALYSE STATISTIQUE DE LA CORRÉLATION GLOBALE ET SON AMÉLIORATION PAR LA MÉTHODE DES MOINDRES CARRÉS

Il convenait par la suite, de mesurer la précision de cette corrélation globale. Des analyses statistiques distinctes entre les résultats expérimentaux de chacun des volumes d'échantillon (0.5, 1.0, 1.3 ml) et les résultats prédits par cette corrélation générale furent réalisées. Les résultats de ces analyses sont présentés dans le tableau (3.14).

Tableau 3.14 : Résultats des analyses statistiques des écarts entre la (1^{re}) corrélation générale de la perturbation du flux obtenue d'une régression non linéaire et les

résultats expérimentaux $P(\Sigma_a, V) = e^{((a+bV)\Sigma_a)} I_0((c+dV^2)\Sigma_a)$

Volume : 0,5 ml	
Écart moyen, μ	-0,005306 (-0,5 %)
Écart type, s	0,023808 (2,4 %)
R^2	0,832412 corrélation forte
Volume : 1,0 ml	
Écart moyen, μ	-0,00592366 (-0,5 %)
Écart type, s	0,01830488 (1,8 %)
R^2	0,8570101340 corrélation forte
Volume : 1,3 ml	
Écart moyen, μ	0,0074310 (0,7 %)
Écart type, s	0,01601345 (1,6 %)
R^2	0,88408 corrélation forte

Dans l'ensemble, les analyses statistiques démontrent que la corrélation globale représente très bien les résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984) pour les trois volumes d'échantillon étudiés. De plus, puisque les résultats statistiques sont relativement invariables pour les trois volumes étudiés, il est raisonnable de conclure que cette corrélation générale peut très bien représenter les résultats obtenus pour n'importe quel volume d'échantillon, à l'intérieur de la plage de volume, des expériences [0.5, 1.3] ml.

En résumé, l'écart moyen entre les résultats expérimentaux et ceux prédits par la corrélation générale est d'environ 0,6 %, alors que l'écart type moyen est d'environ 2 %. Le coefficient de corrélation moyen étant d'environ, 0.86, cette corrélation globale est donc très satisfaisante.

Bien qu'à première vue la corrélation soit satisfaisante, les figures (3.6) et (3.7) montrent un écart grandissant entre la courbe de la corrélation globale de la perturbation du flux et les valeurs expérimentales pour lesquelles $\Sigma_a > 2,5$. De plus, les écarts-types sont légèrement trop élevés pour avoir un modèle précis. Pour ces raisons, nous avons effectué une deuxième étape de régression non linéaire des données expérimentales par la méthode des moindres carrés en utilisant les valeurs de $Da(V)$ et $Db(V)$ obtenues jusqu'à maintenant pour les introduire à la première itération du processus.

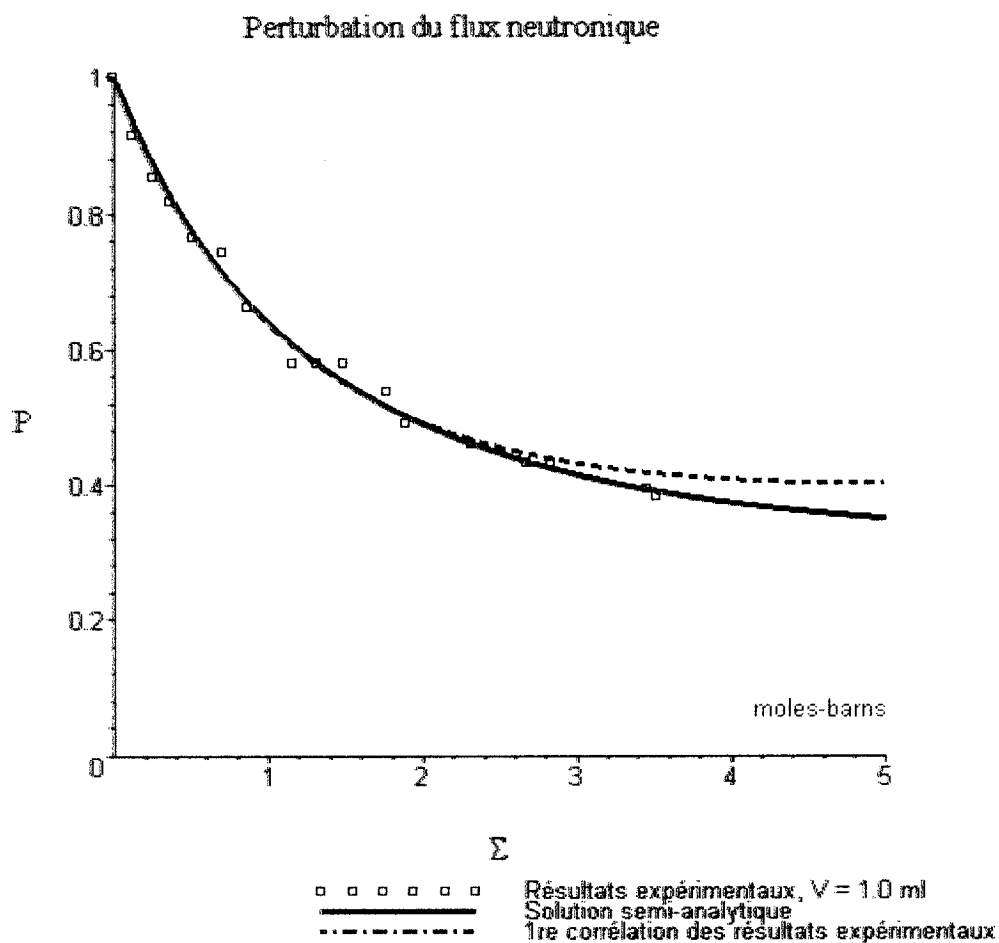


Figure 3.6 : Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a présentant une courbe provenant d'une première (1^{re}) régression non linéaire des résultats expérimentaux, une autre courbe pleine présentant la solution semi-analytique obtenue par le modèle de transport neutronique (présentée au chapitre 4) et les résultats expérimentaux correspondants de Kennedy et Marcotte pour les échantillons de 1,0 ml.

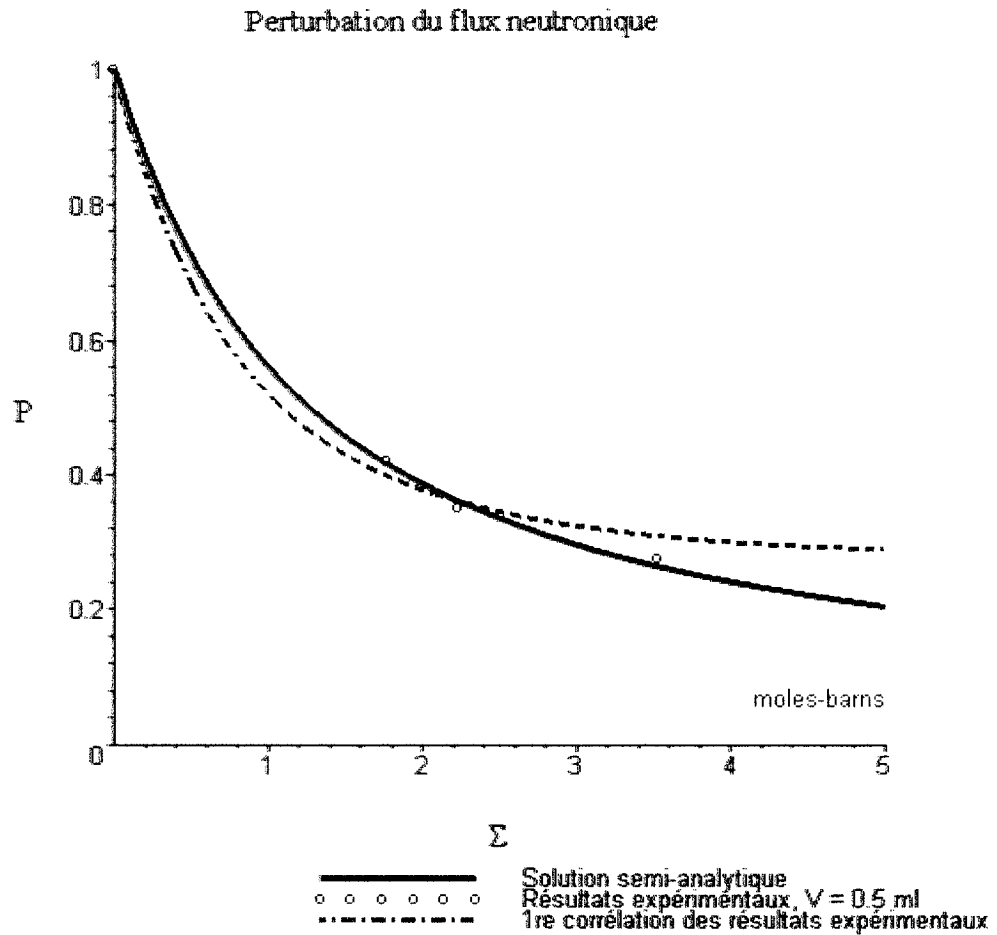


Figure 3.7 : Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a présentant une courbe provenant d'une régression non linéaire des résultats expérimentaux, une autre courbe pleine présentant la solution semi-analytique obtenue par le modèle de transport neutronique (présentée au chapitre 4) et les résultats expérimentaux correspondants de Kennedy et Marcotte pour les échantillons de 0,5 ml.

La méthode de régression multivariable non linéaire repose sur la méthode des moindres carrés faisant intervenir des dérivées partielles par rapport aux paramètres de régression (Press et al, 1992, Edwards, 1979).

La forme de la corrélation et des paramètres de régression $Da(V)$ et $Db(V)$ sont donnés par les équations (3.16) et (3.17). Dans le but d'optimiser ces paramètres par une

méthode systématique, nous employons leurs valeurs afin d'estimer les plages de valeurs requises pour résoudre un système d'équations non linéaires par une méthode itérative.

Tout comme pour les corrélations linéaires multivariées, nous posons,

$$z_{i,j} = f(x_i, y_j) + \varepsilon_{i,j} \quad (3.19)$$

pour laquelle $z_{i,j}$ représente les valeurs mesurées et $f(x_i, y_j)$ représente la corrélation,

$$f(x_i, y_j) = e^{((a + b y_j) x_i)} I_0((c + d y_j^2) x_i) \quad (3.20)$$

avec les variables indépendantes reliées par les relations, $x_i = \Sigma$ et $y_j = V$.

En isolant le résidu $\varepsilon_{i,j}$, nous obtenons l'expression suivante,

$$\varepsilon_{i,j} = z_{i,j} - f(x_i, y_j) \quad (3.21).$$

La méthode des moindres carrés consiste à déterminer les paramètres ou les coefficients de régression (qui peuvent être des fonctions) qui minimisent le carré des distances de tous les écarts entre les valeurs mesurées et la corrélation recherchée (Knoll, 2000, Edwards, 1979, De Soete et al, 1972).

Nous posons donc, que la somme des carrés de ces distances est la suivante

$$S = \sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^N \varepsilon_{i,j}^2 \right) \quad (3.22)$$

$$\text{ou encore, } S = \sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^N (z_{i,j} - f(x_i, y_j))^2 \right) \quad (3.23),$$

en substituant l'équation (3.20) dans l'équation (3.21).

Puisqu'il s'agit d'un problème d'optimisation d'une surface dans l'espace euclidien 3-D, la condition nécessaire pour obtenir une surface optimale est de poser,

$$\text{grad}_{y_k}(S_p) = 0 \quad (3.24).$$

En exprimant le gradient sous la forme de ces composantes, les dérivées partielles, nous obtenons les quatre (4) équations suivantes

$$\frac{\partial}{\partial a} S_P = 0 \quad (3.25),$$

$$\frac{\partial}{\partial a} \left(\sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^{N_j} (y_{i,j} - e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma))^2 \right) \right) \quad (3.26)$$

ou encore

$$\sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^{N_j} (-2 (y_{i,j} - e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma)) \Sigma e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma)) \right) = 0 \quad (3.27),$$

les autres équations associées aux coefficients b, c et d sont les suivantes,

$$\sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^{N_j} (-2 (z_{i,j} - e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma)) V \Sigma e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma)) \right) = 0 \quad (3.28)$$

$$\sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^{N_j} (-2 (z_{i,j} - e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma)) e^{((a+bV)\Sigma)} I_1((c+dV^2)\Sigma)) \right) = 0 \quad (3.29) \text{ et}$$

$$\sum_{j=1}^M \left(\sum_{i=1}^{N_j} (-2 (z_{i,j} - e^{((a+bV)\Sigma)} I_0((c+dV^2)\Sigma)) e^{((a+bV)\Sigma)} I_1((c+dV^2)\Sigma) V^2 \Sigma) \right) = 0 \quad (3.30).$$

Afin de minimiser les carrés des distances entre chacune des courbes et les valeurs correspondantes au volume des échantillons, nous avons posé, que la somme des carrés des distances soit appliquée seulement au cas $V=1,0$ ml, pour lequel nous avons le plus grand nombre de valeurs mesurées. De plus, puisqu'il s'agit de résoudre un système de quatre (4) équations fortement non linéaires, nous remplaçons la valeur zéro à droite

de ces équations par $\eta \ll 1$ prenant des valeurs progressivement plus petites s'approchant de zéro.

Les valeurs des paramètres de régression a, b, c et d convergent vers des valeurs uniques au fur et à mesure que les valeurs prises par η tendent vers zéro. Les paramètres de régression de l'équation suivante proviennent d'une solution du système d'équations non linéaires avec une valeur d' η égale à 1,0E-09. La corrélation améliorée des résultats expérimentaux devient donc,

$$P(\Sigma_a, V) = e^{(-(0.9633 - 0.4413 V) \Sigma_a)} I_0((0.8155 - 0.2112 V^2) \Sigma_a) \quad (3.31).$$

Par la suite, nous avons fait des analyses statistiques des écarts entre cette nouvelle corrélation et les résultats expérimentaux. Les résultats de ces analyses sont présentés dans le tableau 3.15. La figure 3.8 présente le graphique de cette corrélation appliquée à chacun des volumes de même que les valeurs expérimentales.

Tableau 3.15 : Tableau des résultats des analyses statistiques des écarts entre la (2^e) corrélation améliorée de la perturbation du flux et les valeurs expérimentales.

V (ml)	0,5	1,0	1,3
Écart moyen entre la corrélation améliorée et les résultats expérimentaux	0,00195 (0,2 %)	-0,00691 (-0,7 %)	0,00042 (0,04 %)
Écart type entre la corrélation améliorée et les résultats expérimentaux	0,01021 (1,0 %))	0,01664 (1,7 %)	0,01319 (1,3 %)
R	-0,9299	-0,9398	-0,9282
R ²	0,8648	0,8834	0,8615

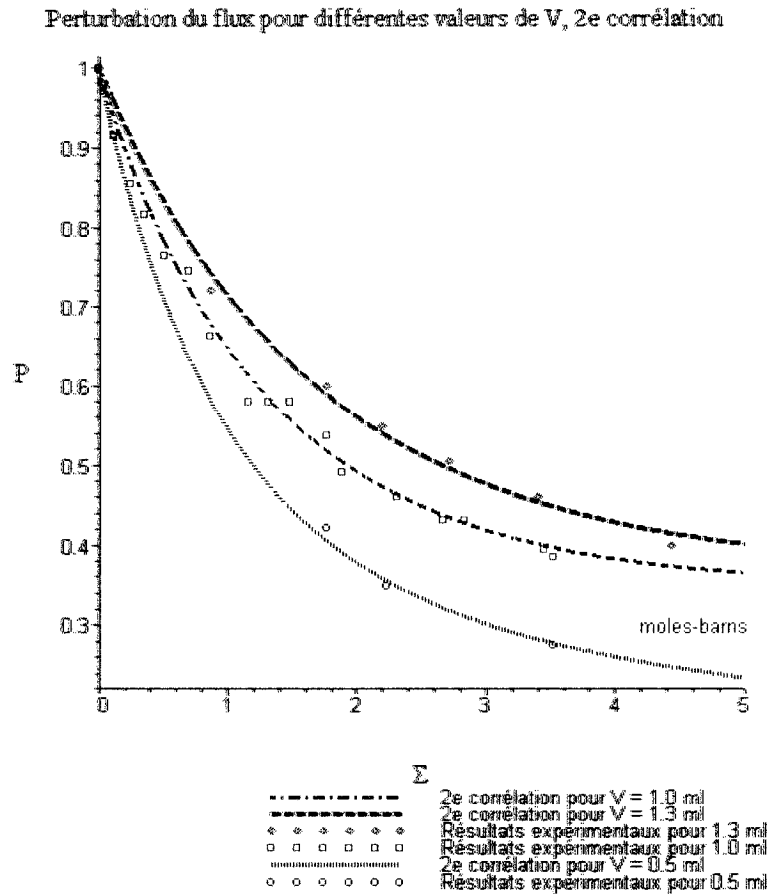


Figure 3.8 : Graphique de la perturbation du flux neutronique d'un site interne en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique. Chacune des trois (3) courbes et les points expérimentaux sont paramétrés par un volume d'échantillon. Les courbes proviennent de la solution d'un système d'équations non linéaires provenant de la méthode des moindres carrés, pour lesquelles le terme à droite de l'égalité est $\eta = 0.10 \cdot 10^{-8}$. Ces courbes sont issues de l'équation (3.31).

En comparant les courbes des figures 3.6 et 3.7 à celles de la figure 3.8, nous constatons que les courbes de la nouvelle corrélation sont plus représentatives des valeurs expérimentales pour les volumes de 0,5 et 1,0ml pour des valeurs de $\Sigma > 4$.

Trois autres observations principales méritent d'être présentées :

- 1) Les écarts types et les écarts moyens de la corrélation améliorée pour les trois volumes (tableau 3.15) sont inférieurs à ceux de la corrélation initiale (tableau 3.14). Les nouvelles corrélations (coefficients de corrélation) pour chacun des volumes demeurent fortes. Nous avons donc atteint le but fixé. Puisque la méthode de correction des concentrations mesurées repose sur cette corrélation, il s'ensuit que les valeurs corrigées sont plus précises.
- 2) Les nouveaux écarts types de la nouvelle corrélation sont tous inférieurs ou égaux à l'estimation de l'erreur expérimentale de 1,6 %. Cela signifie que ce modèle empirique est mathématiquement représentatif des valeurs expérimentales. D'autre part, le fait que ces valeurs expérimentales soient très rapprochées d'une fonction mathématique caractéristique des théories de transport et de diffusion neutronique en coordonnées cylindriques les rend physiquement crédibles.
- 3) Les trois nouveaux écarts types sont inférieurs aux écarts types antérieurs, et ce, même si la méthode des moindres carrés est appliquée à la somme des carrés des résidus des valeurs expérimentales pour les échantillons de 1,0 ml seulement. Puisque nous avons proposé des intervalles étroits dans lesquels les paramètres de régression initiaux étaient compris, la résolution itérative du système d'équations non linéaires a déterminé des solutions plus précises applicables aux données correspondantes à 1,0 ml, mais aussi aux autres volumes du même ordre de grandeur.

- 4) Une autre explication est que la sensibilité de la perturbation du flux par rapport au volume de l'échantillon est relativement faible (environ $0,25 \text{ ml}^{-1}$ pour une partie importante du domaine expérimental Σ_a , V , figures 3.9 et 3.10), de sorte qu'en optimisant la corrélation pour l'un des trois volumes, la corrélation demeure relativement précise pour les trois volumes.

3.11 MÉTHODE DE CALCUL DE LA CONCENTRATION RÉELLE D'UN ÉLÉMENT

Le but ultime de notre projet consiste à développer une méthode de calcul permettant de corriger la concentration (masse) mesurée dans un site d'irradiation interne d'un élément afin d'en obtenir une concentration (masse) très rapprochée de sa valeur réelle. La méthode de correction met en œuvre la corrélation globale précise obtenue de la perturbation du flux.

Pour ce faire, nous utilisons simplement la corrélation globale améliorée des résultats expérimentaux (équation (3.31)) qui décrit avec une précision satisfaisante, la perturbation du flux en fonction du volume de l'échantillon et de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique Σ_a .

La méthode de correction de la concentration fait appel à un processus itératif. Elle calcule à chaque itération une valeur approchée de la concentration réelle d'un élément, en employant la perturbation du flux d'un élément ayant une section efficace microscopique d'absorption élevée et/ou une concentration ou une masse importante. La méthode initie un premier calcul à partir de l'activité mesurée de l'élément concerné.

Le code EPAA (École Polytechnique Activation Analysis) du réacteur Slowpoke de l'École Polytechnique de Montréal est le code de calcul utilisé pour identifier les éléments présents et pour en calculer les concentrations ou les masses.

À la suite de l'irradiation neutronique contrôlée d'un échantillon dans l'un des sites internes du réacteur Slowpoke, le code détermine les activités des éléments identifiés, à partir des mesures d'irradiation des rayons gamma émis par cet échantillon activé. Ce code de calcul ne tient pas compte de la perturbation du flux neutronique causée par la présence d'un corps fortement absorbant. Le code considère implicitement que l'activité mesurée provient d'un échantillon uniformément activé dans l'espace.

Afin de pouvoir tenir compte de la masse ou de la concentration d'un élément sur la perturbation du flux neutronique intégré, une méthode itérative a été conçue pour convertir les résultats calculés par le code EPAA, en concentrations ou masses réelles des éléments concernés.

Puisque cette corrélation globale est très précise par rapport aux résultats expérimentaux, elle est employée directement pour obtenir les concentrations réelles à partir du code EPAA. Le code de calcul a été programmé selon le logiciel de calcul symbolique Maple 9.5.

Voici, une présentation sommaire de la méthode employée.

La première étape consiste à obtenir ou déterminer les valeurs des paramètres requis pour effectuer les calculs. Les données requises sont :

- 1) L'identité de l'élément concerné.
- 2) Sa masse atomique (g/mole).
- 3) Sa section efficace microscopique d'absorption neutronique en cm^2 qui est ensuite convertie en b, à 0,0253 eV.
- 4) Le flux neutronique intégré ou scalaire auquel opère le réacteur Slowpoke durant l'irradiation neutronique ($n/cm^2/s$).

- 5) Le volume de l'échantillon en cm^3 .

La deuxième étape consiste à obtenir la valeur de l'activité mesurée utilisée par le code EPAA pour cet élément. Il est facile d'utiliser ce code pour simuler le calcul de l'activité par EPAA. Ce mode d'opération du code de correction fut nécessaire pour en valider son fonctionnement et sa performance.

Par la suite, la section efficace macroscopique de capture neutronique radiative est calculée, à partir de la masse initialement calculée par le code EPAA, de l'élément présent dans l'échantillon ou plus généralement de la valeur de la masse obtenue lors de l'itération précédente du code de correction.

Puis, la perturbation du flux est calculée en fonction de cette section efficace macroscopique exprimée en barn, et du volume V en ml de l'échantillon. Le flux scalaire ou intégré moyen de l'échantillon est ensuite obtenu de la corrélation globale améliorée et du flux neutronique scalaire du réacteur Slowpoke lors de l'irradiation.

Cette dernière opération découle de la définition mathématique de la perturbation du flux (équation (2.38)).

Finalement, l'activité de l'échantillon est calculée, à partir du taux de réaction, en supposant qu'il s'agit d'une activité à saturation mesurée par la chaîne de détection des rayons gamma et calculée par le code EPAA, pour laquelle nous pouvons écrire (équation (2.19)),

$$A = N \sigma_a \phi_{moy}, (3.32)$$

Dans le cas, où le code de correction des concentrations est employé dans le mode de détermination de la concentration réelle, à partir des valeurs calculées par le

code EPAA, cette valeur (activité) est directement transmise au code de correction des concentrations.

Les paramètres suivants sont le degré de précision requis des calculs et le nombre maximum d'itérations permises. Lors de simulations, nous avons établi que l'imposition d'un degré de précision plus élevé que $1,0E-09$ était inutile, puisque la précision de l'ordinateur, combinée à celle du logiciel Maple et possiblement du code de correction des concentrations lui-même étaient alors limitantes.

En effet, toutes les simulations ayant un critère de convergence inférieur à $1,0E-09$ convergeaient en 16 itérations, alors qu'un nombre progressivement plus élevé d'itérations aurait dû être obtenu au fur et à mesure que le critère de convergence devenait plus sévère.

Ainsi, pour une masse calculée par le code EPAA de 3,60804 g, la masse réelle de cobalt-59 calculée par le code de correction des concentrations est de 4,85373 g obtenue en 15 itérations et 32 ms avec un critère de convergence de $1,0E-09$. Cela signifie qu'en supposant une grande précision pour les paramètres ($M_j \sigma_{a_j}(E_n = 0.0253) \text{ eV}$, ϕ et V) utilisés dans ce calcul, une précision d'un milliardième de g de la masse réelle de l'élément concerné est possible par l'utilisation de ce code.

À titre d'exemple, pour une activité mesurée correspondant à une masse de cobalt-59 de 3,60804 g, le code calcule une masse de 4,85373 g en 15 itérations et 0,032s par rapport à une masse réelle de référence de 4,85372(6915361847) g.

Ce code de calcul peut aisément être converti en langage FORTRAN, BASIC, MATLAB ou en C++.

Les étapes principales de la boucle d'itération sont les suivantes :

- 1) Calcul du nombre de noyaux de l'élément j à l'itération k (si requis de l'isotope i de l'élément j), à partir de l'activité mesurée, du flux neutronique scalaire nominal et de la section efficace microscopique de l'isotope i de l'élément j.
- 2) Calcul de la masse de l'élément j, à l'itération k.
- 3) Calcul de la section efficace macroscopique d'absorption de l'élément j (si requis de l'isotope i de l'élément j), à l'itération k, basée sur la concentration mesurée du code EPAA.
- 4) Calcul de la perturbation du flux correspondant à la section efficace macroscopique d'absorption obtenue à l'itération k, et du volume de l'échantillon en ml, à partir de la corrélation globale.
- 5) Calcul du flux neutronique scalaire moyen, à l'itération i+1, à partir de la perturbation de flux calculée à l'étape 4 selon l'équation

$$\phi_{moy} = \phi_{nom} P(\Sigma_a, V) .$$
- 6) Calcul du nombre de noyaux N de l'élément j (si requis, de l'isotope i de l'élément j), à l'itération k+1, à partir de l'activité mesurée (ou simulée) et du flux neutronique scalaire moyen de l'itération k+1 obtenu à l'étape 5.
- 7) Calcul de la masse de l'élément j, à l'itération k+1, à partir du nombre de noyaux N obtenu à l'étape 6.
- 8) Calcul de l'erreur relative sur la masse réelle calculée, à partir des résultats des itérations k et k+1. Calcul du taux de convergence, défini par

$$\frac{d}{di} E_{j_i}(i) \text{ ou encore } E_{j_i} - E_{j_{i-1}} .$$
- 9) Impression facultative des résultats intermédiaires à l'itération k.
- 10) Test logique, afin de déterminer si le dernier résultat obtenu respecte le critère de convergence prédéfini. Dans ce cas, les résultats finaux sont affichés ou imprimés. Sinon, les itérations doivent se poursuivre jusqu'à l'atteinte du nombre maximum d'itérations permis.

Le tableau 3.16 présente d'abord les résultats de certains paramètres du processus itératif pour quatre (4) concentrations et pour un échantillon fictif de 1,0 ml. Il présente également des résultats pour quatre (4) volumes distincts et pour une concentration fixe correspondante à $\Sigma_a = 1.194$ (moles-b).

Tableau 3.16 : Taux de convergence de la méthode d'itération pour la correction des concentrations en fonction de Σ_a et de V pour le cobalt

Σ_a (mole-b/ml), pour V=1,0ml	0,055	1,194	3,12	5,703
Taux de convergence relatif initial (1)	0,0280	0,3931	0,6934	1,0501
Taux de convergence relatif final (2)	-6,9E-10	-3,18E-10	-2,4E-10	-1E-11
Nombre d'itérations	5	21	21	11
Durée (ms)	15	31	16	32
Volume (ml), pour $\Sigma_a = 1.194$ mole-b/ml	0,5	1,0	1,3	1,5
Taux de convergence relatif initial	0,4822	0,3931	0,3237	0,2710
Taux de convergence relatif final	-6,3E-10	3,2E-10	3,2E-10	3,2E-10
Nombre d'itérations	30	21	18	15
Durée (ms)	31	16	15	15

(1)
$$E_{j_k} = \frac{N_{j_k} - N_{j_{k-1}}}{N_{j_{k-1}}}$$
, E_{j_k} : erreur relative pour l'élément j à l'itération k, N_{j_k} : nombre de moles de l'élément j, à l'itération k. Le taux de convergence initial est donc

$$E_{j_1} = \frac{N_{j_1} - N_{j_0}}{N_{j_0}}.$$

(2) Le taux de convergence final est
$$E_{j_K} = \frac{N_{j_K} - N_{j_{K-1}}}{N_{j_{K-1}}}.$$

Dans la première partie du tableau 3.16, nous constatons d'abord un taux de convergence initialement élevé, mais un taux final de convergence très faible, de l'ordre de $1,0E-10$, ce qui est normalement attendu d'un processus itératif convergent. D'autre part, nous observons qu'au fur et à mesure que la concentration de cobalt-59 augmente (Σ_a), le taux de convergence initial augmente. Cependant, le nombre d'itérations et la durée de celles-ci ne suivent pas la même tendance.

Dans la deuxième partie du tableau 3.16, nous constatons qu'au fur et à mesure que le volume de l'échantillon augmente le taux de convergence initial, le nombre d'itérations et la durée des itérations diminuent. Ceci signifie que pour une concentration donnée, nous obtenons une convergence plus rapide avec un volume relativement élevé de l'échantillon.

La figure 3.9 présente les courbes de correction des concentrations mesurées du cobalt pour des échantillons de 1,5 ml correspondant à la première corrélation et à la nouvelle corrélation améliorée.

Elle présente le graphique de la masse mesurée du cobalt (C_m : concentration mesurée, en fait masse mesurée) par rapport à la masse réelle (C_r : concentration réelle, en fait masse réelle ou corrigée), obtenue par le processus itératif présenté ci-haut pour

des échantillons de 1,5 ml. La figure 3.9 indique bien que pour une faible masse la courbe de correction est relativement linéaire, pour fléchir légèrement vers le bas avec une augmentation de la masse de l'élément analysé.

À titre d'exemple, pour une masse réelle de cobalt d'environ 10 g dans un échantillon homogène de 1,5 ml de sucre, la masse mesurée est d'environ 7 g. Ceci correspond à un rapport d'environ 7/10 entre la masse mesurée et la masse réelle (corrigée) de cobalt.

Masse de cobalt(g) mesurée en fonction de la masse réelle de cobalt pour $V=1.5$ ml

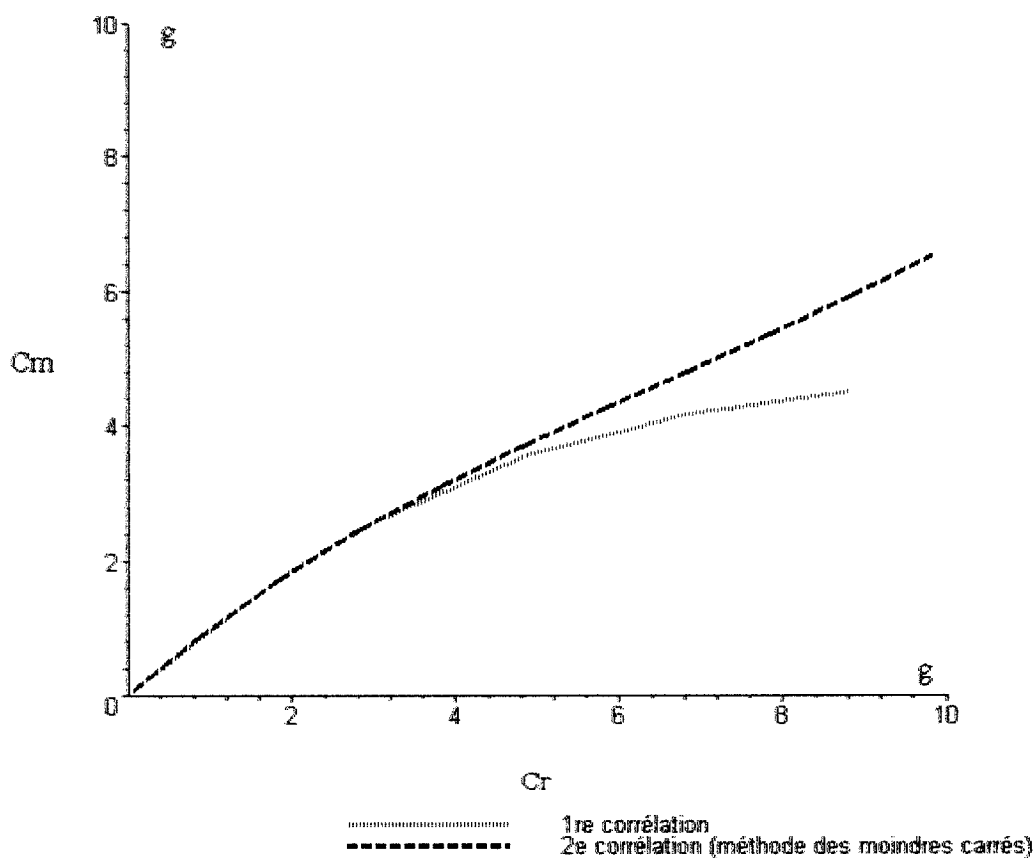


Figure 3.9 : Courbes de la masse mesurée C_m (g) en fonction de la masse réelle C_r (g) pour des échantillons de 1,5 ml contenant du cobalt.

Puisque la nouvelle corrélation améliorée déterminée à la section 3.10.3 est utilisée dans le processus de correction des concentrations mesurées, il est avantageux qu'elle soit la plus mathématiquement représentative possible des résultats expérimentaux sur toute la plage des concentrations. Nous constatons également que la nouvelle corrélation améliorée ne présente pas un fléchissement vers le bas aussi marqué que la première corrélation.

Les figures 3.10 à 3.12 présentent les courbes de masses mesurées C_m (g) en fonction des masses réelles C_r (g) pour six (6) éléments et pour des volumes d'échantillon de 0,5 ml, 1,0 ml et 1,3 ml respectivement. Ces courbes de correction proviennent du code de correction des concentrations utilisant la nouvelle corrélation améliorée de la perturbation du flux neutronique.

Masse mesurée en fonction de la masse réelle pour $V=0,5\text{ml}$

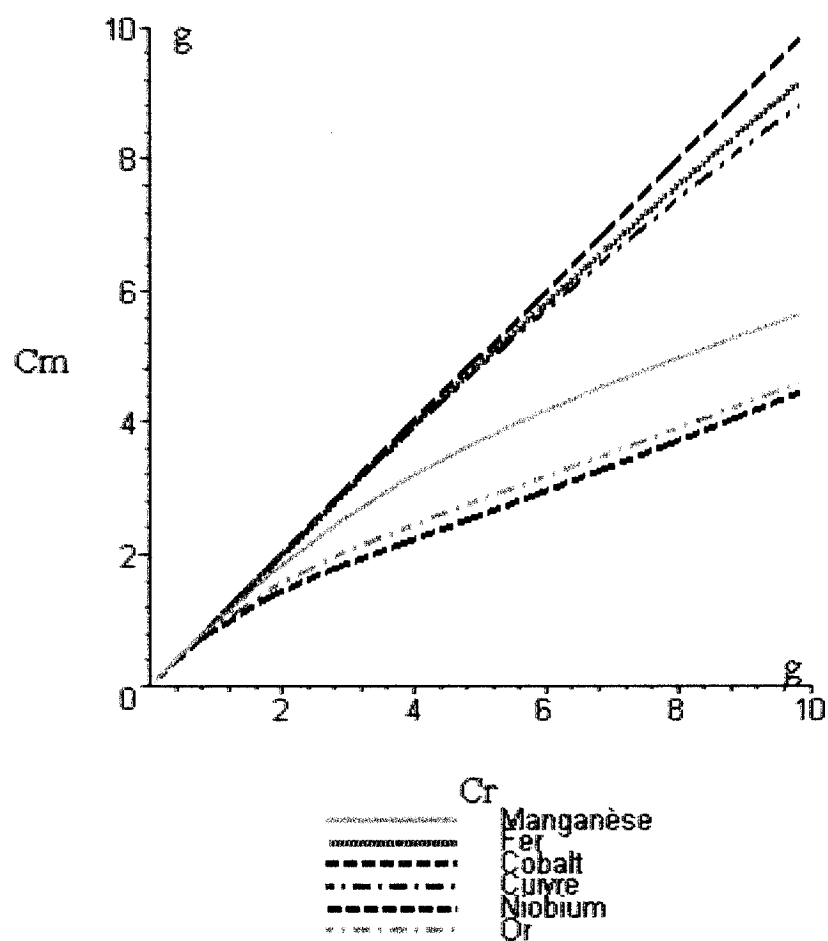


Figure 3.10 : Courbes de correction des masses mesurées C_m (g) pour des échantillons de 0,5 ml contenant l'un de six (6) éléments.

Masse mesurée en fonction de la masse réelle pour $V=1,0\text{ml}$

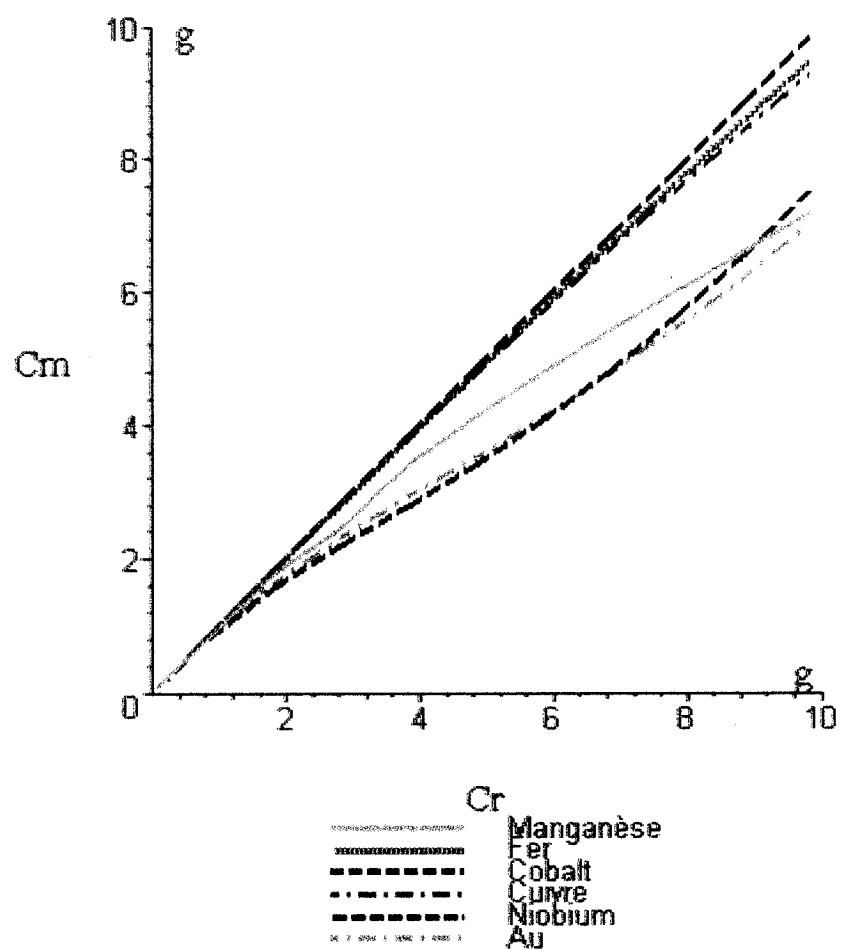


Figure 3.11 : Courbes de correction des masses mesurées C_m (g) pour des échantillons de 1,0 ml contenant l'un de six (6) éléments.

Masse mesurée en fonction de la masse réelle pour $V=1,3\text{ml}$

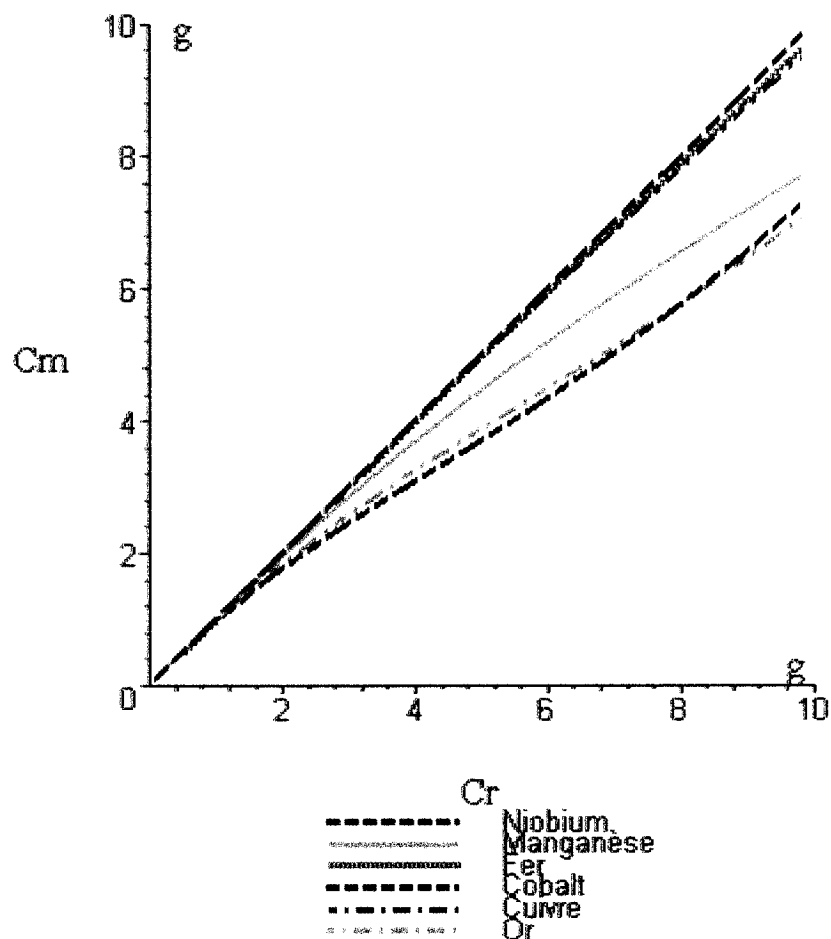


Figure 3.12 : Courbes de correction des masses mesurées C_m (g) pour des échantillons de 1,3 ml contenant l'un de six (6) éléments.

En observant ces trois derniers graphiques, nous constatons que le fléchissement des courbes vers le bas augmente avec une diminution du volume des échantillons. Ainsi, les courbes des échantillons de 0,5 ml ont les fléchissements vers le bas les plus élevés, alors que les courbes des échantillons de 1,3 ml ont les fléchissements vers le bas

minimum. Ce résultat était attendu puisque lors d'une discussion antérieure, nous avons expliqué que la perturbation du flux augmente (P diminue) en fonction d'une diminution des dimensions (volume) d'un corps absorbant.

Une autre observation intéressante est que nous pouvons classer les courbes des trois (3) graphiques en trois (3) classes :

- 1) La classe des éléments peu absorbants et relativement légers, le fer (Fe), le cuivre (Cu) et le niobium ($_{41}\text{Nb}^{93}$, ce noyau est un noyau de masse intermédiaire). De plus, nous constatons que les écarts entre ces trois (3) courbes augmentent pour les masses mesurées réelles élevées, lorsque les volumes d'échantillon diminuent. Les éléments de la première classe ne requièrent pas une correction importante, ils sont surtout des noyaux diffuseurs.
- 2) La classe du manganèse qui a une masse atomique très voisine de celle du fer, mais qui comporte une section efficace d'absorption plus élevée. Ceci explique bien que ce métal provoque une perturbation du flux plus importante que les éléments de la première classe. Le manganèse même en concentrations d'impureté dans des alliages peut avoir une contribution importante à l'activité induite par l'irradiation neutronique (Glasstone et Sesonske, 1994).
- 3) La troisième classe d'éléments est composée du cobalt et de l'or. Il est déjà bien connu, que l'or est un élément ayant une section efficace microscopique d'absorption neutronique élevée avec les neutrons thermiques et les neutrons épithermiques. L'or ($_{79}\text{Au}^{197}$) est d'ailleurs l'élément ayant la masse atomique la plus élevée des six (6) éléments. Le cobalt (Co) qui a une masse atomique intermédiaire entre le fer et le cuivre est aussi la cause d'une forte perturbation du flux neutronique (Eastwood et *al*, 1962) résultant en des courbes de correction de concentration ou de masse voisine de celles de l'or. Le cobalt possède une

section efficace microscopique d'absorption neutronique significativement plus élevée que le fer et le cuivre, ce qui explique son inclusion à la troisième classe plutôt qu'à la première classe. Le cobalt même en concentrations d'impureté dans des alliages peut avoir une contribution importante à l'activité induite par l'irradiation neutronique (Glasstone et Sesonske, 1994). À titre d'exemple, le cobalt-60 présent dans divers alliages est la cause d'environ 50 % de l'irradiation externe pour les travailleurs à la centrale nucléaire de Gentilly-2.

CHAPITRE 4

MODÈLE DE TRANSPORT NEUTRONIQUE SEMI-ANALYTIQUE

4.1 SOLUTION SEMI-ANALYTIQUE DES FLUX ANGULAIRE ET SCALAIRE

À la section 3.9.1, nous avons développé une expression approximative du flux angulaire, composée de fonctions provenant d'une solution de l'équation de transport par la méthode des harmoniques sphériques, pour un cylindre fini en trois dimensions et d'une solution (semi-analytique) de l'équation de transport neutronique modifiée ne prenant en compte que les sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique.

4.1.1 SOLUTION DU FLUX SCALAIRE MOYEN

1) Notre stratégie emploie une solution semi-analytique de l'équation de Boltzmann (équation (3.9)) donnant le flux neutronique angulaire (Lewis et Miller, 1993, Davison, 1957), puisque les méthodes analytiques sont plutôt inefficaces en coordonnées cylindriques (Greenspan et *al*, 1968). L'équation (3.14) que nous avons répétée ici, correspond à cette solution semi-analytique.

2) Les approximations employées pour déterminer ce modèle analytique sont présentées dans la section 2.11.3.

3) Les termes suivants de l'équation (3.13) $e^{-(Da(V)\Sigma_a(E_n))} I_0(Db(V)\Sigma_a(E_n))$

proviennent des trois premiers termes de l'équation (3.9) qui est la solution de l'équation de transport neutronique par la méthode des harmoniques sphériques (Davison, 1957). Nous considérons que ces termes représentent la dépression du flux hors de l'échantillon selon les équations (2.39), (3.11) et (3.12).

4) D'autre part les deux termes exponentiels suivants

$$\Phi(r, z) = \Phi_{nom_{Max}} \left(R, \frac{H}{2} \right) e^{\left(\frac{e^{\left(-\left(\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) \right) \right)} \Sigma_a(E_n)(\rho - P)}{V} \right)} e^{\left(-\left(\lambda(r) + \frac{\Sigma_a(E_n)}{V} \right) \left(\frac{H}{2} - |z| \right) \right)}$$

(3.14)

sont solutions de l'équation de transport neutronique (2.31) pour laquelle nous supposons $\Sigma_s \ll \Sigma_a$ et des conditions frontières décrites par les équations (2.32) à (2.35). Le produit de ces deux termes exponentiels décrivent l'autoprotection.

5) La forme de la distribution radiale du flux neutronique angulaire provenant de la solution semi-analytique est la suivante,

$$\Phi_r = A e^{\left(\frac{e^{\left(-\left(\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) \right) \right)} \Sigma_a(E_n)(\rho - P)}{V} \right)} \quad (4.1),$$

où A représente le flux nominal du réacteur Slowpoke aux frontières de l'échantillon pour lequel un spectre d'énergie maxwellien lui est assigné. Nous définissons ici $\frac{\Sigma_a(E_n)}{V}$ de telle façon que ses unités soient cm^{-1} .

6) Afin de déterminer la valeur de $-\left(\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) \right)$ qui nous permet de représenter adéquatement l'autoprotection, nous avons d'abord recherché une expression de forme similaire à l'équation (4.1) contenant deux (2) coefficients B et C et une variable radiale indépendante adimensionnelle, r.

7) Nous avons défini cette variable adimensionnelle comme suit,

$$r = \frac{\rho}{P} \quad (4.2).$$

Par analogie avec les résultats expérimentaux de la perturbation du flux, nous avons supposé, que l'expression recherchée aurait une forme similaire à la distribution des valeurs expérimentales en fonction de $\Sigma_a(E_n)$ en rendant cette dernière variable adimensionnelle.

- 8) Nous avons donc établi une relation entre la variable r et la variable $\frac{\Sigma_a(E_n)}{V}$ afin qu'elle soit également adimensionnelle. Cette relation s'écrit donc,

$$r = \frac{\Sigma_a(E_n) P}{V} \quad (4.3)$$

ce qui a pour effet de seulement changer l'échelle de l'abscisse $\Sigma_a(E_n)$ par le facteur P , puisque nous n'utilisons dans ce cas que les résultats expérimentaux correspondants à $V = 1.0 \text{ cm}^3$.

- 9) L'expression analogue à la distribution radiale du flux angulaire (4.1) a été divisée par P qui est absorbé par le coefficient B , afin de changer la variable radiale ρ par la variable adimensionnelle r . L'équation (4.1) devient alors,

$$\Phi(r) = \frac{A e^{(e^{-Cr})} (r - 1)}{B} \quad (4.4)$$

- 10) La figure 4.1 montre cette expression approximative en fonction de r de même que les résultats expérimentaux en fonction de $\frac{\Sigma_a(E_n) P}{V}$. Les valeurs numériques de A , B et C de cette distribution radiale sont,

$$A = \frac{32}{69}, B = \frac{-10}{13}, C = \frac{5}{7}$$

respectivement. Il est important de noter ici que le rapport $\frac{\Sigma_a(E_n)}{V}$ a pour unités, cm^{-1} et ne correspond donc pas à la définition du rapport équivalent de Kennedy et Marcotte dont les unités sont moles-barns/ cm^3 . Nous pouvons

démontrer que le rapport entre ces 2 valeurs est $\frac{\Sigma_{a_{KM}}}{\Sigma_a(E_n)} = \frac{0.10 \cdot 10^{25}}{N_A} =$

1.660538729 .

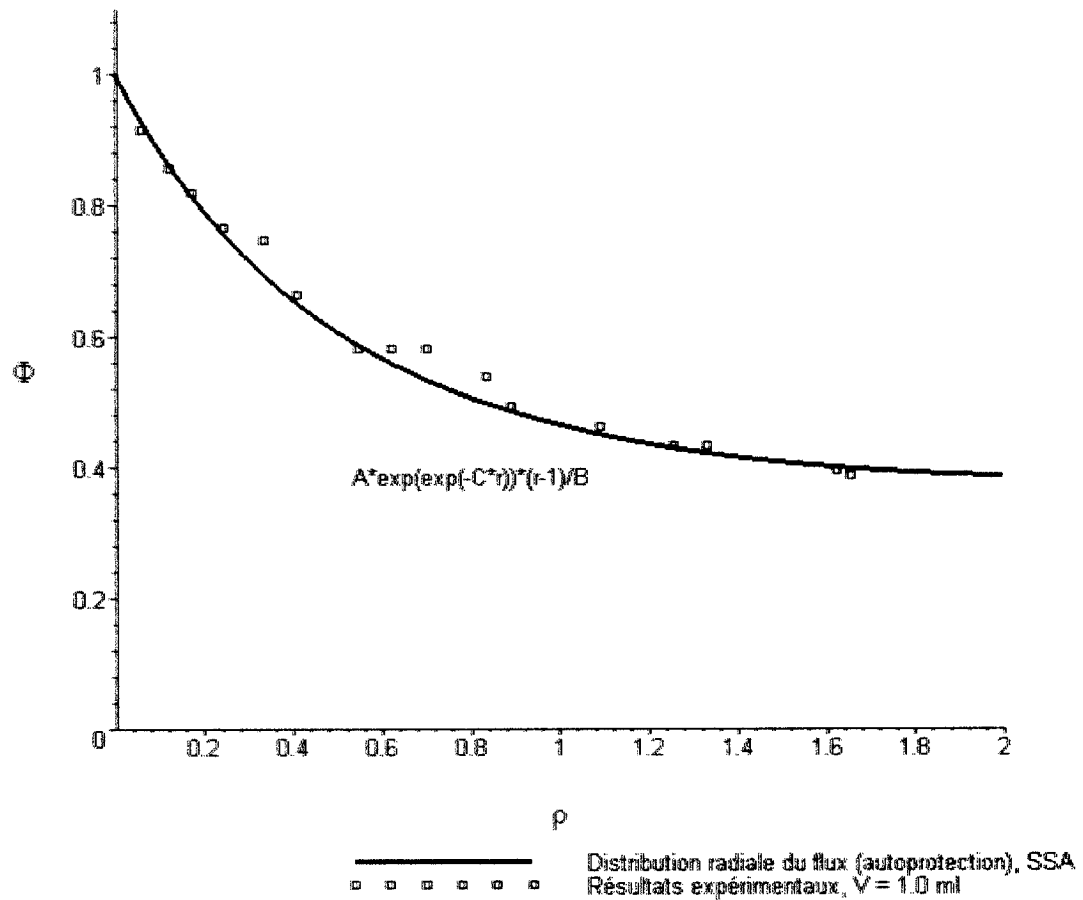


Figure 4.1 : Graphique de la distribution radiale du flux neutronique angulaire ou de l'autoprotection. La variable indépendante ρ mise pour r dans ce graphique est adimensionnelle. Elle représente à la fois $r = \frac{\rho}{P}$ et $r = \frac{\Sigma_a(E_n) P}{V}$. L'échelle originale de l'abscisse r pour $\Sigma_a(E_n)$ a été multipliée par P afin d'obtenir une variable adimensionnelle analogue à $\frac{\rho}{P}$.

- 12) Par analogie entre les expressions (4.1) et (4.4), les valeurs de B et C s'expriment alors de la façon suivante,

$$B = - \frac{V}{\Sigma_a(E_n) P}, \quad (4.5) \text{ et}$$

$$C = \frac{\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a)}{r} \quad (4.6)$$

- 13) En employant la variable $r = \frac{\Sigma_a(E_n) P}{V}$, la valeur de C s'écrit alors,

$$C = \frac{\left(\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) \right) V}{\Sigma_a(E_n) P} \quad (4.7).$$

En isolant $\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a)$, l'équation précédente devient

$$\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) = \frac{C \Sigma_a(E_n) P}{V} \quad (4.8).$$

- 13) Puisque la valeur approximative de C est 5/7, la dérivée devient alors,

$$\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) = \frac{5}{7} \frac{\Sigma_a(E_n) P}{V} \quad (4.9)$$

Dès lors, il est possible d'obtenir la valeur de

$$\lambda(\Sigma_a(E_n)) \text{ à une constante près soit, } \lambda(\Sigma_a(E_n)) = \frac{5}{14} \frac{P \Sigma_a(E_n)^2}{V} \quad (4.10)$$

- 14) En substituant les valeurs suivantes $P = 0.47$, $V = 1.0$ dans l'équation (4.9) en choisissant une valeur moyenne pour $\Sigma_a(E_n) = 2.5$ moles-barns que nous convertissons en moles-cm² en multipliant par 1.660538729, nous obtenons $\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) = 0.8392857144 \cdot 10^{-24}$ (4.10)

- 16) Puisque nous supposons que l'élément de référence est dilué par un facteur de 1.0E+06, nous obtenons finalement,

$$\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) = 9\text{E-}19. \quad (4.11)$$

Nous avons choisi de poser

$$\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a) = 1.0\text{E-}20 \quad (4.12)$$

pour l'élément de référence (aluminium) dans le modèle de la SSA afin de simplifier l'expression. Dans le cas des éléments étudiés nous avons posé pour leurs dérivées équivalentes la valeur 1.0, ce qui est équivalent à supposer une dilution de 1.0E-20 au lieu de 1.0E-06 pour l'élément de référence. Contrairement à Gonçalves (Gonçalves et *al*, 2001), nous avons constaté qu'une dilution de 1.0E-06 était insuffisante pour que la perturbation du flux atteigne une valeur convergente. En effet, en employant des valeurs inférieures à 1.0E-06, les valeurs de perturbation du flux n'atteignaient pas les mêmes valeurs que pour celles calculées avec un facteur de dilution de 1 million.

17) Puisque, les fonctions $\text{Da}(V)$ et $\text{Db}(V)$ sont ajustées par régressions non linéaires aux valeurs expérimentales de la perturbation du flux, l'emploi d'une valeur unitaire pour $\frac{d}{d\Sigma_a} \lambda(\Sigma_a)$ de l'expression de l'autoprotection est tout à fait justifiable.

18) En substituant la valeur de $\lambda(r)$ dans la distribution axiale du flux neutronique angulaire de la solution semi-analytique, nous obtenons la distribution axiale du flux neutronique

$$\Phi(\zeta) = e^{\left(-1/2 \frac{\Sigma_a(E_n) \left(1 + \frac{r}{10} \right) H(1 - |\zeta|)}{V} \right)} \quad (4.13)$$

19) Par analogie au traitement de la distribution radiale, nous définissons la variable adimensionnelle ζ de deux façons

$$\zeta = \frac{2z}{H} \quad (4.14) \text{ et}$$

$$\zeta = \frac{1}{2} \frac{\Sigma_a(E_n) H}{V} \quad (4.15)$$

En négligeant $r/10$ par rapport à 1, l'équation (4.13) devient

$$\Phi(\zeta) = e^{\left(-1/2 \frac{\Sigma_a(E_n) H (1 - |\zeta|)}{V} \right)} \quad (4.16)$$

20) En substituant l'équation (4.15) dans l'équation (4.16), nous obtenons l'expression suivante,

$$\Phi(\zeta) = e^{(-\zeta (1 - |\zeta|))} \quad (4.17)$$

21) La forme finale de l'expression du flux neutronique angulaire dans l'échantillon exprimée selon les variables adimensionnelles définies r et ζ prend donc la forme suivante,

$$\Phi(r, \zeta, \Omega, E_n) =$$

$$\frac{1}{2} \Phi_{nom_{Max}} \left(P, \frac{H}{2}, \Omega, E_n \right) e^{(D_a(V) \Sigma_a(E_n))} I_0(D_b(V) \Sigma_a(E_n)) e^{\left(-\frac{r}{10} \right) (r-1)} e^{(-\zeta (1 - |\zeta|))} \quad (4.18).$$

La figure 4.2 présente les distributions radiale et axiale de l'autoprotection selon cette expression.

22)

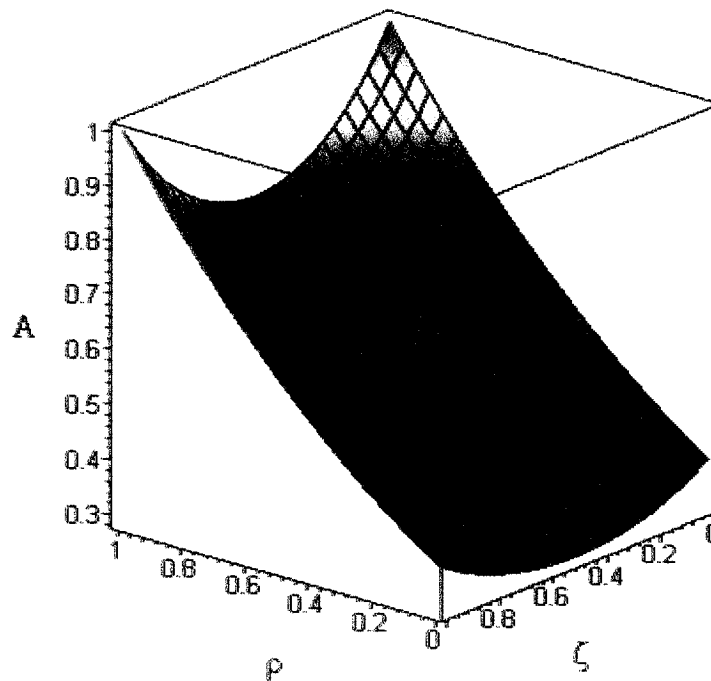


Figure 4.2 : Distributions radiale et axiale selon ρ mis pour la variable adimensionnelle r et selon ζ , de l'autoprotection dans un échantillon de 1.0 ml ayant une section efficace macroscopique volumique $\frac{\Sigma_a(E_n)}{V} = 2.5$ moles-barns/ml.

23) La perturbation du flux dépend directement du rapport de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique (De Soete et al, 1972, Gonçalves et al, 2001, Hébert, 2005) et du volume de l'échantillon.

24) Dans ce modèle semi-analytique, nous ne traitons que les neutrons thermiques. Nous supposons que leur spectre d'énergie est maxwellien (équation (2.2)). Nous incluons cette distribution dans le terme imposé (3.14) et (4.15) aux frontières de

l'échantillon $\psi_{nom_Max}\left(P, \frac{H}{2}, \Omega, E_n\right)$. Ce dernier terme correspond au flux scalaire nominal en supposant une distribution isotrope dans le référentiel du laboratoire. Le terme de source des neutrons est ainsi remplacé de façon équivalente (Case et al, 1953) par ces conditions frontières fixes aux surfaces limites de l'échantillon. Elle comprend les neutrons de fission, les neutrons de ralentissement et les neutrons ayant subis des collisions élastiques.

25) Nous imposons le flux scalaire nominal aux frontières de l'échantillon plutôt qu'à une distance extrapolée par correction de transport. Ceci entraîne que la manifestation de la dépression du flux neutronique est contrainte à l'intérieur de l'échantillon. Nous appliquons des conditions frontières de Mark, compatibles à la solution par les harmoniques sphériques de Davison.

26) Les sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique sont obtenues par des régressions non linéaires des données $(E_n, \sigma_{a_j}(E_n))$ du fichier ENDF-B-VI pour chacun des éléments j dans la plage d'énergie des neutrons thermiques. Nous avons posé que les sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique soient du type $\frac{1}{\sqrt{E_n}}$ (équation (2.13)). Les coefficients de régression proviennent du tableau 2.2.

27) La discrétisation de l'énergie neutronique E_n a été réalisée en utilisant

$$\text{l'expression suivante } E_l = \frac{0.2 (1 + (l - 1) H)}{L} . \quad (4.19)$$

28) Le paramètre l est un indice qui varie de 1 à 100 et qui identifie l'intervalle correspondant de l'énergie neutronique. Nous avons donc subdivisé la plage des

neutrons thermiques [0,0.2] eV en 100 intervalles de 2 meV chacun. Le paramètre L est égal à 100 et ll correspond à la largeur de l'intervalle soit 0.002 eV.

29) La quadrature de l'énergie neutronique pour le flux scalaire a été faite selon

l'expression suivante $\phi_{moy_{sum_j}} = \frac{\sum_{lc=1}^{LL} (2 \pi (E_{lc} - E_{lc-1}) \phi_{scal_{moy_j}}(E_{lc}))}{\sum_{ld=1}^{LL} (2 \pi (E_{ld} - E_{ld-1}))} . (4.20)$

30) Nous avons utilisé les résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et al, 1984) qui ont mesuré la perturbation du flux neutronique scalaire. Celle-ci est l'effet combiné de la dépression du flux et de l'autoprotection. En comparant les courbes de perturbation du flux provenant du modèle semi-analytique aux valeurs expérimentales, nous avons ajusté les fonctions Da(V) et Db(V) de l'expression de la dépression du flux de façon à obtenir des écarts minimums entre celles-ci.

31) Ces comparaisons furent réalisées pour chacun des sept éléments choisis et chacun des trois volumes expérimentaux de 0.5, 1.0 et 1.3 ml.

32) Afin de calculer la perturbation du flux de façon similaire à la définition employée pour les résultats expérimentaux, nous avons déterminé les rapports

$$P(\Sigma_a, V) = \frac{\phi_{moy_{sum_j}}}{\phi_{moy_{sum_{Al}}}} . \text{ Le flux scalaire de référence au dénominateur est celui}$$

correspondant à l'aluminium qui a une section efficace microscopique d'absorption neutronique similaire à celle du Na₂₃ employée durant les expériences.

- 33) L'analyse des résultats expérimentaux nous a permis d'obtenir deux corrélations générales précises des résultats expérimentaux en fonction de $\Sigma_a(E_n)$ de l'échantillon et de son volume.

4.2 NEUTRONS THERMIQUES ET QUADRATURE DE L'ÉNERGIE CINÉTIQUE DES NEUTRONS

4.2.1 NEUTRONS THERMIQUES

La corrélation globale modifiée (2^e corrélation) et le modèle semi-analytique supposent a priori que le spectre d'énergie est maxwellien (Westcott, 1960, Rossito et *al*, 1972, Kennedy et Pearce, 1962). De plus, cette corrélation et ce modèle comprennent des sections efficaces microscopiques de capture neutronique qui sont exclusivement fonction de l'énergie cinétique des neutrons thermiques.

4.2.2 SPECTRE D'ENERGIE ET DISCRETISATION

Notre approche consiste à discrétiser l'ensemble des énergies cinétiques des neutrons thermiques des sites internes en supposant qu'ils soient parfaitement thermalisés et que leur spectre d'énergie suit donc la distribution de Maxwell. La largeur des intervalles d'énergies détermine la résolution énergétique et contribue à la précision du modèle de transport neutronique.

Cette discrétisation de l'énergie est également appliquée aux sections efficaces macroscopiques de capture neutronique radiative de façon à combiner les facteurs spatiaux et énergétiques pour déterminer la perturbation du flux.

4.2.2.1 METHODE DE DISCRETISATION DE L'ENERGIE

L'équation employée pour adapter le calcul du spectre d'énergie continu aux valeurs discrètes de façon à couvrir toute la plage continue est la suivante,

$$E_l = \frac{0.2 (1 + (l - 1) ll)}{L}, \quad (4.21)$$

avec

$$LL = \frac{LM - 1}{ll} + 1. \quad (4.22)$$

Les indices et variables sont décrits de la façon suivante.

l : indice identifiant un intervalle d'énergie donné

l_{moy} : indice correspondant à l'intervalle d'énergie comprenant l'énergie neutronique la plus probable, 0,0253 eV

E_l : Énergie cinétique neutronique discrète selon l'indice l décrivant l'intervalle d'énergie

$E_{l_{moy}}$: Énergie cinétique la plus probable en eV

ll : Il s'agit de la largeur de l'intervalle d'énergie en eV

L : Le nombre maximal d'intervalles en nombres entiers. Dans notre cas, $L=100$.

L est aussi l'indice final.

LL : Nombre distinct d'intervalles d'énergie

LM : Pourcentage de couverture de la plage thermique

La relation de discrétisation permet d'établir une valeur d'énergie (0,0260 eV) proche de l'énergie la plus probable (0,0253 eV) de la plage thermique. Le tableau 4.1 présente les paramètres des énergies discrètes.

Tableau 4.1 : Paramètres des énergies discrètes

LL (nombre d'intervalles distincts d'énergie)	II	l_{moy} indice correspondant à l'énergie 'moyenne' note (1)	$E_{l_{moy}}$ Valeurs de l'énergie moyenne en eV note (1)	LM (% de couverture de la plage thermique) note (2)
5	24	2	0,0260	97
9	12	2	0,0260	97
15	7	3	0,0300	99
25	4	4	0,0260	97
50	2	4	0,0260	99
100	1	13	0,0260	100

Note 1 : l'énergie thermique la plus probable à 20 C est de 0,0253eV.

Note 2 : la plage d'énergie thermique est de 0 à 0,2 eV.

Selon le tableau (4.1), cette forme de discrétisation d'énergie permet de couvrir au moins 97 % de la plage totale d'énergie des neutrons thermiques. Les nombres d'intervalles peuvent varier de 5 à 100 et sont ainsi choisis dans le tableau 4.1 pour les différents modèles, car ils sont des valeurs optimales. Ainsi, à l'exception du cas comportant 15 intervalles, la valeur de l'énergie la plus probable obtenue pour les neutrons thermiques est de 0.0260 eV qui est très rapprochée de la valeur nominale de 0.0253 eV. Ces nombres sont en fait des compromis entre des valeurs maximales favorisant la précision et des contraintes de durées des calculs. Ces nombres ont été sélectionnés après plusieurs essais pour chacun des modèles.

Pour le modèle du cylindre fini à deux dimensions spatiales (r, z), selon la méthode des ordonnées discrètes, neuf (9) intervalles d'énergies furent sélectionnés. Il s'agit, du plus petit nombre d'intervalles employés, mais il est justifié par le fait que la durée des calculs était de l'ordre de quelques heures et que les résultats obtenus avaient un écart d'environ 2 % par rapport aux résultats expérimentaux. Puisque plusieurs auteurs (Gonçalves et *al*, 2001, Mo et *al*, 1987, Eastwood et *al*, 1962, Rossito et *al*, 1972, Mc Garry et *al*, 1986, Kennedy et *al*, 1984, Kumpf, 1986) rapportaient des

pourcentages d'erreur de cet ordre de grandeur, nous étions justifiés d'appliquer cette contrainte.

Le modèle de transport neutronique misant sur la solution semi-analytique du flux neutronique angulaire fait appel à une quadrature de l'énergie sur cent intervalles d'énergie du modèle semi-analytique.

4.2.2.2 QUADRATURE SUR LE SPECTRE D'ENERGIE

Les quadratures sont des méthodes numériques approximatives pour calculer le résultat d'une intégrale d'une fonction $F(E)$ quelconque. Il s'agit dans ce cas de discrétiser la variable indépendante continue E en valeurs discrètes selon un schème quelconque. À titre d'exemple, nous pouvons diviser la plage continue totale pour E en N intervalles de largeurs L/N . De façon générale une quadrature a la forme suivante (Abramowitz et Stegun, 1972, Chandrasekhar, 1950),

$$\int_{E_0}^{E_L} F(E) dE = \sum_{i=1}^N w_i F(E_i) , (4.23)$$

où w_i est un poids qui est dans notre cas égal à la largeur d'un intervalle défini par

$$\Delta(E_{i+1}) = E_{i+1} - E_i .$$

La figure 4.3 présente le spectre d'énergie des neutrons thermiques du flux scalaire, pour des noyaux d'or ayant une concentration équivalente à $\Sigma_a = 2.5$ moles-b, à $z=0$, et à $r=R/2$.

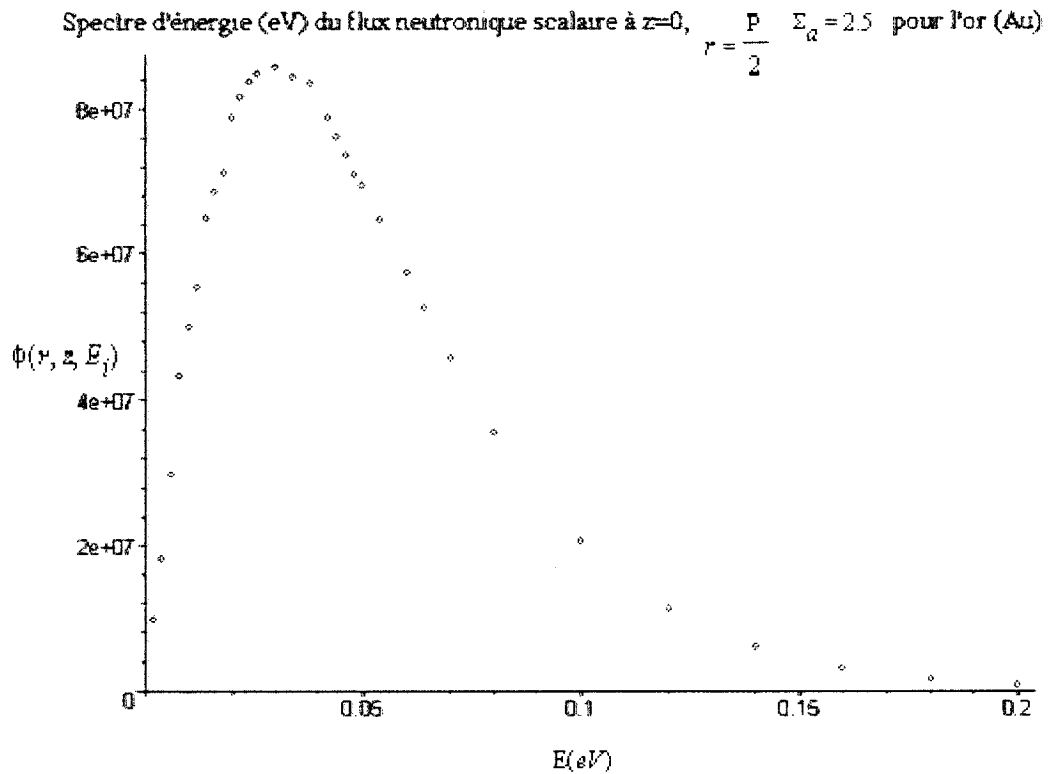


Figure 4.3 : Graphique du spectre d'énergie du flux neutronique scalaire pour des noyaux d'or ayant une concentration équivalente de $\Sigma_a = 2.5$ moles-barns, à la position $(\rho = \frac{P}{2}, z = 0)$. Le flux neutronique scalaire provient du modèle semi-analytique, pour lequel le spectre d'énergie est maxwellien et l'amplitude aux frontières ($1.0E+12$ n/cm²/s) est égale à celle du flux nominal du réacteur Slowpoke.

4.2.2.3 METHODE DE CALCUL DE LA PERTURBATION DU FLUX PAR LA SOLUTION SEMI-ANALYTIQUE

Le code de calcul débute par la sélection des coefficients de a à h des expressions $-(a-b*(V-c)^d)$ de $Da(V)$ et $e-f*(V-g)^h$ de $Db(V)$ de l'équation pour la dépression du flux (3.15) à itérer conjointement avec les facteurs requis pour calculer l'autoprotection.

Les propriétés physiques, masse volumique, densité, masse atomique, le nombre de protons Z , le nombre de neutrons N et le nombre de nucléons A sont ensuite insérées dans le code. Puis, les sections efficaces macroscopiques de capture neutronique radiative en fonction de l'énergie cinétique (2.13) sont calculées à partir des données disponibles dans le tableau 2.2. Ces données du tableau 2.2 ont été obtenues par des régressions non linéaires de données provenant du fichier de données ENDF-B-VI.

Les sections efficaces microscopiques de diffusion sont également calculées. Par la suite, le code calcule $\frac{\Sigma_a(E_n)}{V_i}$ selon la définition de Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984) pour chacun des 3 volumes (0.5, 1.0 et 1.3 ml), pour un volume général $V_4 := \pi r^2 z$ et chacun des 7 éléments (B, Cl, Mn, Fe, Co, Cu, Au) analysés.

Le code de calcul poursuit l'exécution de ses processus à l'aide d'une boucle de calcul des quadratures de l'énergie pour les rapports de flux angulaires dépendants des sections efficaces macroscopiques elles-mêmes fonctions de l'énergie discrète E_n des neutrons.

L'étape suivante consiste à formuler l'expression pour la distribution d'énergie des neutrons thermiques de Maxwell, selon l'équation (2.2).

Puis, des calculs des flux angulaires isotropes d'un élément j pour chacun des 4 volumes prédéterminés sont réalisés en combinant l'autoprotection et la dépression du flux, selon l'expression (4.18).

La prochaine étape consiste à calculer le flux scalaire, en supposant une distribution isotrope du flux angulaire dans le référentiel du laboratoire.

Puisque la définition de la perturbation du flux requiert la valeur moyenne dans l'espace de l'échantillon du flux scalaire, l'équation (2.1) est alors employée pour compléter cette étape analytiquement, à l'exception de la moyenne selon θ et E_n .

L'intégration selon la variable θ est omise, puisque nous considérons la distribution du flux uniforme selon l'angle θ .

Toutefois, il faut noter que puisque ce calcul se déroule dans la boucle de quadratures d'énergie neutronique, la valeur finale du flux scalaire est également moyennée numériquement par quadratures selon la variable E_n par l'équation (4.20). Ainsi, la valeur finale du flux scalaire est moyennée selon toutes les variables spatiales et énergétiques pertinentes.

L'étape suivante est le calcul de la perturbation du flux de l'échantillon de l'élément j , de volume V_j et ayant une concentration variable $\frac{\Sigma_a(E_n)}{V_j}$, selon l'équation (2.40) de l'approche de Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984).

Finalement, le code de calcul semi-analytique exécute des énoncés pour la préparation de divers graphiques. Un des graphiques importants affiche les courbes correspondantes à la solution semi-analytique de la perturbation du flux avec les facteurs de la dépression du flux $Da(V)$ et $Db(V)$, les résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte, (Kennedy et Marcotte, 1984) de même que la 1^{re} corrélation globale des résultats expérimentaux.

Ces trois séries de résultats nous permettent de juger des écarts entre les résultats d'une itération de la solution semi-analytique de la perturbation du flux avec les valeurs expérimentales.

4.3 CALCUL DE LA DÉPRESSION DU FLUX SCALAIRE POUR LES TROIS VOLUMES D'ÉCHANTILLON

4.3.1 CALCUL DE LA DÉPRESSION DU FLUX PAR LA MÉTHODE SEMI-ANALYTIQUE

Le modèle de transport neutronique (SSA) détermine dans le code de calcul correspondant le rapport $\frac{\phi_{moy_j}}{\phi_{moy_{réf}}}$ (2.40) de la perturbation du flux obtenu

expérimentalement (Kennedy et Marcotte, 1984), selon l'équation (2,1). Il définit également la perturbation du flux par la relation suivante (De Soete et al, 1972),

$$P(\Sigma_a(E_n), V) = Dp(\Sigma_a(E_n), V) A(\Sigma_a(E_n), V) . \quad (4.24)$$

car il s'exprime à partir du flux de l'élément de référence $\phi_{moy_{réf}}$ et du flux scalaire neutronique moyen ϕ_{moy_j} de l'élément j. L'élément de référence utilisé pour établir la perturbation du flux expérimental était une très faible concentration de Na-23 sous la forme de NaCl dans une solution de sucre.

Dans notre cas, nous employons l'aluminium (Al) comme élément de référence avec une concentration de $1E-20$ fois sa masse volumique de $2,6989 \text{ g/cm}^3$, soit $2,6989E-20 \text{ g/cm}^3$. De plus, la section efficace de capture neutronique radiative de l'aluminium à $0,0253 \text{ eV}$ est inférieure à celui du Na-23. La figure 2.3 montre cette section efficace microscopique de capture neutronique radiative pour l'aluminium en fonction de l'énergie cinétique des neutrons.

Puisque le modèle semi-analytique de transport neutronique ne couvre strictement que l'espace de l'échantillon, les phénomènes d'autoprotection et de dépression du flux se chevauchent géométriquement dans l'échantillon au lieu d'être séparés. Ainsi, les courbes d'autoprotection, de dépression du flux et de perturbation du flux en fonction de l'une des coordonnées ρ ou z présentent des profils non physiques. Toutefois, ces courbes présentent une image approximative utile des phénomènes en cause.

L'équation (2.37) $D_p = \frac{\phi_{CF}}{\phi_L}$ définit la dépression du flux neutronique. Nous pouvons déduire des équations (2.38) et (2.40), que $\phi_L = \phi_{nom}$ (2.41) et donc, que l'équation de la dépression du flux peut aussi être écrite sous la forme suivante,

$$D_p = \frac{\phi_{CF}}{\phi_{nom}} \quad (4.25)$$

où ϕ_{CF} représente le flux neutronique scalaire à la surface externe de l'échantillon cylindrique.

L'équation (3.15) décrit également la dépression du flux dépendante des coefficients $Da(V)$ et $Db(V)$. Ces coefficients sont des fonctions du volume de l'échantillon qu'il nous faut déterminer par régressions non linéaires afin de pouvoir obtenir l'expression finale de la dépression du flux neutronique.

4.3.2 RÉGRESSIONS NON LINÉAIRES DE LA DÉPRESSION DU FLUX EN FONCTION DE LA SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE DE CAPTURE NEUTRONIQUE

Nous avons conçu un code de calcul « Calcul depflux » afin de réaliser des régressions non linéaires (Press et *al*, 1992) pour déterminer la dépression du flux en fonction de Σ_a . Voici une description générale de ce processus.

La méthode itérative est en réalité une méthode d'essais et erreurs par laquelle nous déterminons les valeurs de $Da(V)$ et $Db(V)$ pour chacun des 7 éléments et pour chacun des 3 volumes étudiés. Pour chacun des cas particuliers, nous supposons initialement des valeurs numériques distinctes pour $Da(V)$ et $Db(V)$. Ensuite nous exécutons le code de calcul semi-analytique afin de pouvoir comparer les écarts entre les valeurs simulées et les valeurs expérimentales.

En nous basant sur notre jugement visuel, nous tentons de minimiser l'écart moyen et les écarts entre la SSA et chacun des points expérimentaux en variant les valeurs numériques de $Da(V)$ ou $Db(V)$. Par la suite, nous exécutons une analyse statistique de ces écarts, pour finalement tabuler l'ensemble de ces résultats sous la forme d'un fichier de données.

L'étape suivante consiste à déterminer la valeur moyenne de $Da(V)$ et $Db(V)$ des 7 éléments pour chacun des trois volumes. Par la suite, nous créons un graphique de ces deux séries de 3 valeurs moyennes en fonction du volume pour $Da(V)$ de même que pour $Db(V)$.

Puis, nous estimons les coefficients d'une corrélation complexe de chacune de ces fonctions du volume de façon à ce que l'écart entre la courbe de cette corrélation et les valeurs moyennes précédemment obtenues soit aussi faibles que possibles.

Finalement, nous réalisons une analyse statistique de ces écarts afin d'avoir un critère objectif de la qualité de ces corrélations pour $Da(v)$ et $Db(V)$.

- a) Les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ sont déterminées par régressions non linéaires selon une corrélation polynomiale complexe dépendante de V , des valeurs numériques satisfaisantes moyennes obtenues pour les 7 éléments, pour chacun des volumes.
- b) Ces régressions non linéaires sont réalisées en deux étapes. D'abord, il faut déterminer les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$, avec V_c , une valeur constante (0.5, 1.0 et 1.3 ml), alors que Σ_a est la variable indépendante sur laquelle repose la régression. Nous obtenons ainsi une suite de valeurs pour chacun des trois volumes expérimentaux étudiés.
- c) Ensuite, nous calculons les valeurs moyennes de $Da(V)$ et $Db(V)$ des sept éléments pour chacun des trois volumes.
- d) Ainsi pour chacune des fonctions $Da(V)$ ou $Db(V)$ nous avons trois valeurs distinctes correspondant chacune à l'un des trois volumes étudiés.

4.3.2.1 RÉGRESSIONS DES FONCTIONS $Da(V)$ ET $Db(V)$ EN FONCTION DES PROPRIÉTÉS DES ÉLÉMENTS

Contrairement à la démarche réalisée au chapitre 3 afin de seulement déterminer les fonctions $Da(V)$ et $Db(V)$, ici nous tentons d'établir des relations entre ces fonctions et plusieurs propriétés physiques des sept éléments concernés.

De plus, alors que les régressions non linéaires de la perturbation du flux réalisées au chapitre 3 faisaient appel à une corrélation relativement simple (3.15)

constituée de deux fonctions caractéristiques ($e^{(D_a(V) \Sigma_a(E_n))} I_0(D_b(V) \Sigma_a(E_n))$) des trois premiers termes de la solution par la méthode des harmoniques sphériques, ici l'expression contenant ces fonctions analogues est une solution semi-analytique de l'équation de transport combinant la méthode des harmoniques sphériques, mais également une solution analytique de l'équation de Boltzmann, pour laquelle les sections efficaces macroscopiques de diffusion sont négligées. Il en résulte une solution semi-analytique plus complexe (4.18) que celle employée au chapitre 3.

- a) D'autres facteurs possibles envisagés pour mieux représenter la dépression du flux sont les propriétés physiques des éléments concernés. Nous avons donc envisagé la possibilité que les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ puissent dépendre également d'au moins une propriété d'un élément considéré. Initialement, nous avons donc déterminé les valeurs de ces fonctions pour chacun des volumes donnés et pour chacun des éléments (B, Cl, Mn, Fe, Co, Cu, Au) analysés.
- b) Les propriétés physiques considérées sont la masse volumique ou la densité, le numéro atomique, la section efficace microscopique de capture neutronique radiative et finalement le rapport entre la section efficace microscopique de diffusion et de la section microscopique d'absorption neutronique.
- c) Malgré de nombreuses tentatives pour établir des relations entre les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ de chaque élément et l'ensemble de leurs propriétés physiques, nous n'avons pas été en mesure de trouver de relations vraisemblables entre celles-ci. Ce résultat est cohérent avec le caractère universel des courbes de perturbation du flux obtenues par Kennedy (Kennedy et Marcotte, 1984) et Gonçalves (Gonçalves et al, 2001).
- d) Nous avons donc choisi de considérer les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ indépendantes des propriétés des éléments. Cette conclusion nous permet de supposer que pour un

volume donné (0.5, 1.0 et 1.3 ml), les valeurs moyennes de $D_a(V)$ et $D_b(V)$ de tous les éléments étudiés représentent adéquatement ces coefficients fonction du volume.

- e) Nous avons d'ailleurs constaté que pour un volume donné, les écarts entre les valeurs de $D_a(V)$ et $D_b(V)$ des sept éléments et les deux valeurs moyennes sont faibles. Ceci signifie que les valeurs de $D_a(V)$ et $D_b(V)$ sont peu dispersées autour de leurs valeurs moyennes. Ceci supporte encore une fois le caractère universel de la courbe de la perturbation du flux.
- f) L'étape suivante consiste nécessairement à réaliser des régressions non linéaires sur les fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ selon l'un des trois volumes comme variable indépendante pour chacun des sept éléments. Il faut toutefois noter ici que même si les régressions non linéaires itératives changent les valeurs de $D_a(V)$ et $D_b(V)$ tout comme pour les corrélations du chapitre 3, l'expression globale dont nous devons minimiser les écarts avec les résultats expérimentaux était l'équation (4.18) du modèle de la SSA.
- h) Nous avons choisi les valeurs $D_a(v)$ et $D_b(V)$ de l'or pour représenter l'ensemble des éléments pour chacun des volumes. Ses valeurs sont les plus rapprochées des valeurs moyennes parmi tous les éléments, pour les trois volumes étudiés.
- i) Les valeurs de $D_a(V)$ et $D_b(V)$ sont obtenues par itérations de la façon suivante :
 - 1) Pour un élément j donné, poser des valeurs initiales de $D_a(V)$ et $D_b(V)$.
 - 2) Calculer la perturbation du flux de l'élément j , en fonction de Σ_a par SSA pour un volume i donné, à partir de ces valeurs initiales. De façon générale, la relation à déterminer est la suivante,

$$P(\Sigma_j(E_n), V) = P(\Sigma_j(E_n), Da(V), Db(V)) \quad (4.26).$$

- 3) Tracer la courbe de la perturbation du flux de l'élément j pour le volume i et les points expérimentaux correspondants au volume i sur un même graphique.
- 4) Comparer la courbe de la perturbation du flux obtenue par la SSA de l'élément j pour le volume i aux points expérimentaux correspondants au même volume i.
- 5) Juger des écarts entre la courbe de la perturbation du flux et les points expérimentaux. Si les écarts semblent très petits, faire une analyse statistique de ces écarts par rapport à zéro.
- 6) Si la moyenne des écarts est inférieure à 1 % et que l'écart-type est inférieur à 1,5 % et que la valeur absolue du coefficient de régression est supérieure à 0.90, alors la régression non linéaire est terminée pour $Da(V)$ et $Db(V)$ de l'élément j, pour le volume i. Parfois, des itérations supplémentaires peuvent être exécutées afin d'obtenir un écart moyen ou un écart type le plus petit possible.
- 7) Sinon, lorsque la courbe de la perturbation du flux de l'élément j, pour le volume i est en moyenne plus élevée que les points expérimentaux, augmenter la valeur de $D_a(V)$ (Figure 4.4) ou diminuer la valeur de $D_b(V)$ (voir figure 4.5).
- 8) Sinon, lorsque la courbe de la perturbation du flux est en moyenne moins élevée que les points expérimentaux, diminuer la valeur de $D_a(V)$ (Figure 4.4) ou augmenter la valeur de $D_b(V)$ (voir figure 4.5).

- 9) Des valeurs relativement élevées de la fonction $D_a(V)$ tendent à augmenter la dépression du flux et donc à diminuer la valeur numérique de la perturbation du flux, $P(\Sigma_a, V)$.
- 10) Au contraire, des valeurs relativement petites de $D_a(V)$ tendent à diminuer la dépression du flux et la perturbation du flux et donc à augmenter la valeur numérique de la perturbation du flux $P(\Sigma_a, V)$.
- 11) Lorsque le rapport $\frac{D_b(V)}{D_a(V)}$ est supérieur à une certaine valeur « critique », la dépression du flux et la perturbation ne sont plus des fonctions décroissantes monotones (voir figure 4.6). Ceci signifie que la dépression du flux et la perturbation du flux passent par un minimum avant d'augmenter de nouveau pour des valeurs élevées de Σ_a . L'explication de cette valeur « critique » est que la fonction $e^{(D_a(V) \Sigma_a)}$ est décroissante alors que $I_0(D_b(V) \Sigma_a)$ est croissante en fonction de Σ_a . Notre objectif est d'obtenir une valeur de la fonction $D_b(V)$ la plus élevée possible sans que la perturbation du flux n'augmente aux valeurs élevées de Σ_a . Cette dernière contrainte nous assure d'une certaine cohérence pour l'ensemble des résultats de tous les éléments. Cependant, cette approche réduit la validité d'extrapoler la perturbation du flux pour des valeurs de $\Sigma_a > 5$.
- 12) Les augmentations de la fonction $D_b(V)$ tendent à faire fléchir la partie la plus basse de la courbe vers le haut (figures 4.5 et 4.6).
- 13) Lorsque des valeurs satisfaisantes de $D_a(V)$ et $D_b(V)$ ont été obtenues pour le volume i de l'élément j , alors reprendre le processus pour

l'élément j et le volume $i+1$.

- 14) Lorsque des valeurs satisfaisantes de $Da(V)$ et $Db(V)$ ont été obtenues pour tous les volumes de l'élément j , alors reprendre le processus avec l'élément $j+1$ et le volume i .
- 15) Lorsque des valeurs satisfaisantes de $Da(V)$ et $Db(V)$ pour tous les volumes i de tous les éléments j , alors calculer pour chacun des volumes i , les valeurs moyennes et les écarts types de $Da(V)$ et $Db(V)$ pour les tous les éléments j , de $j = 1 \dots 7$.

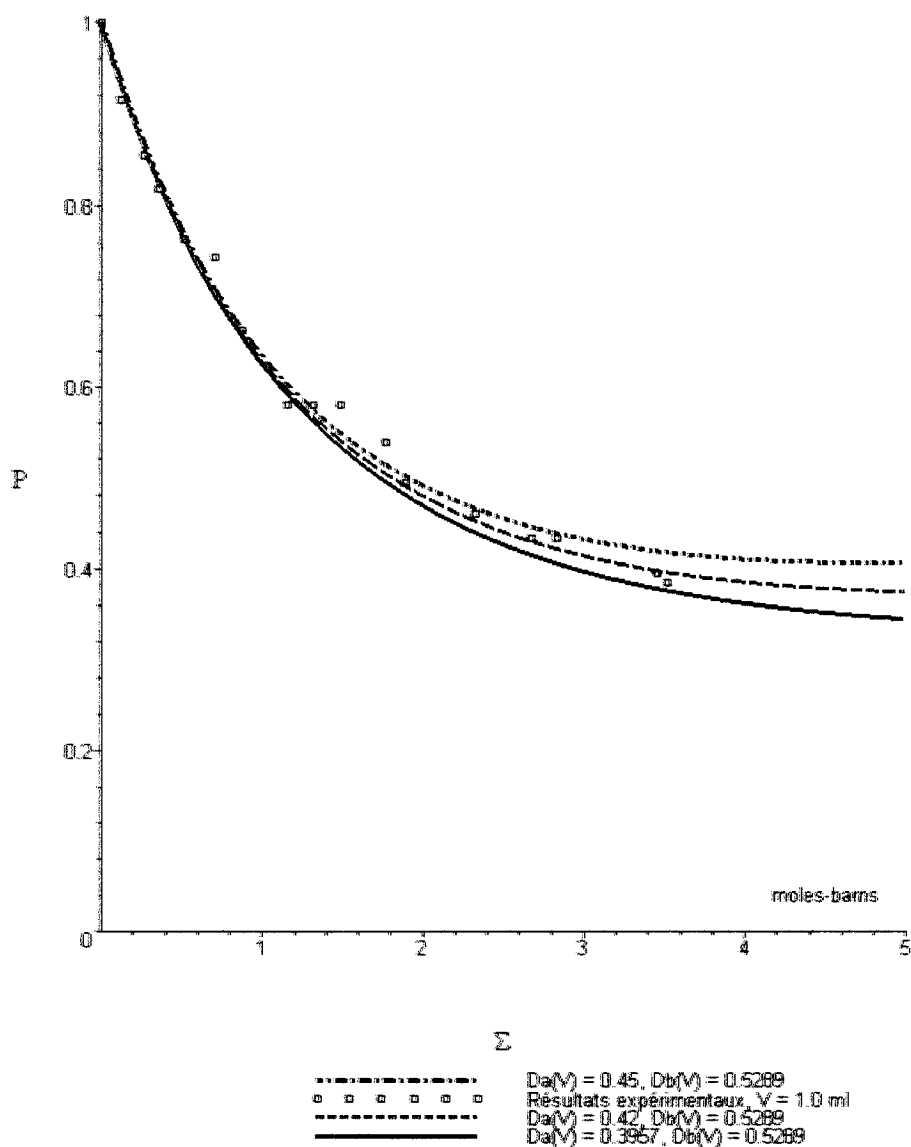


Figure 4.4 : Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour un volume d'échantillon de 1 ml présentant trois courbes ayant des paramètres $Da(V)$ différents, alors que les paramètres $Db(V)$ sont constants à 0,5289. Nous constatons qu'une augmentation de $Da(V)$ rapproche la courbe de la perturbation du flux vers les résultats expérimentaux qui ont des valeurs inférieures aux courbes.

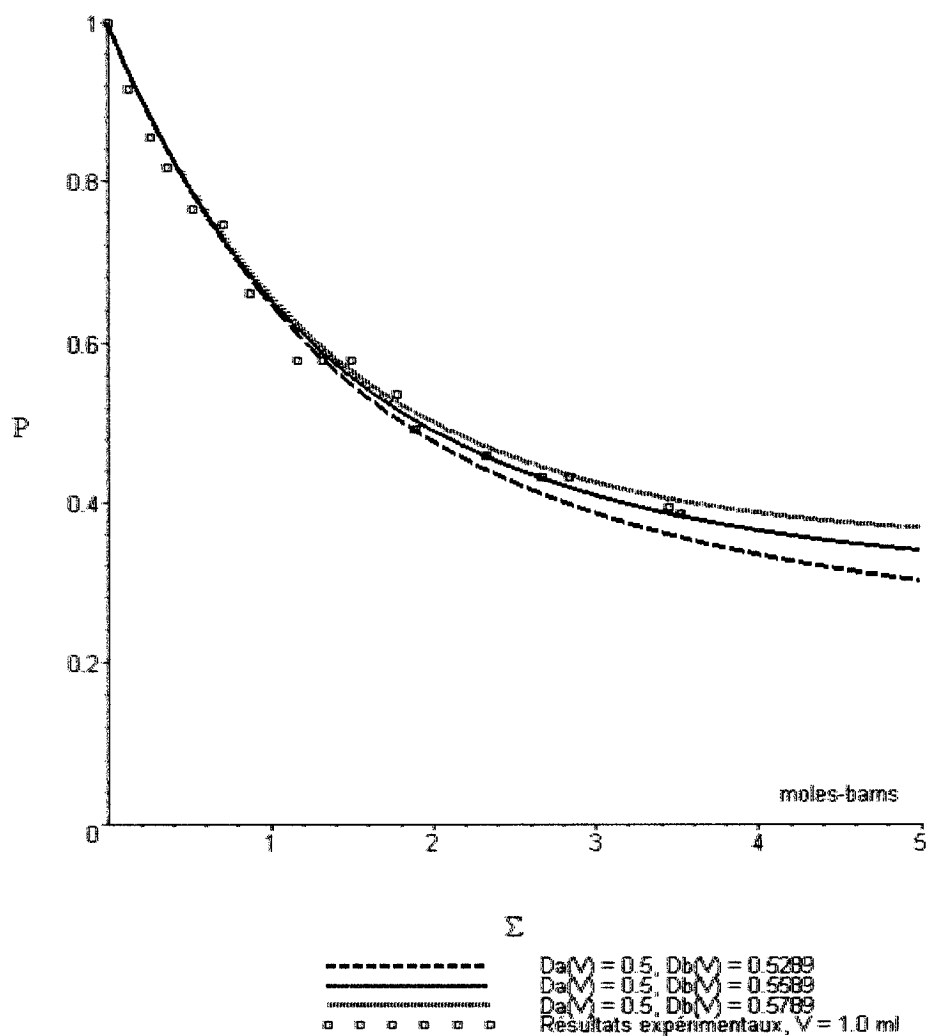


Figure 4.5 : Le graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour un volume d'échantillon de 1 ml présente trois courbes ayant des paramètres $Db(V)$ différents, alors que les paramètres $Da(V)$ sont constants à -0.5. Nous constatons qu'une augmentation de $Db(V)$ fléchit l'extrémité de la courbe ($3 < \Sigma_a$) de la perturbation du flux vers le haut. Dans ce cas particulier, c'est la valeur médiane de $Db(V)$ qui donne la courbe la plus rapprochée des résultats expérimentaux. En résumé, une augmentation de $Db(V)$ tend à faire fléchir l'extrémité droite de la courbe vers le haut.

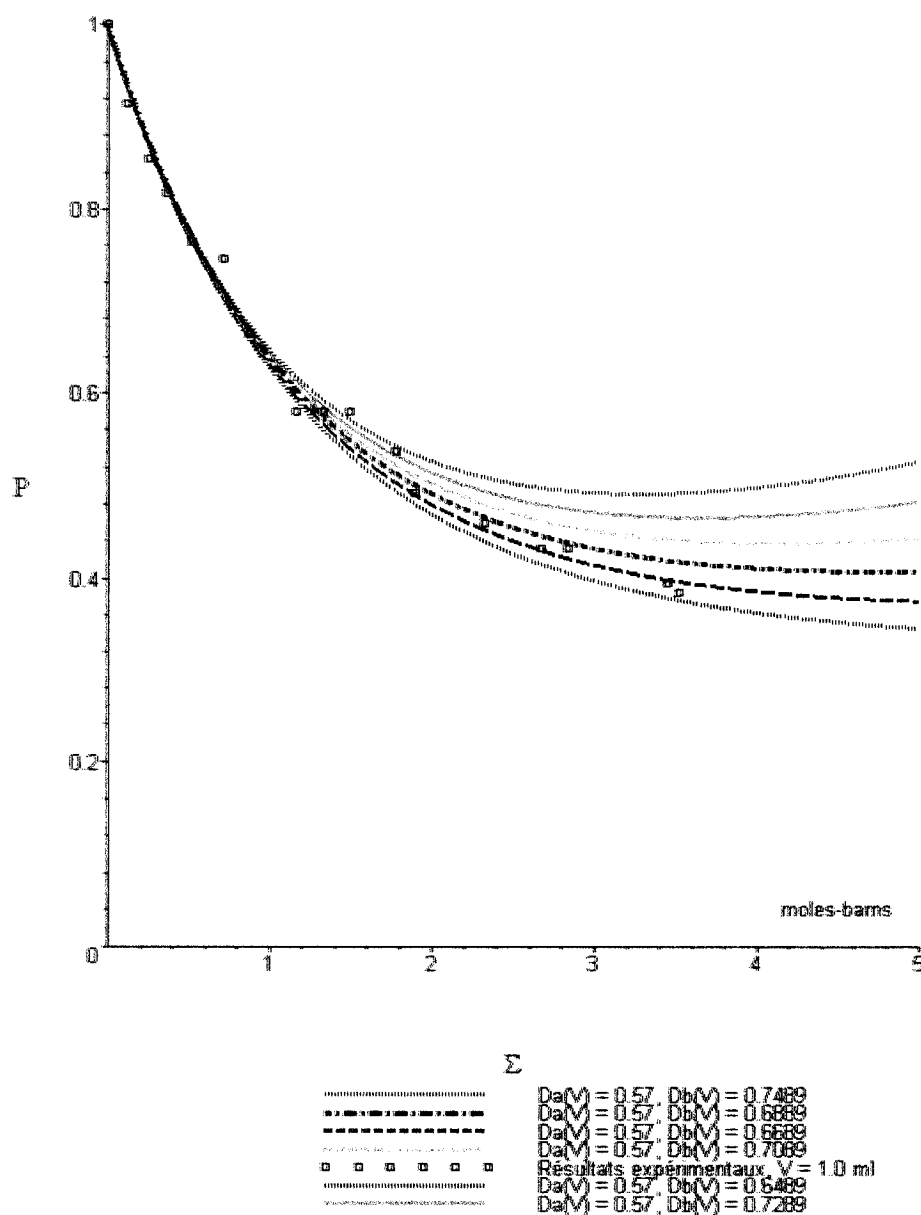


Figure 4.6 : Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour un volume d'échantillon de 1ml présentant la valeur critique de $Db(V)/Da(V)=0,7089/-0,57$ (courbe hachurée, 3^e à partir du haut). Dans ce cas précis, l'expression avec le rapport « critique » de $Db(V)/Da(V)$ n'est pas satisfaisante, car les écarts entre cette courbe et les résultats expérimentaux sont trop élevés.

4.3.2.2 RÉGRESSIONS DES FONCTIONS $D_a(V)$ ET $D_b(V)$ PAR RAPPORT AU VOLUME

- 1) Les valeurs moyennes des sept éléments de $D_a(V)$ obtenues pour les différents volumes sont présentées dans le tableau suivant.

Tableau 4.2 : Valeurs de $D_a(V)$ moyen en fonction des volumes d'échantillon

V (ml)	0,5	1,0	1,3
$D_a(V)$	-0,520	-0,3957	-0,2588

La figure 4.7 présente le résultat de la régression non linéaire de $D_a(V)$ en fonction du volume V. Il est apparent que les écarts entre les valeurs de la fonction $D_a(V)$ et la relation de régression non linéaire soient très faibles.

Le tableau 4.3 présente le résultat de l'expression algébrique de la régression non linéaire, de même que les résultats de l'analyse statistique de l'écart de la régression par rapport aux moyennes des coefficients $D_a(V)$ obtenus par le processus itératif visuel, pour chacun des volumes. Les résultats du tableau indiquent que l'écart-type est inférieur à 1% et que l'écart-moyen est d'environ -0,07 %. De plus, le coefficient de régression indique qu'il s'agit d'une corrélation forte.

Tableau 4.3 : Résultats de l'analyse statistique des écarts de la régression non linéaire de $D_a(V)$.

$D_a(V) =$	$(0,56-0,185(V-0,04)^2)$
μ (écart-moyen) =	-0,00072 (-0,07 %)
s (écart-type) =	0,007 (0,7 %)
R (coefficient de régression) =	-0,9922

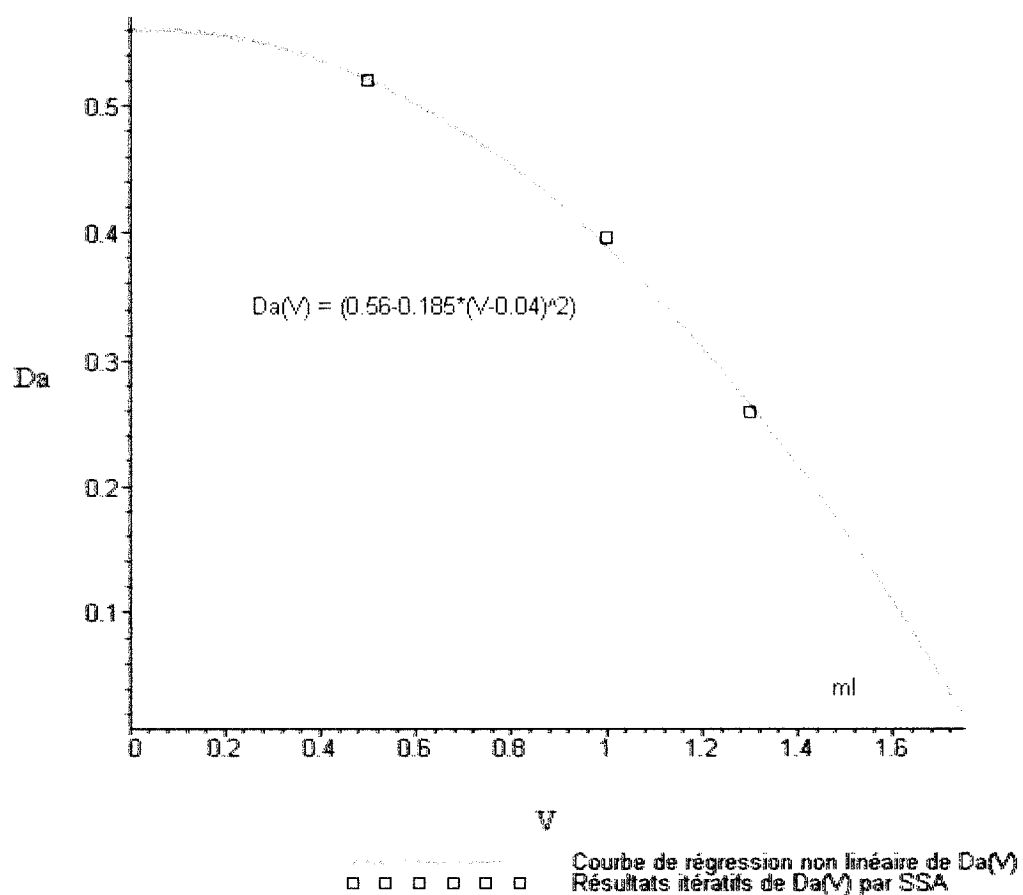


Figure 4.7 : Graphique illustrant le résultat de la régression non linéaire de $D_a(V)$ en fonction de V (ml). Les petits carrés sont les valeurs de la fonction $D_a(V)$ pour chacun des trois (3) volumes analysés. La courbe pleine représente la relation de régression non linéaire. $Da(V) = (0,56 - 0,185(V - 0,04)^2)$.

- 2) Les valeurs moyennes pour les sept éléments de $D_b(V)$ obtenues pour les différents volumes sont présentées dans le tableau suivant.

Tableau 4.4 : Valeurs de $D_b(V)$ en fonction des volumes d'échantillon

V (ml)	0,5	1,0	1,3
$D_b(V)$	0,550	0,5289	0,360

La figure 4.8 présente le résultat de la régression non linéaire de $D_b(V)$ en fonction du volume V (ml). Il est apparent que les écarts entre les valeurs de la fonction $D_b(V)$ et la relation de régression non linéaire soient très faibles.

Le tableau 4.5 présente le résultat de l'expression algébrique de la régression non linéaire de même que les résultats de l'analyse statistique de l'écart de la régression par rapport aux moyennes des coefficients $D_b(V)$ obtenus par le processus itératif visuel, pour chacun des volumes. Les résultats du tableau indiquent que l'écart-type est de l'ordre de 0,1 %, que l'écart-moyen est d'environ -0,04 %. De plus, le coefficient de régression indique qu'il s'agit d'une corrélation forte.

Tableau 4.5 : Résultats de l'analyse statistique des écarts de la régression non linéaire de $D_b(V)$.

$D_b(V) =$	$0,55-0,200(V-0,31)^6$
μ (écart-moyen) =	-0,00040 (-0,04 %)
s (écart-type) =	0,00115 (0,11 %)
R (coefficient de régression) =	-0,84615

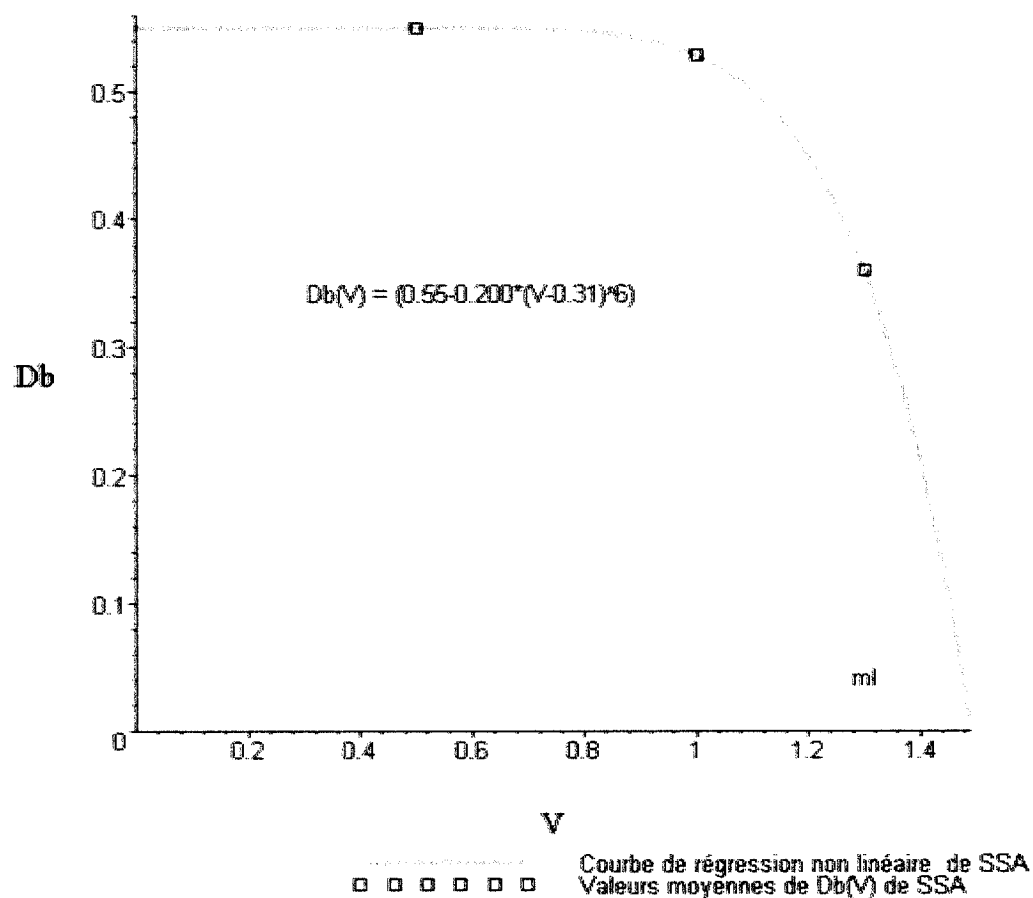


Figure 4.8 : Graphique illustrant le résultat de la régression non linéaire de $D_b(V)$ en fonction de V (ml). Les petits losanges sont les valeurs de la fonction $D_b(V)$ pour chacun des trois (3) volumes analysés. La courbe pleine représente la relation de régression non linéaire, $Db(V) = 0,55 - 0,200(V - 0,31)^6$.

Le tableau 4.6 présente une comparaison entre les résultats statistiques de la 1^{re} corrélation et la corrélation obtenue par les processus décrits dans la section 4.3.2 que nous désignerons désormais par 3^e corrélation. Ainsi, nous distinguons la 1^{re} corrélation (corrélation globale des résultats expérimentaux), la 2^e corrélation (corrélation améliorée par la méthode des moindres carrés) et finalement la 3^e corrélation (corrélation obtenue par les processus de la section 4.3.2).

Tableau 4.6 : Comparaison entre les résultats statistiques de la 1^{re} corrélation, de la 2^e corrélation et de la 3^e corrélation obtenue des processus de la section 4.3.2.

Résultats	1 ^{re} corrélation	3 ^e corrélation (4)	Résultats	1 ^{re} corrélation	3 ^e corrélation (4)
$D_a(V) =$	1,1683 -0,6103V 2 paramètres de régression et de degré 1	$-(0,56-0,185(V-0,04)^2)$ 3 paramètres de régression et degré 2	$D_b(V) =$	1,0407-0,3691V ² 2 paramètres de régression et de degré 2	0,550-0,200(V-0,31) ⁶ 3 paramètres de régression et degré 6
• écart-moyen (1)	3,33E-11	-0,00072 -0,07 %	• écart-moyen (1)	3,33E-11	-0,00040 -0,04 %
s écart-type (2)	0,029954 (3,0 %)	0,007 0,7 %	s écart-type (2)	0,05144 (5,1 %)	0,00115 (0,1 %)
R coefficient de régression (3)	0,9999999966 corrélation très forte	-0,9922 corrélation très forte	R coefficient de régression (3)	0,9858358 corrélation très forte	-0,84615

(1) : écart-moyen entre les coefficients de la perturbation du flux ou de la dépression du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

(2) : écart-type entre les coefficients de la perturbation du flux ou de la dépression du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

(3) : Coefficient de régression entre les coefficients de la perturbation du flux ou de la dépression du flux par rapport aux valeurs individuelles des coefficients pour les trois volumes.

(4) : Dépression du flux du modèle semi-analytique

En comparant dans le tableau 4.6, les moyennes des écarts de la 1^{re} corrélation à celles de la 3^e corrélation, celles de la 1^{re} corrélation sont nettement inférieures à celles

de la 3^e corrélation. Toutefois, les écarts-types pour les coefficients de la 3^e corrélation sont très inférieurs à ceux des coefficients de la 1^{re} corrélation des résultats expérimentaux. Selon nous, cette dernière caractéristique et le fait que les moyennes des écarts sont très faibles justifie que la 3^e corrélation est meilleure.

Nous attribuons les écarts-types inférieurs des coefficients de la 3^e corrélation au fait que cette dernière comporte plus d'informations et qu'elle est plus complexe et donc plus précise. En effet, les coefficients $Da(V)$ et $Db(V)$ de la 3^e corrélation sont des fonctions de degrés 2 et 6, respectivement et comportent trois (3) paramètres de régression. Pour la 1^{re} corrélation, les coefficients sont de degré 1 et 2 respectivement et ne comportent que deux (2) paramètres de régression.

L'expression pour la perturbation du flux (3^e corrélation) a donc la forme suivante,

$$P(\Sigma_a, V) = e^{\left((0.56 - 0.185 (V - 0.04)^2) \Sigma_a \right)} I_0 \left((0.55 - 0.200 (V - 0.31)^6) \Sigma_a \right) \quad . (4.27)$$

4.3.3 RÉSULTATS DE LA PERTURBATION DU FLUX NEUTRONIQUE EN FONCTION DE LA SECTION EFFICACE MACROSCOPIQUE DE CAPTURE NEUTRONIQUE RADIATIVE ET V

La figure 4.9 présente un graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour l'or (^{197}Au) comportant trois (3) courbes provenant du processus de solution semi-analytique de l'équation de transport, pour chacun des volumes étudiés. Elle illustre également les points expérimentaux obtenus par Kennedy et Marcotte (Kennedy et Marcotte, 1984). Nous constatons une très forte corrélation entre la solution semi-analytique et les résultats expérimentaux.

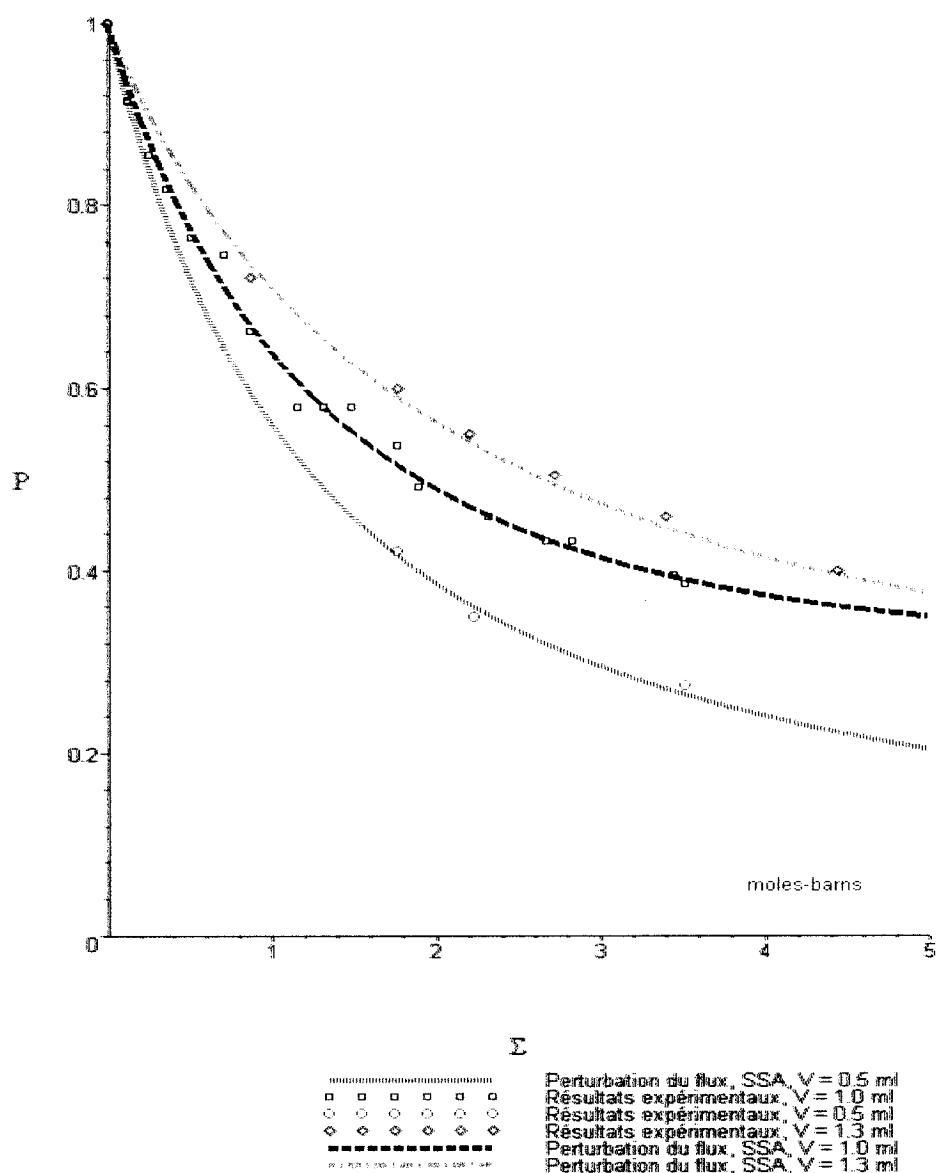


Figure 4.9 : Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons, d'or. Les courbes proviennent du modèle semi-analytique de transport neutronique. Le flux scalaire moyen est obtenu par quadrature sur l'énergie cinétique des neutrons thermiques de spectre maxwellien (100 intervalles), et de l'intégration analytique selon les coordonnées et selon les variables angulaires de la solution semi-analytique du flux neutronique angulaire.

La solution semi-analytique heuristique de l'équation de transport neutronique de Boltzmann, en supposant un spectre d'énergie de Maxwell et adaptée à l'expression de la dépression de flux empirique provenant de résultats expérimentaux est un modèle très satisfaisant d'un site d'irradiation interne pour tous les éléments étudiés.

4.4 RÉSULTATS DES SIMULATIONS DE LA PERTURBATION DU FLUX OBTENUS PAR LE MODÈLE SEMI-ANALYTIQUE. POUR QUELQUES ÉLÉMENTS

Les figures 4.10 à 4.16 présentent des graphiques de perturbations du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour sept éléments avec trois (3) volumes d'échantillon (0.5, 1.0 et 1.3 ml) en paramètre. Les diverses courbes proviennent d'un modèle de solution semi-analytique, alors que les points (cercles, carrés, losanges) représentent des résultats expérimentaux.

Le flux scalaire moyen employé pour calculer l'autoprotection est obtenu par quadrature sur l'énergie cinétique des neutrons et par intégrations analytiques selon les coordonnées ρ et z de la solution analytique du flux neutronique angulaire. Une discrétisation particulière de l'énergie cinétique neutronique permet une quadrature sur cent (100) intervalles de mêmes largeurs, sur la plage des neutrons thermiques.

Le spectre d'énergie des neutrons est censé être le spectre de Maxwell et est appliqué par les conditions frontières de l'échantillon.

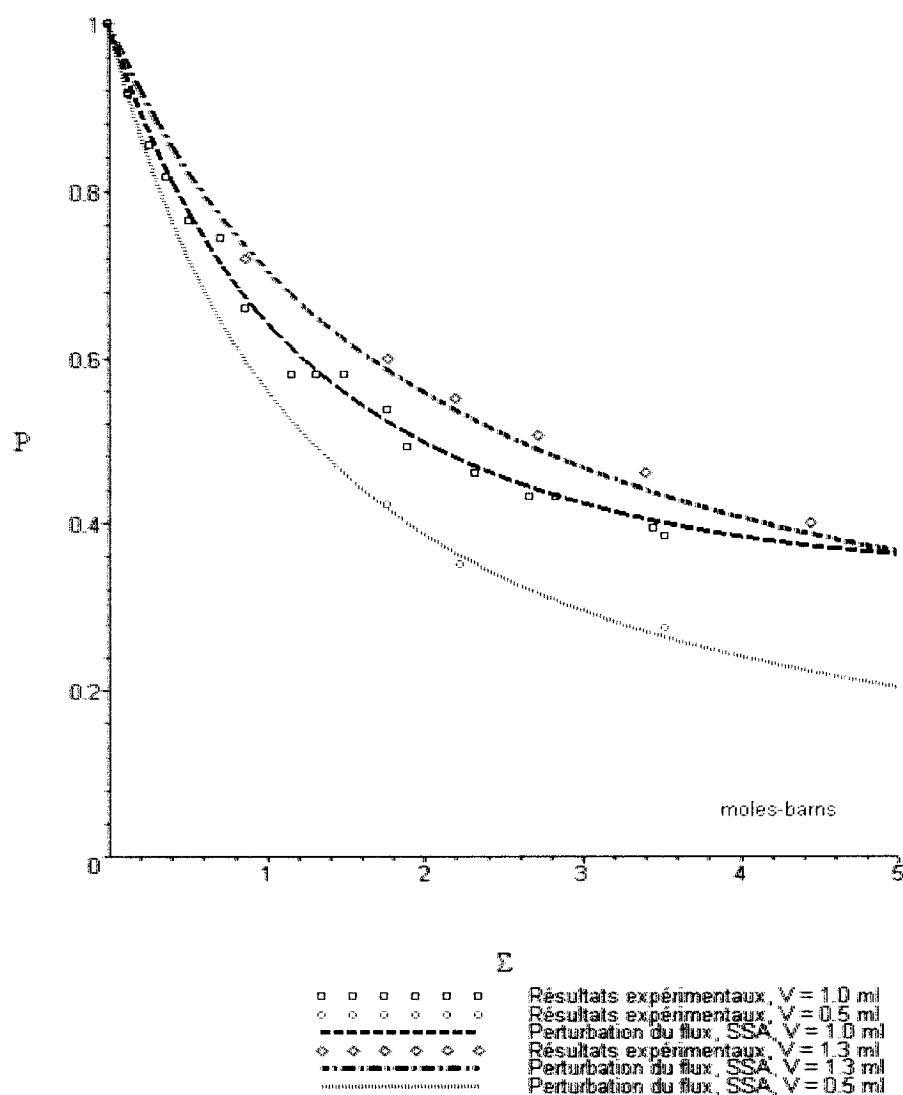


Figure 4.10 : Graphique de la perturbation du flux en fonction de Σ_a , pour le bore (B) pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

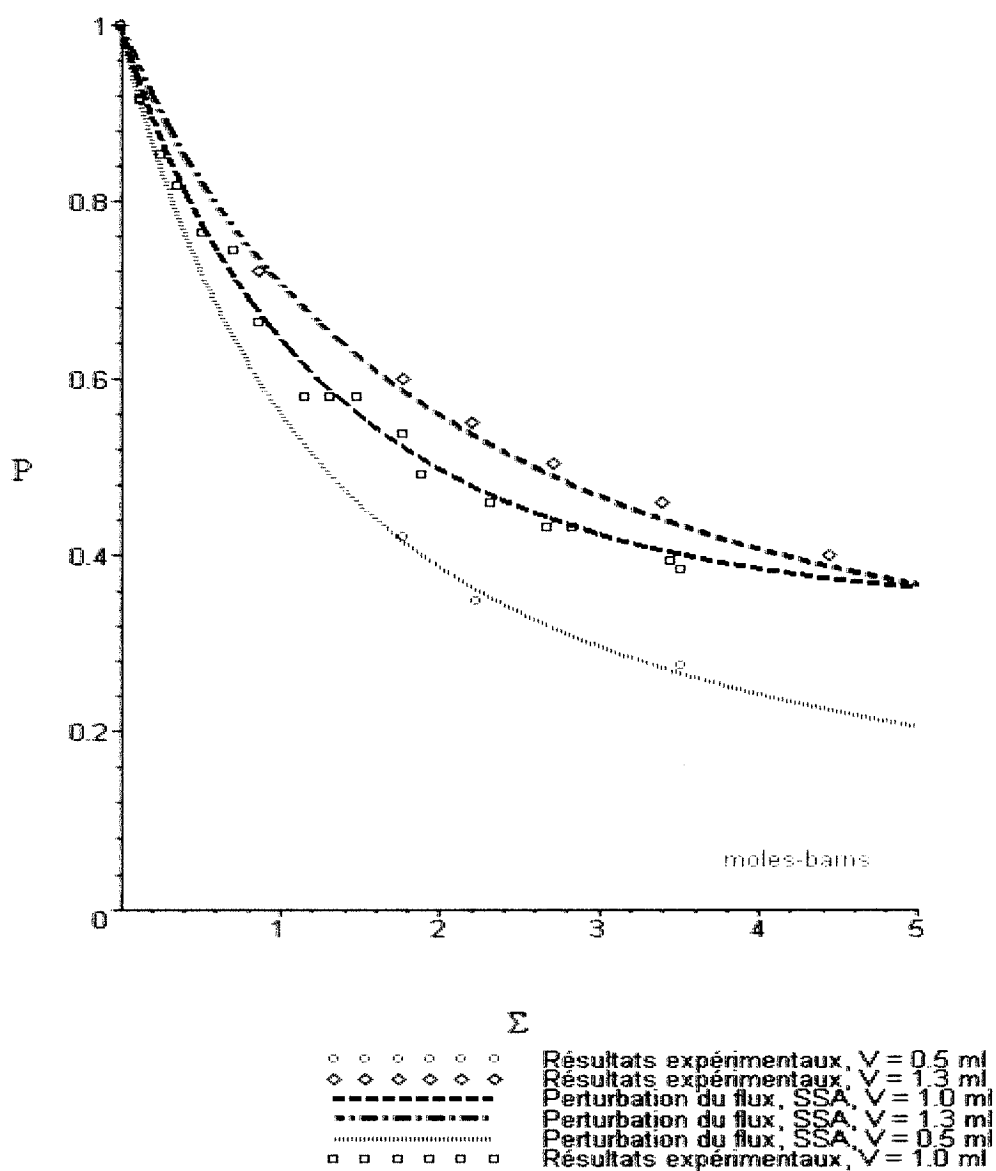


Figure 4.11 : Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a du chlore (Cl). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

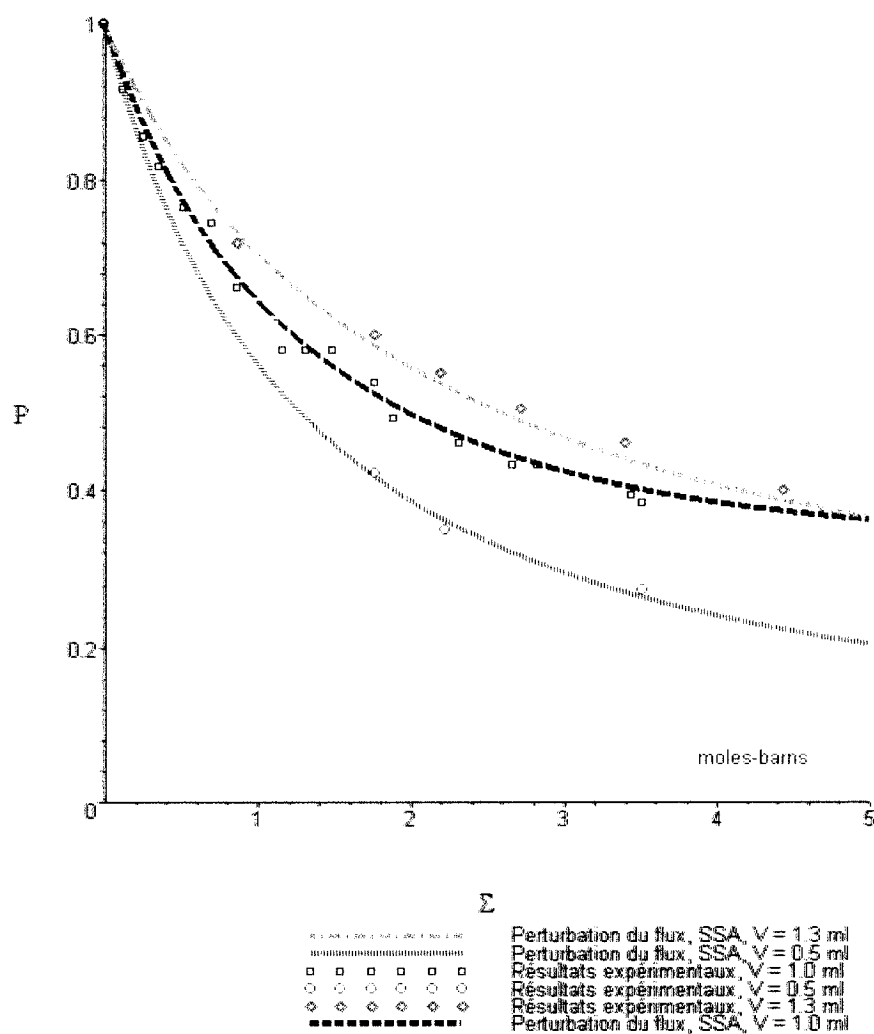


Figure 4.12 : Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0,5, 1,0, 1,3 ml) et en présence de différentes Σ_a du manganèse (Mn). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

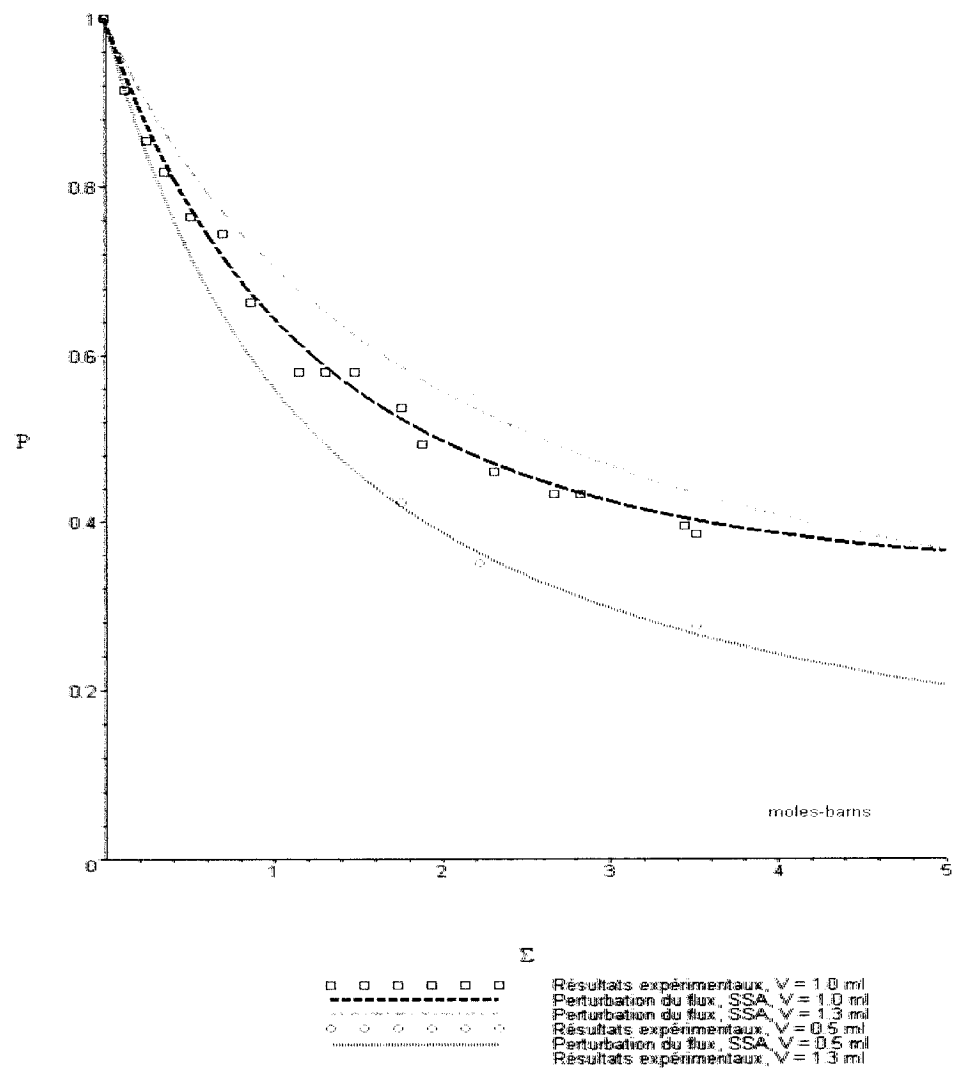


Figure 4.13 : Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et différentes Σ_a du fer (Fe). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

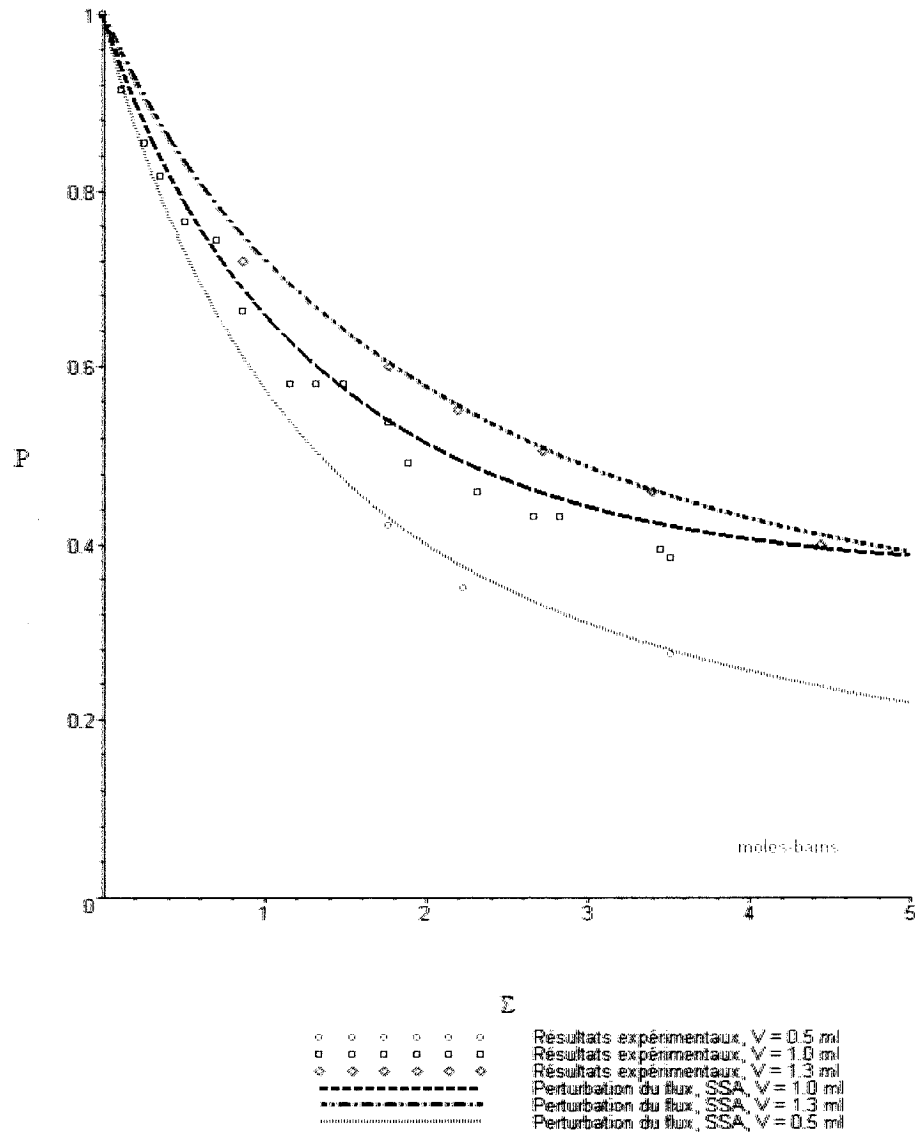


Figure 4.14 : Graphiques de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a du cobalt (Co). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

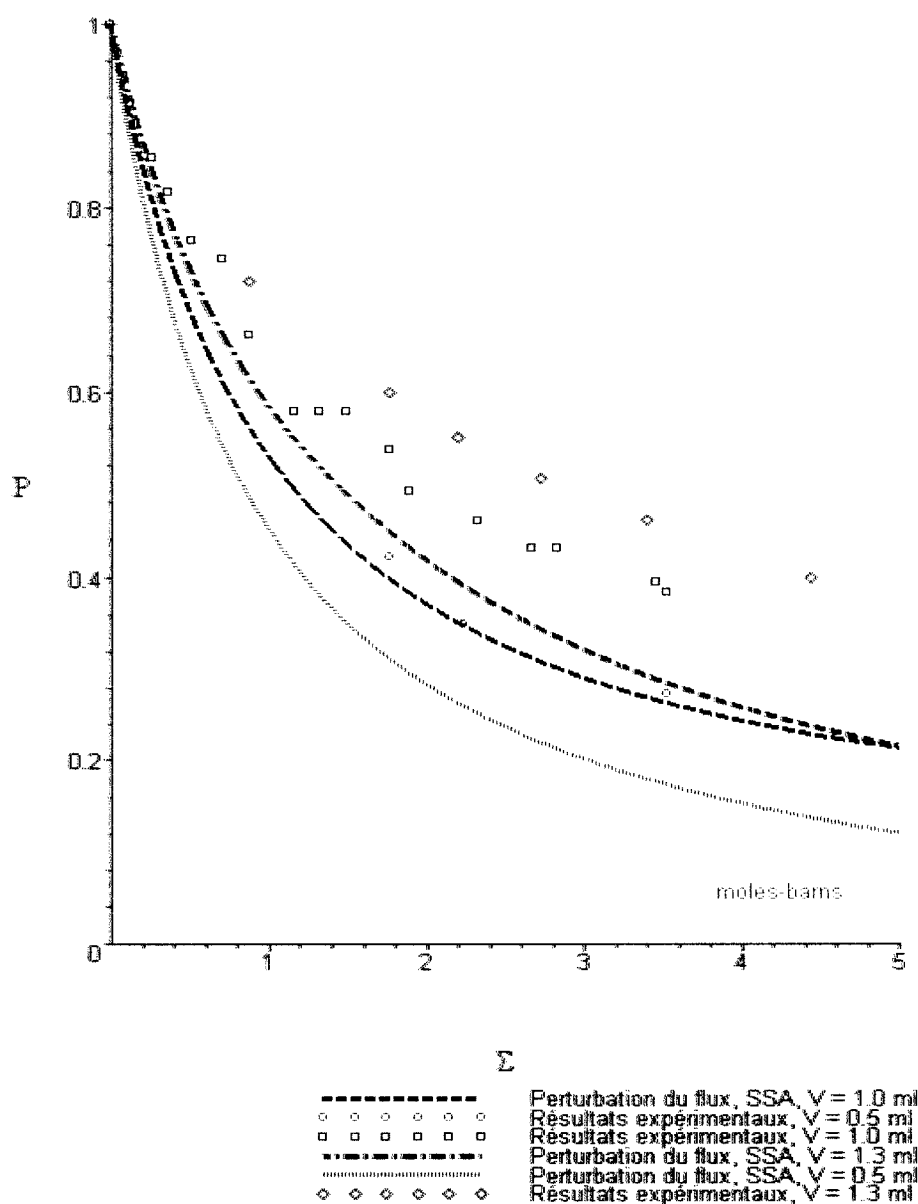


Figure 4.15 : Graphiques de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a du cuivre (Cu). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

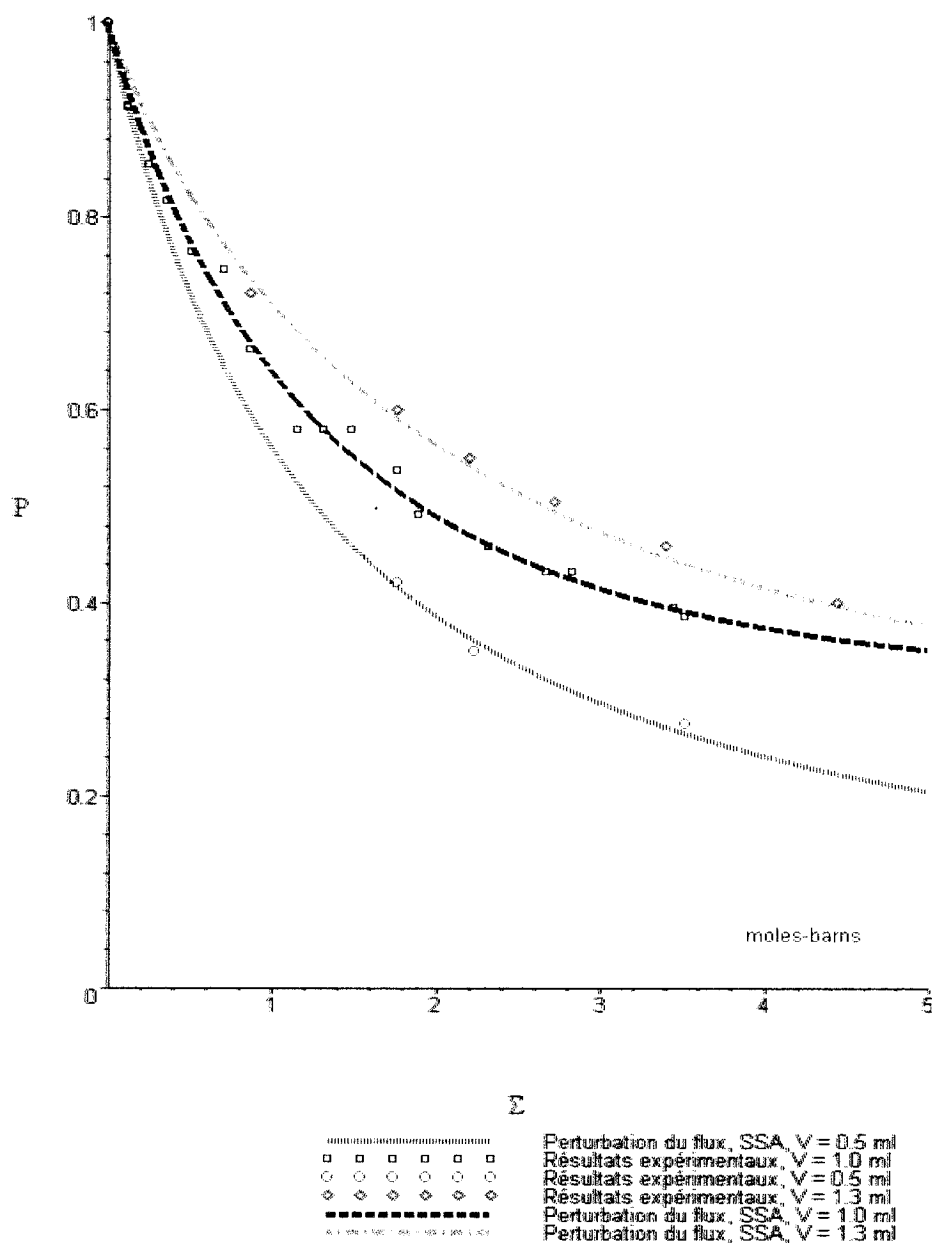


Figure 4.16 : Graphiques de la perturbation du flux neutronique en fonction de Σ_a , pour trois volumes d'échantillons (0.5, 1.0, 1.3 ml) et en présence de diverses Σ_a d'or (Au). Les courbes proviennent d'un modèle semi-analytique de transport neutronique. La courbe inférieure correspond à un volume de 0,5 ml, alors que la courbe la plus élevée correspond à un volume de 1,3 ml.

Les écarts entre les solutions semi-analytiques et les résultats expérimentaux pour les trois (3) volumes d'échantillon étudiés sont très faibles pour cinq (5) des sept (7) éléments considérés par cette partie du projet. Les perturbations du flux neutronique en présence d'un échantillon contenant du bore (B), du chlore (Cl), du manganèse (Mn), du fer (Fe) et de l'or (Au), obtenues par le modèle semi-analytique sont très rapprochées des résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et *al*, 1984) et ce pour les trois (3) volumes étudiés.

La perturbation du flux neutronique obtenue par le modèle semi-analytique, en présence d'un échantillon contenant du cobalt (Co) est rapprochée des résultats expérimentaux, pour 0,5 et 1,3 ml. Cependant, des écarts importants existent entre les résultats obtenus par le modèle semi-analytique et les résultats expérimentaux, pour des échantillons de 1,0 ml.

La perturbation du flux neutronique en présence d'un échantillon contenant du cuivre (Cu), obtenue par le modèle semi-analytique est éloignée des résultats expérimentaux, pour les trois volumes étudiés. Il est intéressant de noter que Gonçalves et *al* rapportèrent que les résultats pour le cuivre-63 (Cu^{63}) déviaient de la courbe commune des autres éléments (Gonçalves et *al*, 2001).

Ces résultats confirment en partie l'hypothèse posée lors de la détermination des fonctions $D_a(V)$ et $D_b(V)$ voulant qu'il ne semble pas y avoir de corrélation simple entre ces fonctions et des propriétés physiques des éléments concernés. Cette observation est cohérente avec les courbes universelles rapportées par Kennedy (Kennedy et *al*, 1984) et Gonçalves (Gonçalves et *al*, 2001).

L'élaboration d'un modèle de transport neutronique, basé sur une solution semi-analytique de l'équation de Boltzmann, pour un échantillon du site d'irradiation interne présentant de très faibles écarts pour cinq (5) éléments (bore, chlore, manganèse, fer et

or) très différents les uns des autres présente un grand intérêt. Malgré une distribution étendue de leur numéro atomique et de leur masse volumique, leur impact sur le flux neutronique du site interne est très bien représenté par ce modèle.

4.5 ANALYSES STATISTIQUES DES ÉCARTS ENTRE LES RÉSULTATS OBTENUS PAR LE MODÈLE SEMI-ANALYTIQUE ET LES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Le tableau 4.7 présente les résultats des analyses statistiques des écarts entre les solutions semi-analytiques du modèle de transport neutronique et les résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte (Kennedy et *al*, 1984).

Tableau 4.7 : Résultats d'analyse statistique des écarts entre les solutions semi-analytiques et les résultats expérimentaux de la perturbation du flux pour sept (7) éléments

Éléments Résultats statistiques	V=0,5 ml			V=1,0 ml			V=1,3 ml		
	μ écart moyen	S écart type	R coefficient de corrélacion	μ écart moyen	S écart type	R coefficient de corrélacion	μ écart moyen	S écart type	R coefficient de corrélacion
B	0,0031	0,0097	-0,9412	-0,0017	0,0251	-0,9471	0,0144	0,0137	-0,9446
Cl	0,0024	0,0099	-0,9413	-0,0067	0,0156	-0,9388	0,0109	0,0110	-0,9402
Mn	0,0025	0,0098	-0,9413	-0,0066	0,0156	-0,9388	0,0118	0,0116	-0,9415
Fe	0,0024	0,0099	-0,9413	-0,0066	0,0156	-0,9388	0,0117	0,0117	-0,9415
Co	-0,0547	0,0852	-0,9270	0,0058	0,1126	-0,8559	-0,0045	0,0139	-0,9429
Cu	0,0759	0,0494	-0,9267	0,0971	0,0419	-0,9220	0,1340	0,0477	-0,9181
Au	0,0034	0,0096	-0,9410	-0,00022	0,0158	-0,9392	0,0071	0,0115	-0,9410

En considérant les résultats de l'analyse statistique des écarts présentés dans le tableau précédent, les conclusions tirées de l'analyse des graphiques de la perturbation du flux neutronique de quelques éléments en fonction de Σ_a et du volume d'un échantillon demeurent inchangées. En d'autres mots, l'analyse quantitative des écarts confirme l'excellente représentation de la perturbation du flux obtenue par un modèle

semi-analytique de transport neutronique, pour au moins cinq (5) éléments (bore, chlore, manganèse, fer, or).

En considérant les résultats de l'analyse statistique pour le bore, le chlore, le manganèse, le fer, le cobalt, le cuivre et l'or, les observations suivantes s'imposent :

- 1) Pour un volume d'échantillon de 0,5 ml, l'écart moyen est d'environ 0,3 % et l'écart-type moyen est d'environ 1 %.
- 2) Pour un volume d'échantillon de 1,0 ml, l'écart moyen est d'environ - 0,6 %. Dans ce cas, l'écart-type moyen est d'environ 1,5 %, ce qui est comparable à l'incertitude fortuite des résultats expérimentaux.
- 3) Pour un volume d'échantillon de 1,3 ml, l'écart moyen est d'environ 1,2 %, alors que l'écart-type moyen est également d'environ 1,2 %.
- 4) Pour les échantillons de 1,3 ml du cobalt, les résultats statistiques indiquent de très faibles écarts par rapport aux résultats expérimentaux.
- 5) Pour des échantillons de 0,5 et 1,0 ml contenant diverses Σ_a de cobalt, l'écart-type entre les résultats de la solution semi-analytique et les résultats expérimentaux sont de l'ordre de 10 %, soit un facteur environ 10 fois plus élevé que pour les autres éléments.
- 6) En observant le graphique des perturbations du flux pour des échantillons de cobalt, nous constatons que l'écart moyen et l'écart-type pour des échantillons de 1,3 ml sont faibles, alors qu'au moins l'un des deux écarts est plus important pour les échantillons de 0,5 et

1,0 ml. Donc, le modèle semi-analytique est très satisfaisant pour les échantillons de 1,3 ml et moins satisfaisant pour les échantillons de 0,5 et 1,0 ml.

- 7) Pour le cuivre, l'écart moyen entre les résultats obtenus par la solution semi-analytique et les résultats expérimentaux est de l'ordre de 10 %, alors que l'écart-type moyen correspondant est d'environ 5 %.
- 8) En observant le graphique (figure 4.15) des perturbations du flux pour le cuivre, nous constatons que l'écart entre les résultats semi-analytiques et les résultats expérimentaux augmente avec Σ_a .

De façon générale, les solutions semi-analytiques de l'équation de transport de Boltzmann appliqué à un modèle cylindrique circulaire ρ, z d'un site d'irradiation interne, prenant en compte la dépendance en énergie des sections efficaces microscopiques de capture neutronique radiative et suivant un spectre maxwellien des neutrons, représente très bien les résultats expérimentaux de perturbations du flux, pour quelques éléments. Les écarts-moyens et les écarts-types entre les valeurs du modèle de transport neutronique semi-analytique et les valeurs expérimentales sont inférieurs à l'évaluation de l'incertitude fortuite des résultats expérimentaux.

Toutefois, il est indiqué de nuancer le qualificatif de représentatif. Un modèle est mathématiquement représentatif lorsque les écarts entre les valeurs numériques du modèle et des phénomènes physiques qu'il tente de représenter sont minimales. Par ailleurs, un modèle est physiquement représentatif des phénomènes physiques, lorsque les hypothèses, les conditions, les principes employés pour construire le modèle sont rapprochés des concepts physiques présents dans la situation physique réelle à décrire.

Ceci implique qu'un modèle ayant une bonne représentativité physique devrait également avoir une bonne représentativité mathématique, si les outils mathématiques de calcul sont disponibles et adéquats. À l'inverse, un modèle mathématiquement représentatif n'est pas nécessairement un modèle physiquement représentatif.

CHAPITRE 5

TRANSPORT NEUTRONIQUE, MÉTHODE NUMÉRIQUE

5.1 TRANSPORT NEUTRONIQUE, MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

La méthode des ordonnées discrètes est l'une des méthodes de résolution numérique des problèmes de transport neutronique. Elle permet de représenter les fonctions du flux neutronique par un nombre fini de termes ou de valeurs numériques correspondant à un nombre fini de directions possibles des neutrons (Henry, 1975, Reuss, 2003, Bussac et Reuss, 1985. Lewis et Miller, 1983, Bell et Glasstone, 1970).

La méthode des harmoniques sphériques résulte en un ensemble infini d'équations intégrales différentielles entièrement équivalentes aux solutions de l'équation de transport (Davison, 1957, Lewis et Miller, 1983). Dans ce cas, les variables angulaires sont continues. La méthode des ordonnées discrètes est donc en quelque sorte une simplification de la méthode des harmoniques sphériques, puisque nous passons de variables angulaires continues à la discrétisation de celles-ci.

Dans les deux cas, nous avons l'option de limiter le nombre de termes angulaires afin de simplifier le processus de résolution. Dans le cas de la méthode des ordonnées discrètes, ceci résulte en un nombre fini d'équations algébriques représentées par la méthode des différences finies centrées.

La discrétisation de la variable vectorielle directionnelle Ω et de ses composantes (μ, η, ξ) est réalisée sur la sphère unitaire (figure 5.1). Il s'agit donc d'un processus analogue à la discrétisation spatiale dans un domaine de géométrie sphérique.

Un schéma de discrétisation directionnelle est appelé S_N . Ce schéma est caractérisé par un découpage de la surface de la sphère unitaire en N bandes parallèles bornées par des cercles parallèles à l'équateur. Les cercles limites de ces bandes sont des

colatitudes espacées régulièrement par un multiple des composantes μ, η, ξ , soit $\frac{\pi}{N}$ (Reuss, 2003).

De façon similaire, une série de bandes orthogonales aux latitudes (parallèles au méridien) découpe la sphère du pôle Nord jusqu'au pôle Sud en passant par l'équateur, à partir du méridien d'origine du système de coordonnées sphériques. Ces bandes longitudinales sont des segments de longitudes découpés en 4, 8, 12, 24, ..., N éléments trapézoïdaux identiques. La combinaison des cercles des latitudes et des longitudes forme donc un maillage directionnel.

Maillage directionnel sur une sphère unitaire

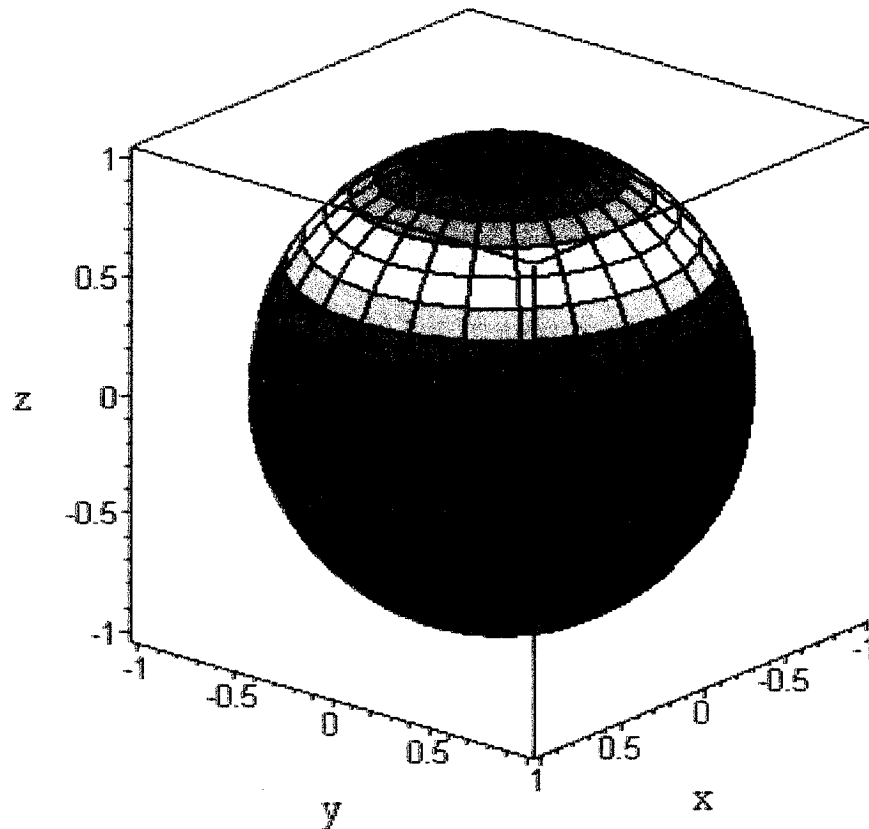


Figure 5.1 : La figure présente un maillage directionnel sur une sphère unitaire. Puisque sur cette sphère nous retrouvons 24 cercles parallèles à l'équateur et 24 cercles parallèles au méridien (orthogonales aux latitudes), le schéma directionnel de discrétisation est S_{24} . Ce maillage directionnel comprend $24 \cdot (24+2) = 624$ mailles.

L'ensemble de ces courbes orthogonales découpe la surface de la sphère en mailles dont le centre correspond à chacune des directions discrètes Ω_n ou encore ordonnées discrètes (voir figure 5.2).

Puisque notre modèle est un cylindre circulaire droit 2-D, des quadratures à niveaux symétriques sont recommandables (Hébert, 2006). Nous avons donc implanté de telles quadratures.

5.2 DISCRETISATION ANGULAIRE

La discrétisation des variables angulaires permet de calculer le flux neutronique scalaire par quadratures du flux neutronique angulaire selon toutes les directions discrétisées. De façon à faciliter ce processus, deux indices, p et q sont reliés à chacune des directions (Lewis et Miller, 1993).

Ainsi, la direction $\Omega_n = \Omega_{p,q}$ est caractérisée par un premier indice p représentant la valeur de ξ_p qui lui est associée selon la séquence $\xi_1 < \xi_2 < \xi_3 < \dots < \xi_N$. Le deuxième indice q croît avec la valeur de μ associée à ξ_p .

De façon plus précise, pour un ξ_p donné faisant partie de la séquence précédente, les variables angulaires μ qui lui sont associées suivent la séquence suivante, $\mu_{p1} < \mu_{p2} < \mu_{p3} \dots < \mu_{pN_p}$, avec N_p variant de 1 à N . La figure 5.2 illustre la séquence des ordonnées discrètes projetées sur le plan μ, ξ ou encore p, q .

Ordonnées discrètes, S_8 sur le plan μ, ξ numérotation p, q en géométrie p, ξ

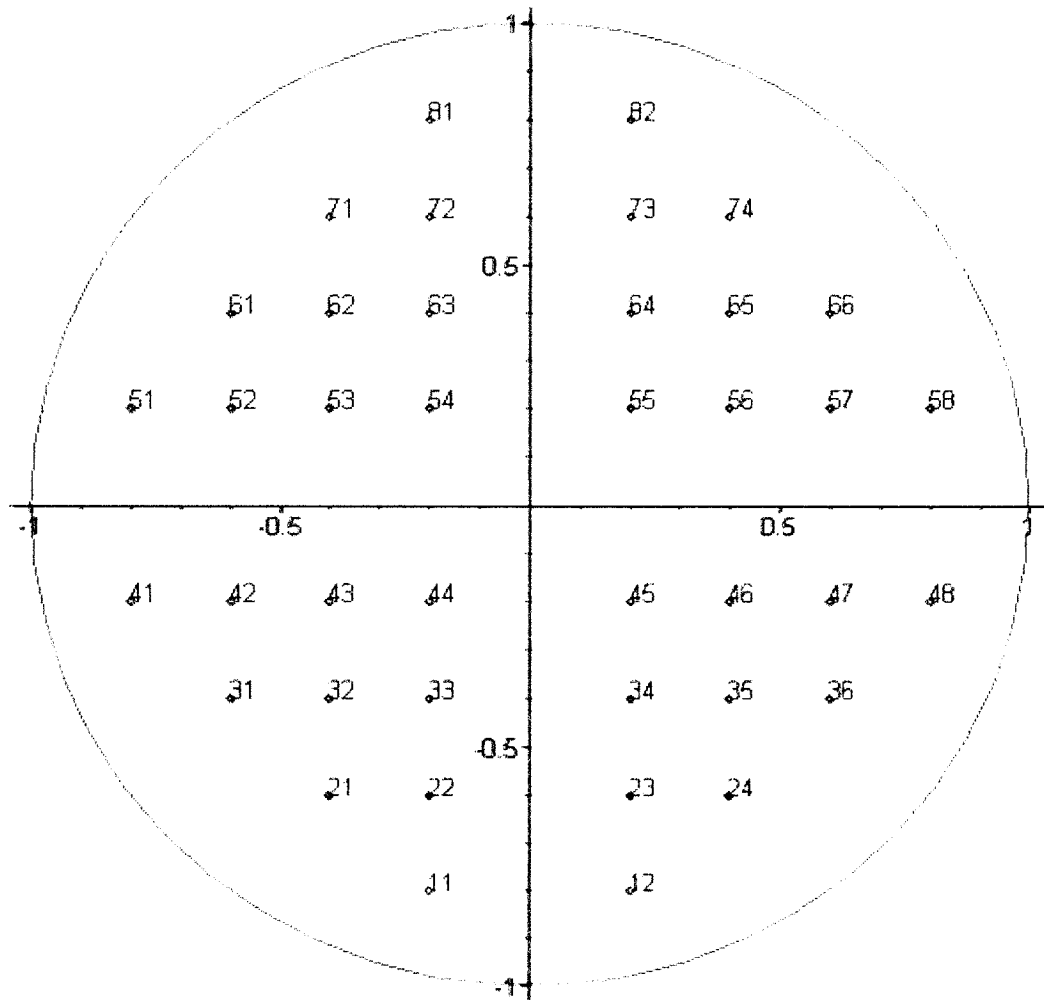


Figure 5.2 : Sphère directionnelle unitaire S_8 avec les indices directionnels q, p qui déterminent le maillage des ordonnées discrètes. Le premier chiffre, q identifie le niveau de la latitude (rangées) de 1 à 8, alors que le second chiffre, p de chaque paire identifie l'ordre de 1 à 8 de la longitude (colonne) par rapport la position du méridien. La figure présente la projection sur un plan de 4 des 8 octants de la sphère directionnelle unitaire comportant 40 vecteurs directionnels dont l'origine est le centre géométrique de la sphère.

Le schéma S_8 contient $N(N+2)$ mailles, soit 80 mailles. Les 80 vecteurs joignant le centre géométrique de la sphère aux 80 points au centre de chacune des mailles angulaires représentent les 80 directions discrétisées sur une surface sphérique unitaire.

Généralement, les schémas les plus fréquemment employés varient de S_4 à S_8 , bien que certains auteurs on effectués des calculs avec $N > 8$ (Greenspan et *al*, 1968).

Le choix du schéma est un compromis entre la précision inhérente au calcul par la méthode des ordonnées discrètes et la capacité des ordinateurs disponibles, en termes de rapidité et de capacité de mémoires. Nous avons choisi le schéma S_8 , car nous croyons que le traitement du transport neutronique de petits échantillons physiques contenant des noyaux fortement absorbeurs de neutrons requiert une précision importante. De plus, un nombre N relativement élevé tend à atténuer les effets de raies (Lewis et Miller, 1993, Reuss, 2003, Bussac et Reuss, 1985, Henry, 1975).

Il est important de réaliser que les discrétisations angulaires spatiales et énergétiques se combinent de la façon suivante, 80 directions, 30 intervalles radiaux, 22 intervalles axiaux et 9 intervalles énergétiques pour former 475200 cellules ou mailles, ce qui représente une quantité de mémoire importante et nécessite de très nombreuses opérations mathématiques.

5.3 MAILLAGE ANGULAIRE, SPATIAL ET ÉNERGÉTIQUE POUR UN CYLINDRE CIRCULAIRE 2-D

Le tableau 5.1 présente le maillage angulaire, spatial et énergétique employé dans le code de la méthode des ordonnées discrètes pour un cylindre circulaire fini 2-D (ρ, z).

Tableau 5.1 : Maillage angulaire, spatiale énergétique et total pour le calcul de la perturbation du flux neutronique d'un cylindre circulaire 2-D, par la méthode des ordonnées discrètes

N (1)	$N_{\Omega} = N(N+2)$ (2) Nombres de mailles angulaires	Ni (3)	Zi (4)	n nombre de mailles spatiales (5)	G (6) Nombre de groupes de neutrons	M (7) Nombre de mailles totales	ϕ_{ref} (8)	Durée (h)
8	80	30	20/2	600/2	9	2,16E+05	1,666E+07	5,15

(1) N : nombre de rangées angulaires par hémisphère, méthode S_N

(2) N_{Ω} : nombre de mailles angulaires

(3) Ni : nombre d'intervalles radiaux (rayon ρ)

(4) Zi : nombre d'intervalles verticaux (axe des z). Nous avons supposé une symétrie longitudinale, nous permettant de simuler qu'une demi-hauteur des échantillons.

(5) n : nombre total d'intervalles radiaux et verticaux $n = Ni * Zi$

(6) G : nombre de groupes de neutrons (intervalles d'énergie)

(7) M : nombre de mailles totales $M = N_{\Omega} Ni Zi G$

(8) Flux scalaire moyen du noyau de référence (Al) dilué par un facteur $1E-20$, n/cm^2-s

Nous avons observé que la durée des calculs est plus sensible au nombre d'intervalles d'énergie qu'au nombre d'intervalles des coordonnées. Nous avons également observé qu'il est plus avantageux d'augmenter Zi que Ni. La convergence est plus rapide, et la durée d'exécution augmente moins rapidement.

Pour notre problème, les propriétés géométriques et matérielles font en sorte que les coefficients dans la formule de discrétisation spatiale sont beaucoup plus grands dans une direction que dans les autres directions (Hageman et al, 1981). En effet, la demi-hauteur du cylindre (0,72 cm) est plus élevée que son rayon (0,47 cm). Nous croyons donc que ce facteur explique l'avantage du plus grand nombre d'intervalles longitudinaux par rapport au nombre d'intervalles radiaux.

Nous avons initialement produit un modèle de cylindre circulaire infini 1-D comportant de nombreux intervalles radiaux. En passant au modèle de cylindre

circulaire fini 2-D, nous avons conservé le nombre d'intervalles radiaux du modèle précédent, puis nous avons graduellement augmenté le nombre d'intervalles longitudinaux. Ce n'est que vers la fin du projet que nous avons réalisé l'avantage d'avoir $Z_i > N_i$ et n'avons donc pas mis à profit cette amélioration.

5.4 MÉTHODOLOGIE EMPLOYÉE DANS LE CODE DE CALCUL PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

Le code que nous avons conçu pour le calcul de la perturbation du flux par la méthode des ordonnées discrètes a également été écrit dans un logiciel de calcul symbolique (Maple 9.5). Il est divisé en trois sections principales.

Chacune de ces trois sections contient six boucles imbriquées selon une même séquence couvrant les variables suivantes : l'énergie neutronique et l'indice l_i , la coordonnée axiale z et son indice z_i , la coordonnée radiale r et son indice i_i , l'ordonnée ξ_p et son indice p_i , l'ordonnée discrète ω_q , son indice q_i et finalement la boucle d'itération et son indice k_i . Le deuxième indice i correspond au numéro de la section pour $i = 1 \dots 3$.

5.4.1 DISCRÉTISATION DES VARIABLES ANGULAIRES

Le tableau 5.2 présente les indices directionnels q et p pour le schème S_8 .

Tableau 5.2 : Indices directionnels pour S_8

$q(\mu_q)$	$p(\xi_p)$
2	1
4	2
6	3
8	4
8	5
6	6
4	7
2	8

En observant le tableau précédent, nous constatons que les quatre (4) indices q reliés aux quatre (4) premiers indices p peuvent être obtenus à partir de la relation suivante,

$$q=2 p, \text{ pour } p=1,2,3,4 . \quad (5.1)$$

Pour les quatre derniers indices p (5, 6, 7, 8), nous constatons que les indices q qui leur sont reliés sont en séquence inverse des quatre (4) premiers indices q . Nous pouvons relier ces quatre (4) derniers indices q par la relation suivante,

$$q=2 \{p-(2 i-1)\}, \text{ pour } i= 1, 2, 3, 4 . \quad (5.2)$$

Le tableau 5.3 présente les poids spécifiques correspondants au motif présenté des ordonnées discrètes.

Les ordonnées sont alors discrétisées par les relations suivantes, $\omega_{ql} = \frac{2 \pi ql}{N}$ et

$$\xi_{pl} = -\frac{N-2 pl+2}{N} \text{ ou encore } \mu_{pl, ql} = \sqrt{1-\xi_{pl}^2} \cos(\omega_{ql}) \quad (\text{voir la figure 2.6}).$$

Tableau 5.3 : Poids pour quadrature de S_8 (Lewis et al, 1993)

n	μ_n	w_n
1	0,2182179	0,1209877
2	0,5773503	0,0907407
3	0,7867958	0,0925926
4	0,9511897	

Pour $N > 4$, il est impossible d'avoir des quadratures S_N avec des poids égaux pour des ensembles d'ordonnées de niveaux symétriques.

5.4.2 CODE DE CALCUL POUR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

Nous avons conçu et utilisé un code de calcul pour employer la méthode des ordonnées discrètes afin de simuler plusieurs échantillons cylindriques circulaires droits 2-D (ρ, z). Dans ce code, l'énergie cinétique des neutrons est aussi discrétisée et constitue donc une variable supplémentaire aux variables angulaires et géométriques.

5.4.2.1 PREMIÈRE SECTION DU CODE DE CALCUL PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

La première section contient les propriétés physiques des éléments, telles que les coefficients du tableau 2.2 et la forme de l'équation (2.13) de la section efficace microscopique de capture neutronique radiative pour plusieurs éléments. Les coefficients de chacun des éléments ont été obtenus par régressions non linéaires de données du fichier ENDF-B-VI.

La section comprend également les densités (masses volumiques), les masses atomiques M_j de l'élément j , les valeurs de Z (nombres de protons), N (nombres de neutrons) et A (nombres de nucléons) de chacun des éléments.

Dans cette section nous retrouvons aussi, les constantes et paramètres pour établir la discrétisation énergétique selon l'équation (4.19), le spectre d'énergie de Maxwell des neutrons thermiques selon l'équation (2.2) et le flux neutronique scalaire nominal comprenant la distribution de Maxwell.

Par la suite, nous retrouvons les paramètres définissant le nombre d'ordonnées discrètes, le nombre maximum d'itérations (K) et la précision requise pour mettre fin aux itérations. Les fonctions $Da(V)$ et $Db(V)$, de même que l'expression de la dépression

du flux provenant de l'équation (4.27) que nous reproduisons ici, sont également présentes dans cette première section.

$$P(\Sigma_a, V) = e^{\left((0.56 - 0.185 (V - 0.04)^2) \Sigma_a \right)} I_0 \left((0.55 - 0.200 (V - 0.31)^6) \Sigma_a \right) . \quad (4.27)$$

La section contient aussi un tableau de plusieurs concentrations spécifiques pré calculées de tous les éléments et les indices qui leur sont associés.

Nous y retrouvons également les valeurs des dimensions physiques des échantillons pour les trois volumes étudiés, telles que le rayon et la hauteur du contenu de l'échantillon. C'est également dans cette section que nous initialisons les valeurs de tous les flux angulaires discrétisés. Les valeurs de ξ_p apparaissent dans la séquence suivante de $p = 1 \dots N$, alors que les ω_q apparaissent de $q = 1 \dots Q$, où la valeur de q provient de la même ligne du tableau 5.2 que la valeur de p en vigueur.

5.4.2.2 SCHÉMA DIAMANT

Une des approches complémentaires à la méthode des ordonnées discrètes consiste à traiter les variables spatiales selon le schéma " diamant " (voir figure 5.3). Une des mailles de la sphère découpée (Bussac et Reuss, 1985, Reuss, 2003) y est représentée. L'emploi de ce schéma, nous permet de linéariser les contours des mailles (diamants) et à ainsi simplifier la résolution du système d'équations algébriques du problème de transport neutronique en permettant calculer les inconnues de proche en proche.

Les points milieux de chacun des segments des droites formant le contour de la maille sont représentés par A, B, C et D. L'intersection des droites (géodésiques pour les géométries en général, telles que la géométrie cylindrique) AB et CD est le point M au centre de la maille. Le cercle dont font partie les points C, M et D que l'on peut

représenter à la limite par la droite horizontale CMD est caractérisé par l'une des variables angulaires discrétisées μ, ξ ou η (Bussac et Reuss, 1985, Reuss, 2003) dans le cas du schéma diamant appliqué aux ordonnées discrètes.

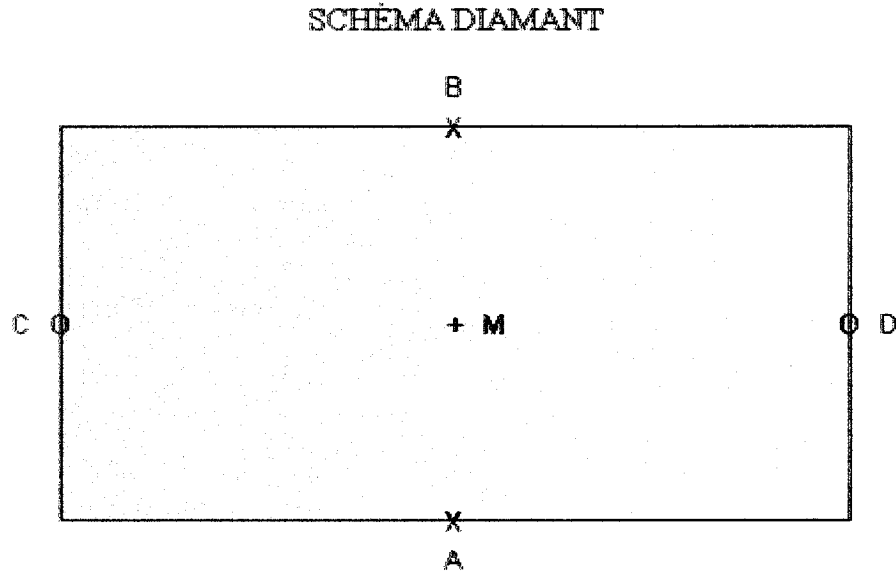


Figure 5.3 : Schéma diamant illustrant l'approximation diamantaire et facilitant le repérage des inconnues du flux neutronique.

Nous supposons que la variation spatiale du flux neutronique angulaire $\Phi(\Omega)$ dans une maille est linéaire par rapport à chacune des variables angulaires. Il s'ensuit donc que,

$$\Phi(M) := \frac{1}{2} \Phi(A) + \frac{1}{2} \Phi(B) = \frac{1}{2} \Phi(C) + \frac{1}{2} \Phi(D) . \quad (5.3)$$

pour $\Phi(\Omega) = \Phi(\mu, \xi, \omega)$ ou bien pour $\Phi(r, z)$ ou même pour $\Phi(\mu, \xi, \omega, r, z)$.

L'ensemble de ces équations linéaires directionnelles, de même qu'un ensemble similaire d'équations linéaires spatiales de schéma diamant s'ajoutent aux équations obtenues de l'équation de transport de Boltzmann et forme ainsi la représentation mathématique complète du problème de transport.

La séquence de résolution des équations débute pour les valeurs négatives de $u_{p,q}$. Avec des conditions frontières de flux de surface fixe, la valeur de $\psi_{p,q,i,j=-J}(\xi_p, \omega_q, \rho, z, E_n)$ est connue au bas sur la surface circulaire du cylindre pour $0 < \xi_p$.

Nous débutons alors la progression des calculs de la frontière externe vers l'axe central de l'échantillon, avec des valeurs croissantes de i selon une ligne horizontale spatiale du schéma diamant (Lewis et Miller, 1983). Puis nous répétons ce processus sur la prochaine ligne horizontale $j=J+1$ du maillage spatial juste au-dessus de la ligne initiale $j=J$. Le détail de la séquence de résolution est clairement décrit dans le tableau 5.2.

Lors de la résolution du système d'équations, le schéma diamant évite l'inversion du système d'équations linéaires comprenant plusieurs inconnus qui sont les flux aux points d'intersection du maillage (Bussac et Reuss, 1985, Reuss, 2003).

En effet, si $\Phi(M)$ est connu, le calcul des flux se fait alors de proche en proche à partir d'une extrémité (condition frontière) et ceci pour chaque ligne courbe (géodésique) du maillage. Puisque l'inversion d'une matrice est une opération numérique très coûteuse, l'emploi du schéma diamant réduit donc ces coûts pour résoudre le problème.

5.4.2.3 EXPRESSIONS DES ORDONNÉES DISCRÈTES DES COORDONNÉES DES SURFACES ET VOLUMES DIFFÉRENTIELS

Les coordonnées discrètes radiales sont exprimées comme suit, la longueur différentielle du rayon est $d_\rho = \frac{P}{N_i}$ (5.4), où N_i correspond au nombre d'intervalles radiaux et P est le rayon externe du cylindre. La variable radiale indexée prend alors la

forme suivante, $\rho_{il} = \frac{(Ni - il) P}{Ni}$ (5.5) et la variable indexée selon la méthode des différences finies centrées ou du schéma diamant s'exprime comme suit,

$$\rho_{il + 1/2} = \frac{\left(Ni - \frac{1}{2} - il\right) P}{Ni} \quad (5.6)$$

Les coordonnées discrètes axiales sont exprimées de la façon suivante, la largeur axiale de la maille est $dz = \frac{H}{2 ZI}$, (5.7) où ZI et $-ZI$ sont les valeurs limites de l'indice zI , puisque l'origine des coordonnées (ρ, θ, z) est localisée au milieu de l'axe vertical du cylindre ayant deux fois la hauteur $H/2$, soit H . Par symétrie, nous ne calculons que la partie du cylindre où $z > 0$. La variable z indexée s'exprime alors comme suit,

$z_{zI} = \frac{zI H}{2 ZI}$. (5.8) Cette dernière est également établie selon la méthode des différences finies centrées ou selon le schéma diamant et prend alors les formes suivantes,

$$z_{zI + 1/2} = \frac{\left(zI + \frac{1}{2}\right) H}{2 ZI} \quad (5.9) \text{ et } z_{zI - 1/2} = \frac{\left(zI - \frac{1}{2}\right) H}{2 ZI} \quad (5.10)$$

La méthode des ordonnées discrètes requiert également de calculer les surfaces latérales et parallèles à l'axe z , telles que $A_{il + 1/2, zI} = 2 \pi \rho_{il + 1/2} dz$ (5.11) et $A_{il - 1/2, zI} = 2 \pi \rho_{il - 1/2} dz$. (5.12)

Les surfaces normales à l'axe z sont obtenues de l'expression suivante, $B_{il} = \pi (\rho_{il - 1/2}^2 - \rho_{il + 1/2}^2)$. (5.13)

L'équation décrivant un élément de volume différentiel s'écrit de la façon suivante,

$$V_{il,zl} = \pi (z_{zl} - z_{zl-1}) (\rho_{il-1}^2 - \rho_{il}^2), \quad (5.14) \quad \text{alors que les sections efficaces}$$

volumétriques sont de la forme suivante,

$$\Sigma_{a_j} \left(E_l \right) = \frac{0.1000000000 \cdot 10^{25} \rho_j \sigma_{a_j}(E_l)}{M_j} \quad (5.15),$$

$\frac{\text{moles barns}}{\text{cm}^3}$

où l'indice l est celui de l'énergie neutronique et ρ_j est la densité (g/cm³) de l'élément j.

5.4.2.4 VALEURS INITIALES DU FLUX ANGULAIRE EN TOUT POINT DU MAILLAGE

Le flux angulaire de la première itération en tous points de l'échantillon est le flux angulaire qui est la solution semi-analytique (équation (4.2)) de l'équation de transport pour ce problème. Il combine donc l'effet de la dépression du flux et de l'autoprotection.

Malgré l'emploi de ce flux angulaire semi-analytique, il n'existe qu'une seule solution de transport neutronique pour ce problème qui est indépendante de la forme de la première valeur imposée lors de la première (1re) itération.

L'utilisation de la solution semi-analytique en première itération permet d'accélérer la convergence de l'itération numérique, tout comme une solution de l'équation de diffusion (DSA, Diffusion Synthetic Acceleration) en première itération peut accélérer la convergence d'un problème de transport (Warsa, 2004).

Ainsi, l'expression du flux angulaire employée dans cette section provient de l'équation (4.18). Il est très important de considérer ces facteurs angulaires,

spatiaux et énergétiques pour calculer la perturbation du flux afin d'avoir un modèle physiquement et mathématiquement représentatif. En fait, ces trois (3) classes de paramètres ont une incidence majeure sur l'autoprotection et donc sur la dépression du flux et la perturbation du flux.

5.4.3.1 DEUXIÈME SECTION DU CODE DE CALCUL PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

5.4.3.2 SOURCE DE NEUTRONS ET CONDITIONS FRONTIÈRES

Pour la solution numérique, le terme de la source de neutrons dans l'équation de transport est mis à zéro. Cependant, la source des neutrons de fission ralentis par collisions élastiques dans le modérateur est imposée de façon équivalente par des conditions frontières de surface fixes (Case, De Hoffman, Pazcek, 1953).

Ces conditions frontières sont un flux angulaire fixe de surface aux limites de l'échantillon qui provient de la solution semi-analytique de l'équation de transport pour ce problème. Ce flux angulaire localisé à la frontière est normalisé de façon à ce que le flux intégré soit le produit du flux nominal scalaire isotrope et de la distribution d'énergie maxwellienne.

Dans la seconde section, nous imposons toutes les conditions frontières de Mark selon les ordonnées discrètes et les coordonnées en r et z . Ainsi, à titre d'exemple, pour $q_{2-1/2}$ et $i_{2+1/2}$, nous avons $\psi(z = ZI) = \Phi$ qui indique que le flux neutronique intégré nominal est imposé à cette frontière ($z=ZI$ correspond à $H/2$), avant la première itération, par l'expression suivante,

$$\Psi_{p2, q2 - 1/2, i2 + 1/2, ZI, k2, l2, m2} :=$$

$$\Phi_{k2=0}(r, z, E_n) = \frac{0.5000000000 \cdot 10^{12} \sqrt{2} \sqrt{\frac{1}{m_n}} E_{l2} e^{\left(-\frac{E_{l2}}{k_B T}\right)}}{(\pi k_B T)^{(3/2)}} .$$

(5.16)

Les calculs subséquents ne modifient pas ces valeurs imposées, de sorte que les sources externes de neutrons thermiques sont toujours présentes et invariables.

5.4.4 TROISIÈME SECTION DU CODE DE CALCUL PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

5.4.4.1 SYSTÈME DE COORDONNÉES CURVILIGNES

Dans le cas d'une géométrie cylindrique circulaire droite, le système de coordonnées est non cartésien et les angles qui déterminent le flux angulaire changent au fur et à mesure du déplacement des neutrons dans l'espace. L'amplitude des ordonnées discrètes (variables angulaires) change donc constamment, et cela, même lorsque les neutrons ne changent pas physiquement de direction. Il en découle donc que l'opérateur d'advection (premier terme de l'équation de transport neutronique stationnaire) contient des dérivées angulaires pour cette géométrie (Lewis et Miller, 1993).

5.4.4.2 DIFFERENCES SPATIALES FINIES EN COORDONNÉES CURVILIGNES

En coordonnées curvilignes, la discrétisation des variables spatiales par des différences finies sur des mailles du schéma diamant requiert tout d'abord d'intégrer l'équation de transport sur un volume différentiel (5.14), de façon à éliminer les dérivées

spatiales. Ensuite, des relations linéaires de différences finies provenant du schéma diamant (5.3) sont également employées. Le volume différentiel repose sur un maillage radial et axial en géométrie cylindrique circulaire 2-D. Les valeurs des sections efficaces dans chaque maille sont supposées invariables.

La troisième section est la plus importante et la plus complexe du code. L'une des opérations les plus élaborées consiste à obtenir une valeur moyenne dans l'espace et selon l'énergie neutronique du flux intégré. Ce processus substitue aux intégrales suivantes,

$$\Phi_{moy_{j_m}} = \frac{\int_{-1}^1 \int_0^\pi \int_{E_{n_0}}^{E_{n_{th}}} \int_{-\frac{H}{2}}^{\frac{H}{2}} \int_0^P \rho \psi(\rho, z, E_n, \omega, \xi) \sin(\theta) d\rho dz dE_n d\omega d\xi}{\int_{-1}^1 \int_0^\pi \int_{E_{n_0}}^{E_{n_{th}}} \int_{-\frac{H}{2}}^{\frac{H}{2}} \int_0^P \rho \sin(\theta) d\rho dz dE_n d\omega d\xi} \quad (5.17),$$

une formule de quadratures (5.18), ci-bas.

5.4.4.3 FORMULES DE QUADRATURE

Les quadratures sont des méthodes approximatives pour calculer les résultats des intégrales de fonctions quelconques (voir section 4.2.2.2). La forme de la quadrature que nous avons utilisée afin d'obtenir le flux neutronique scalaire à partir du flux neutronique angulaire, est une forme bidimensionnelle selon l'expression suivante,

$$\Phi(\rho, z, E_n) = \frac{1}{4} \left(\sum_{p=1}^N \left(\sum_{q=1}^{N_p} w_{p,q} \psi_{p,q}(\rho, z, E_n) \right) \right) \quad (5.18),$$

où $w_{p,q}$ sont les poids de la quadrature. Nous y avons aussi substitué la définition de la direction discrète suivante,

$$\psi_{p,q}(\rho, z, E_n) = \psi(\rho, z, E_n, \omega_q, \xi_p) . \quad (5.19)$$

Les poids $w_{p,q}$ correspondants aux mailles dans la sphère de direction (voir figure 5.3) sont les aires de ces mailles rapportées à 4π (Bussac et Reuss, 1985).

Cependant, en plus d'employer les formules de quadrature afin de déterminer les flux intégrés à partir des flux angulaires, nous devons également obtenir des valeurs moyennes des flux intégrés, telles que l'équation (2.1) appliquée à l'équation (4.18).

Pour calculer ces valeurs moyennes, nous avons également fait appel à des formules de quadratures.

Nous avons traité l'intégration des équations selon l'énergie et les coordonnées spatiales par quadratures, en prenant en compte la distribution en énergie des neutrons selon l'équation (5.16) et de la dépendance en énergie des sections efficaces d'absorption neutronique, selon l'équation (2.13).

$$\Phi_{moy\ sum\ j_m} = \frac{\sum_{l=1}^{LL} \left(\sum_{zi=0}^{ZI} \left(\sum_{i=1}^{Ni} \left(4\pi \rho_i (\rho_i - \rho_{i-1}) (z_{zi} - z_{zi-1}) (E_l - E_{l-1}) \Phi_{scal\ sum\ i, zi, k, l, m} \right) \right) \right)}{\sum_{l=1}^{LL} \left(\sum_{zi=0}^{ZI} \left(\sum_{i=1}^{Ni} (4\pi \rho_i (\rho_i - \rho_{i-1}) (z_{zi} - z_{zi-1}) (E_l - E_{l-1})) \right) \right)} \quad (5.20)$$

La combinaison des quadratures (5.18) et (5.20) est équivalente à l'intégrale multiple (5.17).

Puisque des sommes équivalentes à des formules de quadratures sont calculées dans cette dernière section, il est préférable d'initier à zéro les termes cumulatifs de ces

sommes menant d'une part à la perturbation du flux neutronique, causée par une concentration d'indice m , ρ_{j_m} de l'élément j et d'autre part au flux intégré moyen

résultant des interactions entre les neutrons thermiques et une même concentration d'indice m des noyaux de l'élément j , tels que représentés par les relations suivantes,

$$P_{\Phi_{sum_{j_m}}} = 0 \quad (5.21) \quad \text{et} \quad \Phi_{moy_{sum_{j_{i, zi, k, l, m}}}} = 0 \quad (5.22) \quad \text{respectivement.}$$

5.4.4.4 CYLINDRE 2-D, DIFFERENCES FINIES SPATIALES

Puisque les échantillons que nous modélisons sont des cylindres finis de différents volumes, nous élaborons la méthode des ordonnées discrètes en coordonnées cylindriques 2-D (ρ, z) pour un cylindre fini (Lewis et Miller, 1993). Ce choix est justifié par des calculs plus simples, plus rapides et requérant significativement moins d'espace mémoire tout en modélisant les problèmes adéquatement.

Il est tout à fait raisonnable de supposer une symétrie azimutale (θ) puisque des mesures expérimentales réalisées sur le réacteur Slowpoke indiquent des pourcentages d'anisotropie radiale inférieure à 0,5 % et d'anisotropie axiale d'environ 5 % (St-Pierre et Kennedy, 2004).

L'équation de transport discrétisée pour les variables angulaires et pour les coordonnées cylindriques 2-D (ρ, z) prend la forme suivante,

$$\begin{aligned} & \mu_{p,q} A_{i+1/2,j} \psi_{p,q,i+1/2,j}(\rho_{i+1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \\ & - \mu_{p,q} A_{i-1/2,j} \psi_{p,q,i-1/2,j}(\rho_{i-1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \\ & + \frac{\alpha_{p,q+1/2} (A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q+1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q+1/2}, E_n)}{w_{p,q}} \\ & - \frac{\alpha_{p,q-1/2} (A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n)}{w_{p,q}} \\ & + \xi_p B_i \psi_{p,q,i,j+1/2}(\rho_i, z_{j+1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) - \xi_p B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \end{aligned}$$

$$+ \frac{V_{i,j} \Sigma_{t,i,j}(E_n) \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n)}{V} = V_{i,j} Q_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n)$$

(5.23) (équation (4-87) de Lewis et *al*, 1993).

La variable $\alpha_{p,q}$ présente dans les équations précédentes est un coefficient de différentiation angulaire selon les directions ξ_p et ω_q et $\mu_{p,q}$. Les indices p et q sont associés aux variables angulaires discrètes ξ et μ ou ξ et ω respectivement.

C'est pourquoi, il est courant d'avoir des coefficients décrits de la façon suivante, $\alpha_{p,q-1/2}$, $\alpha_{p+1/2,q}$, qui signifient que les coefficients de différentiation angulaire sont reliés à la direction ξ_p et $\omega_{q-1/2}$ à mi-chemin entre ω_q et ω_{q-1} et à la direction $\xi_{p+1/2}$ à mi-chemin entre ξ_p et ξ_{p+1} et ω_q .

Il en est de même pour les variables spatiales ρ_i, z_j dont le maillage en i, j est basé sur des différences finies centrées ou schéma diamant.

Les coefficients $\alpha_{p,q}$ sont des termes de débits neutroniques provenant des arêtes ou des surfaces d'une cellule directionnelle (Lewis et Miller, 1993). De plus, il est requis que ces termes $\alpha_{p,q}$ ne créent pas, ni ne détruisent de neutrons. Ils doivent donc maintenir la propriété de conservation des neutrons de l'équation de transport sous sa forme approximative, avec les variables angulaires.

Lorsque le flux neutronique est spatialement uniforme et isotrope (directions), il suffit d'annuler le terme d'advection pour déterminer les coefficients α du terme d'advection.

Ainsi, après quelques réarrangements algébriques la relation pour déterminer les coefficients est la suivante,

$$\alpha_{p, q + 1/2} = \alpha_{p, q - 1/2} - \mu_{p, q} w_{p, q} . \quad (5.24)$$

Puisque la condition de la conservation des neutrons doit être assurée, la formule de quadrature est donc utilisée en intégrant l'équation de transport sous la forme contenant l'approximation des dérivées angulaires selon les angles.

L'équation de quadrature (5.22) ne s'avère valide, que si la condition

$$\sum_{p=1}^N \left(\sum_{q=1}^N (\alpha_{p, q + 1/2} \psi_{p, q + 1/2} - \alpha_{p, q - 1/2} \psi_{p, q - 1/2}) \right) = 0 \quad (5.25)$$

est remplie. Pour ce faire, il suffit que $\alpha_{p, 1/2} = 0$, (5.26) quelque soit la valeur de $\psi_{p, q}$.

Pour une valeur directionnelle de q connue, nous pouvons balayer le maillage espace-angle dans la même direction que celle des déplacements des neutrons. Cette règle minimise l'accumulation des erreurs de calcul numérique, dont les erreurs d'arrondissement (Bell et Glasstone, 1970).

Les variables $A_{i+2,j} = 2 \pi \rho_{i+1/2} dz_j$ (5.11) sont des surfaces latérales et parallèles à la direction z déjà calculée dans la première section qui sont calculées de nouveau dans la 3^e section de même que pour les surfaces B_i suivantes et les volumes différentiels, selon l'équation (5.14). Les variables $B_i = \pi (\rho_{i-1/2}^2 - \rho_{i+1/2}^2)$ (5.13) sont les surfaces (horizontales) normales à la direction z.

La source des neutrons de l'équation de transport est désignée par le symbole $Q_{p, q, i, j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n)$, mais est mise à zéro dans ces équations.

Les valeurs du flux angulaire ψ sur les surfaces périphériques de l'échantillon considéré sont supposées connues puisqu'elles correspondent aux conditions frontières.

Pour le problème de dimension 2-D en coordonnées cylindriques circulaires, selon les variables ρ, z , il y a six (6) cas directionnels à considérer.

Le premier cas couvre la situation où $\mu_{p,q} < 0$ et $0 < \xi_p$, pour lequel nous obtenons l'équation de transport neutronique (5.24) adaptée à ces conditions,

$$\begin{aligned} \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i+1/2,j}(\rho_{i+1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\ & + \frac{(\alpha_{p,q+1/2} - \alpha_{p,q-1/2})(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n)}{w_{p,q}} \\ & + 2 |\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) + V_{i,j} Q_{p,q,i,j} \Bigg) \Bigg/ \left(\right. \\ & |\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) + 2 |\xi_p| B_i + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})(\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} \\ & \left. + \frac{V_{i,j} \Sigma_{t,i,j}(E_n)}{V} \right) \cdot \quad (5.27) \end{aligned}$$

Puisque les conditions frontières imposent une valeur de flux angulaire fixe des surfaces limites des échantillons au bas et au-dessus du cylindre, de même que sur la surface verticale circulaire, nous pouvons débiter les calculs au bas ou au-dessus de l'échantillon en nous déplaçant le long du maillage axial (j) et radial (i) vers le centre avec des valeurs décroissantes de i pour $\psi_{p,q,i,j}$.

Dans notre cas, ce processus doit se dérouler selon des valeurs croissantes d'i, puisque l'origine de l'indice radial i est en périphérie du cylindre. Cependant, l'indice

axial j croît du centre du cylindre vers le haut. Puisque nous supposons que le problème a une symétrie axiale, nous ne résolvons pas pour la partie en bas ($z < 0$) du centre de l'échantillon cylindrique.

Afin de calculer l'octant pour lequel $0 < \mu_{p,q}$ et $0 < \xi_p$, la procédure est similaire sauf que l'on doit se déplacer dans le maillage de l'intérieur vers l'extérieur, selon l'indice i croissant.

Toutefois, dans notre cas, le déplacement correspond à un indice i décroissant. L'équation concernée demeure valide, à condition de remplacer $\psi_{p,q,i+1/2,j}$ par $\psi_{p,q,i-1/2,j}$. De plus, puisque l'indice i croît de la périphérie vers le centre du cylindre, c'est plutôt $\psi_{p,q,i-1/2,j}$ qui est remplacé par $\psi_{p,q,i+1/2,j}$ ce qui donne le résultat suivant,

$$\begin{aligned} \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i-1/2,j}(\rho_{i-1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\ & + \frac{(\alpha_{p,q+1/2} - \alpha_{p,q-1/2})(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n)}{w_{p,q}} \\ & + 2|\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) + V_{i,j} Q_{p,q,i,j} \Big) \Bigg/ \left(\right. \\ & |\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) + 2|\xi_p| B_i + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})(\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} \\ & \left. + \frac{V_{i,j} \Sigma_{i,j}(E_n)}{V} \right), \quad (5.28) \end{aligned}$$

Le flux angulaire à $i=1/2$ ($i=NI$, dans notre cas) le long de l'axe central du cylindre est indépendant de $\mu_{p,q}$ pour un p fixe. Nous pouvons approcher ceci en posant,

$$\psi_{p, q, i=1/2, j}(\rho_{i=1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = \frac{\sum_{qc=1}^N \left(\sum_{pc=1}^N w_{pc, qc} \psi_{pc, qc, i=1/2, j}(\rho_{i=1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right)}{w_{p, q}}, \quad (5.29)$$

pour laquelle les indices des sommes sont contraints par la condition $\mu_{p, q} < 0$.

Pour l'ensemble des cas possibles en géométrie cylindrique 2-D, voici les séries d'équations à utiliser.

Pour $0 < \mu_{p, q}$ et $\xi_p < 0$, de l'intérieur vers l'extérieur de haut en bas.

$$\begin{aligned} \psi_{p, q, i, j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p, q}| (A_{i+1/2, j} + A_{i-1/2, j}) \psi_{p, q, i-1/2, j}(\rho_{i-1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\ & + \frac{(\alpha_{p, q+1/2} - \alpha_{p, q-1/2}) (A_{i+1/2, j} - A_{i-1/2, j}) \psi_{p, q-1/2, i, j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n)}{w_{p, q}} \\ & \left. - 2 |\xi_p| B_i \psi_{p, q, i, j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \right) / \left(\right. \\ & \left. |\mu_{p, q}| (A_{i+1/2, j} + A_{i-1/2, j}) + \frac{(A_{i+1/2, j} - A_{i-1/2, j}) (\alpha_{p, q+1/2} + \alpha_{p, q-1/2})}{w_{p, q}} + \frac{V_{i, j} \Sigma_{i, j}(E_n)}{V} \right) \end{aligned} \quad (5.30)$$

et

$$\begin{aligned} \psi_{p, q, i, j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) = \\ 2 \psi_{p, q, i, j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) - \psi_{p, q, i, j+1/2}(\rho_i, z_{j+1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \end{aligned} \quad (5.31)$$

Pour $0 < \mu_{p, q}$ et $0 < \xi_p$, de l'intérieur vers l'extérieur, de bas en haut,

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i-1/2,j}(\rho_{i-1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\
& + \frac{(\alpha_{p,q+1/2} - \alpha_{p,q-1/2})(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})}{w_{p,q}} \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n) \\
& + 2|\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \Big) / \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \right. \\
& + 2|\xi_p| B_i + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})(\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} + \frac{V_{i,j} \Sigma_{i,j}(E_n)}{V} \Big)
\end{aligned}
\quad (5.32)$$

Pour $\mu_{p,q} < 0$ et $\xi_p < 0$, de l'extérieur vers l'intérieur et de haut en bas,

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i+1/2,j}(\rho_{i+1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\
& + \frac{(\alpha_{p,q+1/2} - \alpha_{p,q-1/2})(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})}{w_{p,q}} \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n) \\
& + 2|\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \Big) / \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \right. \\
& + 2|\xi_p| B_i + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})(\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} + \frac{V_{i,j} \Sigma_{i,j}(E_n)}{V} \Big)
\end{aligned}
\quad (5.33)$$

et

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j+1/2}(\rho_i, z_{j+1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) = \\
2 \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) - \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n)
\end{aligned}
\quad (5.34)$$

Pour $\mu_{p,q} < 0$ et $0 < \xi_p$, de l'extérieur vers l'intérieur, de bas en haut

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i+1/2,j}(\rho_{i+1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\
& + \frac{(\alpha_{p,q+1/2} - \alpha_{p,q-1/2}) (A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n)}{w_{p,q}} \\
& + 2 |\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \Big) \Bigg/ \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \right. \\
& + 2 |\xi_p| B_i + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) (\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} + \frac{V_{i,j} \Sigma_{t,i,j}(E_n)}{V} \Bigg)
\end{aligned}$$

, (5.35)

et

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j+1/2}(\rho_i, z_{j+1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \\
2 \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) - \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) & . (5.36)
\end{aligned}$$

Pour $0 < \mu_{p,q}$ et $\xi_p < 0$, de l'intérieur vers l'extérieur, de haut vers le bas,

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) := & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i+1/2,j}(\rho_{i+1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\
& + 2 |\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j+1/2}(\rho_i, z_{j+1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \\
& + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) (\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2}) \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n)}{w_{p,q}} \Big) \\
& \Bigg/ \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) + 2 |\xi_p| B_i \right. \\
& + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j}) (\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} + \frac{\Sigma_{t,i,j}(E_n) V_{i,j}}{V} \Bigg) , (5.37)
\end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned}
\psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \\
2 \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) - \psi_{p,q,i,j+1/2}(\rho_i, z_{j+1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) & . (5.38)
\end{aligned}$$

Pour $0 < \mu_{p,q}$ et $0 < \xi_p$, de l'intérieur vers l'extérieur, de bas en haut nous obtenons,

$$\begin{aligned} \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = & \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \psi_{p,q,i-1/2,j}(\rho_{i-1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \right. \\ & + \frac{(\alpha_{p,q+1/2} - \alpha_{p,q-1/2})(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})}{w_{p,q}} \psi_{p,q-1/2,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_{q-1/2}, E_n) \\ & \left. + 2 |\xi_p| B_i \psi_{p,q,i,j-1/2}(\rho_i, z_{j-1/2}, \xi_p, \omega_q, E_n) \right) / \left(|\mu_{p,q}| (A_{i+1/2,j} + A_{i-1/2,j}) \right. \\ & \left. + 2 |\xi_p| B_i + \frac{(A_{i+1/2,j} - A_{i-1/2,j})(\alpha_{p,q+1/2} + \alpha_{p,q-1/2})}{w_{p,q}} + \frac{V_{i,j} \Sigma_{i,j}(E_n)}{V} \right) \end{aligned} \quad (5.39)$$

et

$$\begin{aligned} \psi_{p,q,i+1/2,j}(\rho_{i+1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) = \\ 2 \psi_{p,q,i,j}(\rho_i, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) - \psi_{p,q,i-1/2,j}(\rho_{i-1/2}, z_j, \xi_p, \omega_q, E_n) \end{aligned} \quad (5.40)$$

Notre approche consiste à résoudre ce système d'équations par itérations. Cette option requiert une certaine intuition physique pour déterminer les valeurs initiales de flux angulaires, bien que certains auteurs (Lewis et Miller, 1984, Reuss, 2003) suggèrent des valeurs initiales nulles, nous croyons que la convergence est plus rapide en estimant des valeurs plus vraisemblables pour le flux angulaire. À cet effet, nous avons utilisé les solutions semi-analytiques comme valeurs initiales d'itération.

Nous avons choisi de résoudre les problèmes par itérations au lieu d'employer l'une des méthodes de résolution d'équations matricielles. En effet, les méthodes itératives exigent moins d'espace-mémoire, sont plus faciles à implanter, sont plus rapides et sont donc plus efficaces.

CHAPITRE 5

5.5 MÉTHODE D'ITÉRATIONS

Afin de s'assurer de la convergence de l'algorithme d'itération, nous avons d'abord défini l'expression suivante de l'erreur relative du flux neutronique scalaire,

$$E_{\phi_R} = \frac{\phi(\rho, z, E, k) - \phi(\rho, z, E, k - 1)}{\phi(\rho, z, E, k - 1)} \quad (5.41).$$

La méthode de résolution du système d'équations a été implantée en créant une boucle d'itération externe dans laquelle, la valeur du flux neutronique angulaire de chacune des itérations est modifiée selon un algorithme d'itération reconnu.

C'est la méthode, dite θ modifiée, avec $\theta < 1$ qui fut adaptée et appliquée à la résolution de notre problème. L'expression suivante représente l'algorithme d'itération θ ,

$$\psi_{i+1}(\rho, z, \omega, \xi, E) = \theta \psi_i(\rho, z, \omega, \xi, E) + (1 - \theta) \psi_{i-1}(\rho, z, \omega, \xi, E), \quad (5.42)$$

où $\psi_i(\rho, z, \omega, \xi, E)$ correspond au flux neutronique angulaire obtenu à l'itération i en cours, $\psi_{i-1}(\rho, z, \omega, \xi, E)$ correspond au flux angulaire obtenu au cours de l'itération précédente $i-1$ et $\psi_{i+1}(\rho, z, \omega, \xi, E)$ correspond à la nouvelle valeur du flux angulaire a utilisé lors de la prochaine itération $i+1$.

Des essais ont été réalisés avec différentes valeurs de θ afin de déterminer leur effet sur le taux de convergence et l'erreur relative. Les valeurs de θ employées sont 1/1000, 1/100, 1/10 et 1/3. Ainsi pour $\theta = 1/3$,

$$\psi_{p, q, i, zi, k, l, m} = \frac{2}{3} \psi_{p, q, i, zi, k, l, m} + \frac{1}{3} \psi_{p, q, i, zi, k-1, l, m} . \quad (5.43)$$

Dans tous les cas, l'erreur relative sur l'ensemble des valeurs du flux neutronique scalaire, à n'importe quelle position discrète et à n'importe quelle énergie discrète était inférieure à 1,0E-11. De plus, nous n'avons pas observé de divergence ou d'oscillations imputables à une valeur particulière de θ .

Durant l'ensemble des simulations, le nombre d'itérations successives a été déterminé de façon à maintenir en tout temps une erreur relative inférieure à 1E-11.

Puisque notre objectif principal consistait à calculer la perturbation du flux ou encore la dépression du flux combinée à l'autoprotection, il nous fallait déterminer les rapports entre les flux intégrés moyens de chacun des éléments j et le flux intégré moyen de l'élément de référence (l'aluminium), considérablement dilué. Le rapport s'écrit simplement,

$$P_{\Phi_{sum_j m} \left(\sum a_{j m}, V \right)} = \frac{\Phi_{moy_{sum_j m} \left(\sum a_{j m}, V \right)}}{\Phi_{moy_{sum_{Al_1} \left(\sum a_{Al_1}, V \right)}}} . \quad (5.44)$$

5.6 SIMULATION PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

Nous avons simulé les expériences de mesure de la perturbation du flux neutronique dans un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke, par la méthode des ordonnées discrètes. Notre modèle numérique dépend en partie de la régression non linéaire de ces résultats expérimentaux, afin de nous fournir une expression de la

dépression du flux. Cependant, la simulation de l'autoprotection à l'intérieur de l'échantillon est presque entièrement indépendante du résultat de cette régression.

Ainsi, nous avons mis au point un modèle semi-analytique (SSA) heuristique et empirique de même qu'un modèle numérique (MOD- S_8) performant basé sur une méthode reconnue. Ceci nous permet donc de comparer ces types de modèles différents et presque indépendants afin de les valider l'un par rapport à l'autre.

Le modèle SSA contraint le modèle numérique des ordonnées discrètes à la première itération, afin d'en accélérer la convergence.

Malgré cette contrainte initiale, nous sommes assurés que la solution obtenue par la méthode numérique (MOD- S_8) est indépendante de ces valeurs imposées lors de la première itération. En effet, nous avons vérifié que des valeurs différentes de flux angulaires imposées à la première itération menaient toutes à une solution unique, mais selon des durées de convergence différentes.

5.7 ANOMALIES NUMERIQUES OBSERVEES ET CORRECTIFS **APPLIQUES LORS DES SIMULATIONS PAR LA METHODE DES** **ORDONNEES DISCRETES**

Selon Lax (Lapidus et *al*, 1982) les conditions de consistance et stabilité sont requises pour qu'il y ait convergence d'une méthode de résolution d'un système d'équations différentielles paraboliques par différences finies. La majorité des problèmes physiques et techniques sont représentés par une ou plusieurs équations aux dérivées partielles paraboliques.

La consistance a trait à l'assurance que lorsque la largeur des mailles (intervalles, $\Delta(\rho)$, $\Delta(z)$) d'une équation aux différences finies diminue, l'erreur résiduelle tend vers zéro. La stabilité est l'assurance que la solution est bornée et ne dépend pas de la forme de l'équation aux différences finies, mais dépend plutôt de la croissance instable ou de la décroissance stable des erreurs causées par les opérations arithmétiques nécessaires pour résoudre l'équation.

Il est bien connu que l'un des inconvénients du schéma diamant est qu'il peut produire des flux angulaires négatifs et donc non physiques (Reuss, 2003). Ces flux peuvent engendrer des oscillations instables ou des valeurs négatives de flux angulaires. Ces solutions sont donc parfois divergentes. Trois facteurs peuvent être à l'origine de ces oscillations négatives soit,

- 1) S_N , $N \gg 1$ ou encore $\mu_j \ll 1$. Les oscillations ou l'instabilité et donc la divergence peuvent apparaître lorsque N de S_N est très élevé, tel que μ_j et particulièrement $\mu_{\frac{N}{2}}$ approche zéro (Bell et Glasstone, 1970),
- 2) $\Sigma_t \gg 10$ b. Les oscillations peuvent apparaître lorsque les sections efficaces d'absorption neutronique et totales sont élevées (Lewis et Miller, 1993, pp 184,185, Bell et Glasstone, 1970, p 224),
- 3) $\Delta(x_k) \gg \epsilon > 0$. Les oscillations peuvent également apparaître lorsque la largeur des intervalles spatiaux est insuffisamment petite (Lewis et Miller, 1993, Reuss, 2003, Bell et Glasstone, 1970).

Aux fins de simplicité, considérons l'équation de transport neutronique pour un plan infini, en coordonnées cartésiennes correspondant à l'équation (5.12) de Bell et Glasstone (Bell et Glasstone, 1970) adaptée à notre nomenclature,

$$\psi(x_{k+1}, \mu_j) = \frac{\left(1 - \frac{1}{2} \frac{\sum_t \Delta(x_k)}{\mu_j}\right) \psi(x_k, \mu_j)}{1 + \frac{1}{2} \frac{\sum_t \Delta(x_k)}{\mu_j}} + \frac{Q \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\sum_t \Delta(x_k)}{\mu_j}\right)}{1 + \frac{1}{2} \frac{\sum_t \Delta(x_k)}{\mu_j}}, \quad (5.45)$$

où $\Delta(x_k)$ représente la largeur de l'intervalle de discrétisation spatiale et k de x_k représente la k^e itération.

En appliquant tel que requis l'équation (5.45) avec $\mu_j > 0$, les coefficients de $\psi(x_k, \mu_j)$ et Q dans les termes à droite de l'égalité sont inférieurs à 1. Il s'ensuit que les erreurs introduites par les calculs d'approximations numériques, telles que les erreurs d'arrondissement tendent à être diminuées plutôt qu'augmentées après de nombreuses itérations.

Nous pouvons donc établir la règle suivante, il faut intégrer selon la direction de déplacement des neutrons ($\mu_j > 0$) afin d'éviter l'accumulation des erreurs numériques.

Nous abordons d'emblée les trois (3) causes des oscillations ou divergences. Considérons les numérateurs des coefficients de $\psi(x_k, \mu_j)$ et Q , (soit, $1 - \frac{1}{2} \frac{\sum_t \Delta(x_k)}{\mu_j}$) à droite de l'égalité de l'équation (5.45).

Lorsque $\mu_j \ll 1$ (facteur 1) ou $\sum_t \gg 1$ (facteur 2) ou encore $\Delta(x_k) \gg \epsilon$ (facteur 3), alors les numérateurs pourraient devenir négatifs $\{ (1 - \frac{1}{2} \frac{\sum_t \Delta(x_k)}{\mu_j}) < 0 \}$ et ainsi causer des flux négatifs ($\psi(x_{k+1}, \mu_j) < 0$) ou encore des oscillations instables, ce qui est physiquement inacceptable.

Puisque dans plusieurs des simulations Σ_l qui est imposé par les conditions physiques du problème de perturbation du flux est nécessairement élevé, nous n'avons pas l'option d'en diminuer la valeur.

À première vue, les oscillations ou les flux négatifs peuvent être évités en choisissant $\Delta(x_k) \ll \varepsilon$ ($\varepsilon > 0$ et $\varepsilon \ll 1$), c'est-à-dire de réduire la largeur des intervalles spatiaux (Lewis et Miller, 1993, Reuss, 2003, Bell et Glasstone, 1970).

Nous pourrions aussi diminuer N du schème S_N de façon à éviter que μ_j , mais surtout $\mu_{\frac{N}{2}}$ n'approche de zéro. Toutefois, ceci n'est certainement pas souhaitable, car il est également important de maintenir la précision angulaire.

Il semble donc que la meilleure solution est d'optimiser la valeur de $\Delta(x_k)$ pour un N élevé de façon à minimiser l'amplitude des oscillations et éviter les flux négatifs tout en minimisant le coût des calculs numériques.

Cependant, lorsqu'il est difficile d'affiner le maillage à cause de coûts prohibitifs, nous pouvons alors corriger les flux négatifs anormaux en les forçant égaux à zéro lors des itérations (Lewis et *al*, 1993, pp 184-185, Bell et Glasstone, 1970, p 224).

Nous avons employé cette approche de la façon suivante;

$$\text{si } (\psi_{p,q,i,zi,k,l,m} < 0) \text{ alors } \psi_{p,q,i,zi,k,l,m} = 0, \quad (5.46) \text{ et}$$

$$\Phi_{\text{scal sum } i, zi, k, l, m} = \Phi_{\text{scal sum } i, zi, k, l, m} + \frac{1}{4} w_{p,q} \psi_{p,q,i,zi,k,l,m} \quad (5.47), \text{ selon}$$

l'équation (4.67) de Lewis et Miller, 1993.

En effet, puisque généralement $\frac{\Sigma_s}{\Sigma_s + \Sigma_a} \ll 1$, la plupart des neutrons à

l'intérieur de l'échantillon ne subissent pas ou peu de collisions et les flux neutroniques angulaires tendent à être de très faibles valeurs, de sorte que lorsqu'ils deviennent négatifs leurs amplitudes demeurent très basses. C'est pourquoi la mise à zéro de très faibles flux angulaires négatifs a très peu d'impact négatif sur les calculs subséquents.

Dans notre cas, nous avons observé des oscillations et des valeurs négatives du flux neutronique angulaire près de l'axe de symétrie du cylindre, mais sans qu'il n'y ait de divergence.

Nous avons pu réduire l'amplitude et la fréquence des oscillations près de l'axe cylindrique de façon importante en diminuant quelque peu la largeur des intervalles des coordonnées spatiales. Nous avons ainsi obtenu des oscillations convergentes de faibles amplitudes.

De plus, lorsque des valeurs de flux angulaire étaient négatives, nous les avons mises à zéro et avons poursuivi les itérations. À la fin de toutes les itérations, il n'y avait pas de valeurs négatives du flux neutronique angulaire.

Après avoir ainsi déterminé les conditions optimales de simulation, nous avons également implanté le processus suivant :

- 1) Déterminer si la valeur du flux neutronique scalaire à l'intervalle radial i est plus élevée que celle de l'intervalle $i-1$ localisé plus près de la surface externe de l'échantillon.

- 2) Si c'est le cas, calculer de nouveau le flux neutronique scalaire en supposant une décroissance exponentielle par rapport à la valeur précédente, localisée plus près de la surface externe.
- 3) Sinon, aucune correction n'est effectuée.

Ce processus est représenté par les expressions suivantes,

$$\text{Si } (\Phi_{scal_{sum_{i-1, zi, k, l, m}}} < \Phi_{scal_{sum_{i, zi, k, l, m}}}) \text{ alors}$$

$$\Phi_{scal_{sum_{i, zi, k, l, m}}} = \Phi_{scal_{sum_{i-1, zi, k, l, m}}} e^{(-\lambda (\rho_{i-1} - \rho_i))} \quad (5.48)$$

Ce processus de contrôle assure qu'aucune des valeurs du flux angulaire n'est supérieure à la valeur en périphérie de l'échantillon. Le contraire serait évidemment une situation non physique. L'ensemble de ces mesures a permis la convergence des flux et le maintien de conditions physiques.

5.8 RÉSULTATS OBTENUS PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES

La figure 5.4 présente les résultats de la perturbation du flux neutronique d'un échantillon de 1,0 ml d'or (Au). Trois (3) séries de résultats y sont présentées aux fins de comparaison. Les résultats expérimentaux de Kennedy et Marcotte pour un échantillon de 1,0 ml (Kennedy et *al*, 1984), la perturbation du flux obtenue par la méthode semi-analytique et les résultats de la perturbation du flux neutronique obtenue par la méthode des ordonnées discrètes r, z E.

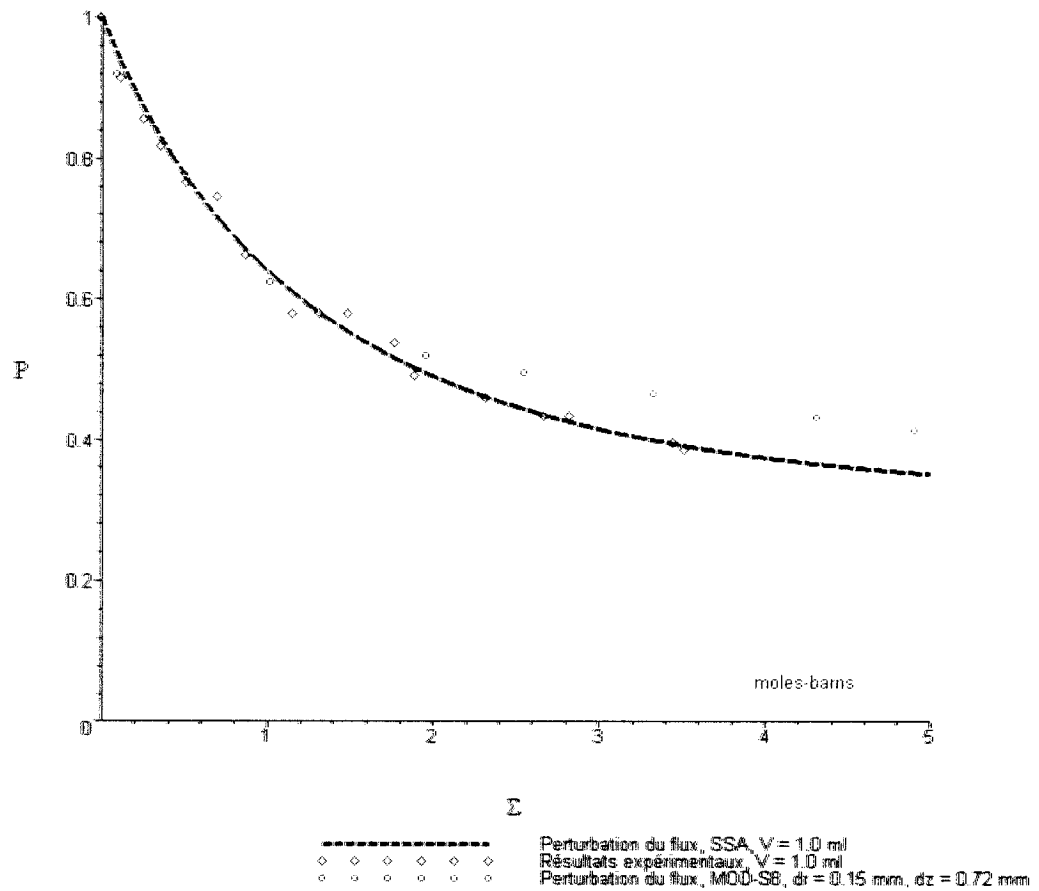


Figure 5.4 : Graphique de la perturbation du flux neutronique en fonction de la section efficace macroscopique d'absorption neutronique Σ_a (moles-b) d'un échantillon de 1,0 ml. Trois (3) séries de résultats de perturbation du flux neutronique sont exhibées sur le graphique. Les résultats expérimentaux, les résultats de la solution semi-analytique et ceux de la méthode des ordonnées discrètes S_8 .

Les résultats de la perturbation du flux par la méthode des ordonnées discrètes sont comparables aux deux autres séries de résultats. Les écarts entre ces résultats sont d'ailleurs négligeables sur la plage de 0 à 2 moles-b. Nous considérons les écarts plus importants pour $\Sigma_a > 2$ moles-b aux limites de discrétisation des coordonnées spatiales et de l'énergie pour la méthode des ordonnées discrètes.

Avec la méthode des ordonnées discrètes selon le schème S_8 , nous avons besoin de mémoires vives supplémentaires à chaque nouvelle itération. Chacune des itérations nous rapproche de la convergence et de résultats précis. En contrepartie, la durée d'exécution de ces calculs (quelques jours) augmente de façon importante avec les discrétisations spatiales et énergétiques accrues. Dans certains cas, des durées de plusieurs jours (> 5 jours) ne suffisaient pas pour obtenir un résultat de deuxième (2^e) itération.

De façon générale, nous considérons les trois séries de résultats en accord et relativement rapprochées les uns des autres.

5.9 COMPARAISON DES RÉSULTATS OBTENUS PAR LA MÉTHODE DES ORDONNÉES DISCRÈTES AUX RÉSULTATS DU MODÈLE SEMI-ANALYTIQUE

Le tableau 5.4 présente les résultats d'une analyse statistique des écarts entre les résultats de la méthode des ordonnées discrètes 2-D et ceux de la solution semi-analytique de l'équation de transport neutronique.

Tableau 5.4 : Résultats de l'analyse statistique des écarts entre les résultats obtenus par la méthode des ordonnées discrètes, les résultats semi-analytiques et les résultats expérimentaux, pour des échantillons de 1 ml de concentrations variables d'or (Au).

Méthode	MOD (1)	SSA (2)
Nombre de points	9	17
Écart-moyen	0,0219 (2,2 %)	0,0002 (0,02 %)
Écart-type	0,0325 (3,2 %)	0,0158 (1,6 %)
Coefficient de régression R	-0,9186	-0,9392

(1) Méthode des ordonnées discrètes en comparaison avec la solution semi-analytique.

(2) Solution semi-analytique en comparaison avec les résultats expérimentaux pour des échantillons de 1,0 ml.

Selon le tableau 5.4, la moyenne des écarts entre les résultats de simulation de la perturbation du flux neutronique, par la méthode des ordonnées discrètes et la solution semi-analytique est d'environ 2 %, alors que l'écart-type est d'environ 3 %.

À partir du tableau 4.7, nous obtenons la moyenne des écarts-moyens de la solution semi-analytique par rapport aux résultats expérimentaux des sept (7) éléments de 0,33 %, la moyenne des écarts-types de 1,2 % et la moyenne des coefficients de régression d'environ -0,94.

Puisque les résultats du modèle semi-analytique sont très rapprochés des résultats expérimentaux, ils constituent une base de comparaison valable pour les résultats du modèle numérique. Les faibles écarts et le coefficient de régression élevé des résultats du modèle numérique (MOD-S₈) par rapport aux résultats semi-analytiques indiquent que les écarts du modèle numérique de transport neutronique sont du même ordre de grandeur que les incertitudes fortuites des résultats expérimentaux (environ 2 %).

Les résultats du tableau 5.4 indiquent que le modèle numérique de transport neutronique par la méthode des ordonnées discrètes et la solution semi-analytique représentent bien la perturbation du flux neutronique, pour six (6) des sept (7) éléments (très bien pour 4 éléments) dans un site d'irradiation interne du réacteur Slowpoke.

De plus, ces bons résultats statistiques tendent à confirmer l'absence d'erreurs systématiques dans le modèle semi-analytique et le modèle numérique de transport.

En effet, la probabilité de la présence d'une erreur systématique dans l'approche semi-analytique et d'une erreur systématique distincte dans l'approche numérique alors que les deux méthodes donnent des résultats sensiblement identiques est très faible. Puisque nous considérons des erreurs systématiques distinctes, nous sommes justifiées, de les considérer indépendantes et d'utiliser alors la loi de probabilité suivante :

$$P(A \wedge B) = P(A) * P(B). \quad (5.49)$$

En considérant $P(A)$ comme étant la probabilité qu'une erreur systématique de l'approche A ait donné le résultat P (Perturbation), et $P(B)$, la probabilité qu'une erreur systématique différente et indépendante de l'approche B ait donné le même résultat P, alors la probabilité que les deux approches et leurs erreurs systématiques A et B respectivement devient donc le produit des probabilités individuelles.

En supposant que ces probabilités individuelles sont du même ordre de grandeur et faible, disons $P(A) = P(B) = 0,1$ (10 %), alors la probabilité combinée $P(A \wedge B)$ serait 0,01 (1 %). (5.50)

Examinons maintenant, la probabilité d'un événement de mode commun $P(C)$ (C pour commun) par lequel une même erreur systématique soit présente dans les deux approches (A, semi-analytique et B, numérique) et que les résultats des deux approches soient similaires. Le seul élément commun aux deux (2) méthodes est l'expression semi-analytique de la perturbation du flux qui est incluse dans le code de calcul de la méthode semi-analytique, mais également dans le code de calcul de la méthode des ordonnées discrètes avant la première itération.

La méthode des ordonnées discrètes est donc contrainte par la solution semi-analytique. La solution de la méthode des ordonnées discrètes n'est pas nécessairement une solution « pure » indépendante.

Dans ce dernier cas, l'expression semi-analytique est utilisée comme étant la valeur initiale du flux neutronique angulaire à la première itération du code de calcul de la méthode des ordonnées discrètes. Puisque les méthodes en question sont essentiellement distinctes, à l'exception de l'expression semi-analytique de la

perturbation du flux, la probabilité d'une erreur systématique commune qui permet néanmoins d'obtenir presque un même résultat est assurément très faible pour les mêmes raisons présentées précédemment.

Nous estimons que cette probabilité serait le produit des fractions du nombre d'étapes communes dans les codes de calcul distincts des deux approches (n_A, n_B , avec $n_A = n_B = 120$) par rapport au nombre total d'étapes de chaque code de calcul (N_A, N_B)

ou encore $\frac{n_A n_B}{N_A N_B} = (120/330) * (120/1650) = 0,026$ (5.51) ou encore environ 3 %.

Ainsi, puisque les deux approches donnent des résultats sensiblement équivalents avec un écart moyen d'environ 2 % et que les probabilités que des erreurs systématiques distinctes ou communes soient de l'ordre de 2 % (1 % dans un cas et 3 % dans l'autre cas), nous pouvons conclure que la méthode des ordonnées discrètes et la méthode semi-analytique sont valides.

Nous pouvons donc conclure que ces modèles sont valides et mathématiquement représentatifs des résultats expérimentaux de perturbation du flux neutronique dans un site d'irradiation interne, à l'intérieur de l'intervalle d'incertitude fortuite expérimentale.

CHAPITRE 6

CONCLUSIONS

Notre principal objectif était de produire des modèles mathématiques représentatifs du flux neutronique scalaire d'un site d'irradiation neutronique interne du réacteur Slowpoke.

Nous avons établi un modèle semi-analytique de la perturbation du flux basé sur la méthode des harmoniques sphériques et un modèle numérique de la méthode des ordonnées discrètes S_8 . Ces modèles mathématiques précis représentent très bien des résultats expérimentaux obtenus dans diverses conditions avec des écarts moyens et des écarts-types inférieurs ou égaux aux erreurs expérimentales fortuites d'environ 2 %. Nous avons donc réalisé avec succès ces objectifs importants.

La solution semi-analytique d'une version de la forme différentielle de l'équation de transport neutronique de Boltzmann (Davison, 1957), constitue un modèle mathématique très satisfaisant pour la perturbation du flux d'un site d'irradiation interne. En comparaison avec les résultats expérimentaux, l'écart moyen est de 0,02 % et l'écart type est de 1,6 % avec un coefficient de régression de -0.94 .

Cette solution est obtenue, par la méthode des harmoniques sphériques en négligeant les réactions de diffusion par rapport aux réactions de capture neutronique radiative. Les coefficients des fonctions propres de la solution semi-analytique ont été obtenus par régressions non linéaires appliquées à sept (7) éléments divers, pour trois (3) volumes distincts d'échantillon, en employant la méthode des moindres carrés.

Malgré d'importantes différences des propriétés physiques des sept (7) éléments simulés, leurs impacts sur le flux neutronique scalaire et la perturbation du flux d'un site

interne du réacteur Slowpoke sont très bien mathématiquement représentés par ce modèle semi-analytique, avec très peu d'écarts entre eux.

Nous avons également développé un modèle de transport neutronique numérique 2-D basé sur la méthode des ordonnées discrètes (ρ, z, E) , de schème S_8 . Ses résultats étant rapprochés (écart moyen d'environ 2%) de ceux du modèle semi-analytique et des mesures expérimentales en font un modèle d'une précision satisfaisante.

Cet objectif important de notre recherche était de représenter également la perturbation du flux dans les échantillons cylindriques d'un site d'irradiation interne comportant au moins l'un de sept (7) éléments variés choisis, pour des concentrations variables et pour trois volumes d'échantillons fixes.

Afin de réaliser cet objectif, nous avons aussi décidé de prendre en compte la distribution spatiale des neutrons, la dépendance en énergie des sections efficaces microscopiques d'absorption neutronique de forme $\frac{1}{\sqrt{E}}$, de même que le spectre d'énergie maxwellien des neutrons thermiques dans les sites internes.

Afin de valider adéquatement ces modèles mathématiques, il nous fallait comparer leurs résultats avec ces mesures expérimentales. Il était donc nécessaire d'analyser ces résultats expérimentaux, afin d'en obtenir une corrélation globale précise par rapport aux variables, volumes des échantillons et sections efficaces macroscopiques d'absorption neutronique, de quelques éléments ayant des propriétés physiques variées.

Il était aussi utile d'estimer l'incertitude relative fortuite des résultats de ces expériences, afin de pouvoir s'assurer que les erreurs fortuites des méthodes mathématiques n'y soient pas supérieures.

Pour ce faire, nous avons déterminé en deux étapes une corrélation mathématique globale précise des mesures expérimentales de la perturbation du flux d'un site interne du réacteur Slowpoke, portant sur une plage de volumes d'échantillons de 0 à 1.5 ml, de sept (7) éléments de masses atomiques variées.

Nous avons estimé que l'erreur relative fortuite des résultats expérimentaux est d'environ 1,4 %, comparable à des valeurs citées par plusieurs auteurs (Gonçalves et *al*, 2001, De Soete et *al*, 1972, St-Pierre et Kennedy, 2004, Eastwood et *al*, 1962).

De façon à introduire les sources de neutrons dans un site interne, nous avons imposé des conditions frontières aux surfaces externes des échantillons qui correspondaient en grandeur au flux neutronique nominale et selon une distribution en énergie de Maxwell.

En accord avec les travaux de Gonçalves et *al* (Gonçalves et *al*, 2001, 2002, 2003, Salgado et *al*, 2004) et ceux de Kennedy et *al* (Kennedy et Marcotte, 1984), nos résultats des deux (2) modèles mathématiques de transport neutronique confirment que la perturbation du flux neutronique en fonction de la section efficace macroscopique de capture neutronique radiative pour chacun des volumes d'échantillon étudiés est représentée par une courbe universelle pour tous les éléments étudiés.

Une autre caractéristique importante de ce travail est d'avoir utilisé un logiciel de calcul symbolique (Maple-9.5) afin de réaliser tous les calculs, et tout particulièrement ceux requis par le modèle semi-analytique et par le modèle numérique de la méthode des ordonnées discrètes.

Nous croyons qu'il serait intéressant d'imposer les conditions frontières à une distance extrapolée des surfaces des échantillons cylindriques, obtenue par une correction de transport. Cette amélioration permettrait de distinguer des résultats plus vraisemblables de la densité de probabilité spatiale du flux neutronique scalaire, de l'autoprotection dans les échantillons, de la dépression du flux entre les limites externes des échantillons et les distances extrapolées et de la perturbation du flux du centre de l'échantillon jusqu'aux distances d'extrapolation.

Finalement, nous avons atteint notre objectif ultime en établissant un processus de correction rapide et précis des concentrations ou encore des masses mesurées dans un site d'irradiation interne. Le processus de correction proposé permet de corriger rapidement (dizaines de ms) les concentrations mesurées avec une très grande précision ($1E-09$ g).

Nous croyons donc avoir atteint l'objectif ultime de notre recherche. L'impact important de cette méthode de correction est d'élargir de façon importante la plage de mesures précises et rapides des concentrations des éléments, incluant ceux qui ont des sections efficaces microscopiques de capture neutronique radiative très élevées. Il s'agit donc d'une avancée importante de la méthode d'analyse par irradiation neutronique.

L'atteinte de cet objectif ultime nous permet de recommander l'introduction de notre processus de correction des concentrations (masses) dans le code EPAA pour corriger l'erreur causée par la perturbation du flux sur les concentrations (masses) mesurées. Celle-ci doit faire appel à la deuxième (2^e) corrélation globale (obtenue de la méthode des moindres carrés) de $P(\Sigma_a, V)$.

Nous proposons également d'introduire dans le calcul de l'activité du code EPAA la dépendance de forme $\frac{1}{\sqrt{E}}$ en énergie des sections efficaces microscopiques d'absorption des neutrons thermiques des éléments déjà présents dans sa bibliothèque.

Nous suggérons également de produire des modèles équivalents de transport neutronique d'un site d'irradiation externe du réacteur Slowpoke, de même qu'un processus de correction équivalent des concentrations (masses) mesurées. Nous croyons qu'une démarche similaire à celle présentée dans ce mémoire permettrait également d'étendre de façon importante la plage des mesures précises et rapides des concentrations des éléments, incluant ceux qui ont des sections efficaces microscopiques de capture neutronique radiative très élevées.

Il s'agirait bien sûr d'une autre avancée importante pour la méthode d'analyse par irradiation neutronique, à l'aide des réacteurs Slowpoke.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] ABRAMOWITZ Milton and STEGUN Irene A., 1972, *Handbook of Mathematical Functions*, New York, Dover Publications Inc, 1046p.
- [2] BAILLARGEON, G., RAINVILLE, J., 1975, *Statistique appliquée*, Tome 2, Les éditions SMG, Trois-rivières.
- [3] BELL, G. I., GLASSTONE, S., 1970, *Nuclear Reactor Theory*, Van Nostrand Reinhold, New York, 619p.
- [4] BLANC Daniel, 1999, *Précis de physique Nucléaire*, 2^e édition, Dunod, 213p.
- [5] BLATT, J. M., WEISSKOPF, V. F., 1952, *Theoretical Nuclear Physics*, New York, John Wiley and Sons. 864p.
- [6] BOWMAN Frank, 1958, *Introduction to Bessel Functions*, New York, Dover Publications Inc, 133p.
- [7] BUSSAC J., REUSS, P., 1985, *Traité de neutronique*, Herman, Paris.
- [8] CARTER, L., L., 1982, *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 43, 710
- [9] CASE, K.M., DE HOFFMAN, F., PLACZEK, G., 1953, *Introduction to the Theory of the Neutron Diffusion*, Vol I, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, 174p.
- [10] CHANDRASEKHAR, S., 1950, *Radiative Transfer*, New York, Dover Publications Inc, 393p.
- [11] CHAPMAN, S., COWLING, T., 1964, *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*, Cambridge, Cambridge University Press, 430p.
- [12] CHAR, B.W., GEDDES, K.O., GENTLEMAN, W.M., GONNET, G.H., 1983, *The Design of Maple: A Compact, Portable, and Powerful Computer Algebra System*. In van Hulzen, J.A., editor, *Computer Algebra, Proceedings of EURO-CAL '83*, Lecture Notes in Computer Science 162, pages 101-115, Springer Verlag.
- [13] CHAR, B.W., 2003, *Maple 9 Learning Guide*, Waterloo, Maplesoft of Waterloo Maple Inc. 324p.
- [14] COHEN, Bernard L., 1971, *Concepts of Nuclear Physics*, McGraw-Hill. 435p.

- [15] CORLESS, William, R., 1963, *Neutron activation analysis*, U.S. Atomic Energy Commission.
- [16] DAVISON, B., 1957, *Neutron Transport Theory*, Oxford, Clarendon Press. 450p.
- [17] De SOETE, D., GIJBELS, R., HOSTE, J., 1972, *Neutron Activation Analysis*, John Wiley and Sons. 836p.
- [18] EASTWOOD, T. A., WERNER, R. D., 1962, *Resonance and Thermal Neutrons self-shielding in cobalt foils and wires*, Nuclear Science and Engineering. 13, 385-390.
- [19] EDWARDS, A.L., 1979, *Multiple Regression and the Analysis of Variance and Covariance*, W. H. Freeman and Company. 212p.
- [20] FRÖHNER, F.H., 2000, *Evaluation and Analysis of Nuclear Resonance Data*, JEFF Report no 18, Nuclear Energy Agency, OECD, 161p.
- [21] GLASSTONE, S., SESONSKE, A., 1994, *Nuclear Reactor Engineering, Reactor Design Basis*, Vol 1, CBS Publishers & Distributors, New Delhi, 486p.
- [22] GONÇALVES, I. F., MARTINHO, E., SALGADO, J., 2001, *Monte Carlo Calculation of Epithermal Neutron Resonance Self-shielding Factors in Wires of different Materials*, Applied Radiation Isotopes 55/4, 447-451.
- [23] GONÇALVES, I. F., MARTINHO, E., SALGADO, J., 2002, *Monte Carlo Calculation of Epithermal Neutron Resonance Self-shielding Factors in Foils of different Materials*, Applied Radiation Isotopes. 56, 945-951
- [24] GONÇALVES, I. F., MARTINHO, E., SALGADO, J., 2003, *Universal Curve of Epithermal Neutron Resonance Self-shielding Factors in Foils, Wires and Spheres*, Applied Radiation Isotopes. 58 (2003) 371-375
- [25] GREENSPAN, H., KELBER, C.N., OKRENT, D., 1968, *Computing Methods in Reactor Physics*, Gordon and Breach Science Publishers. 589p.
- [26] HAGEMAN, L. A., YOUNG, D. M., 2004, *Applied Iterative Methods*, (Reprint of Academic Press Inc, 1981, San Diego), Dover Publications Inc, Mineola, 386p
- [27] HARRIS, S., 2004, *An Introduction to the Theory of the Boltzmann Equation*, New York, Dover Publication, Inc. 220p.

- [28] HÉBERT, A., 2006, *Applied Reactor Physics*, 2005, IGE-281, Institut de Génie Nucléaire, École Polytechnique de Montréal
- [29] HÉBERT, A., 2005, *Applied Reactor Physics*, 2005, IGE-281, Institut de Génie Nucléaire, École Polytechnique de Montréal
- [30] HECK, A., 2003, *Introduction to Maple*, Springer, 3rd edition. 828p.
- [31] HENRY, A., 1975, *Nuclear Reactor Analysis*, Cambridge, Massachusetts, MIT Press. 547p.
- [32] JARZEMBA, M.S., WELDY, J., ENGLISH, P., PRIKRYL, J., PICKET, D., 1999, *Experimental Determination of Detection Limits for Performing Neutron Activation Analysis for Gold in the Field*, Nuclear Science and Engineering: 133, 335-341.
- [33] JELLEY, N.A., 1990, *Fundamentals of Nuclear Physics*, Cambridge University Press. 278p.
- [34] KENNEDY, G., 1982, *Le réacteur Slowpoke*, Institut génie nucléaire, École Polytechnique, Université de Montréal, document IGN-464.
- [35] KENNEDY, G., MARCOTTE, J., 1984, *Correction of Thermal Neutron Self-shielding in Activation Analysis with a Slowpoke Reactor*, Use and development of low and medium flux Research Reactors, Proceedings of an International Symposium, Cambridge, Massachusetts, U.S.A. October 16-19, 1983, München, Editors: Otto, K., Clark, H.L.jr., Von Der Hardt, P., Supplement to Vol. 44 (1984) of Atomkern Energie, Kerntechnik, p.670-675.
- [36] KENNEDY, G., MARLEAU, G., 1997, *Refuelling the Slowpoke-2 Reactor at École Polytechnique: Procedures and Proposed Experiments*, Conférence annuelle ANC/SNC 1997, Toronto, Ontario, Canada.
- [37] KENNEDY, J., M., PEARCE, R., M., 1962, *Multigroup Diffusion Calculation of Thermal Neutron Spectra in CANDU using a free Gas Model*, EACL.
- [38] KIRKWOOD, J.G., ROSS, J., 1958, *The Statistical Mechanical Basis of the Boltzmann Equation*, in Prigogine (ed.), International Symposium on Transport Processes in Statistical Mechanics, New York, Interscience Publishers.
- [39] KNOLL, G., F., 2000, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd edition, John Wiley and Sons, 802p.

- [40] KORN, G.A., KORN, T.M., 2000, *Mathematical Handbook for Scientists and Engineers*, (Reprint of McGraw-Hill Inc, 1968, New York), Dover Publications Inc. 1130p.
- [41] KUMPF, H, 1986, *Self-shielding Correction for the Resonance Activation Detectors Na, Mn and Co*. Nuclear Instrumentation Methods physics. Res. A251, 193-195.
- [42] LAMARSH, J., R., 1972, *Nuclear Reactor Theory*, Addison Wesley, 585p.
- [43] L'ANNUNZIATA, M.F., Ed, 1998, *Handbook of Radioactivity Analysis*, San Diego, Academic Press, 771p.
- [44] LAPIDUS, L., PINDER, G., F., 1982, *Numerical Solution of Partial Differential Equations in Science and Engineering*, New York, John Wiley & Sons. 677p.
- [45] LEWIS, E. E., MILLER W.F. jr., 1993, *Computational Methods of Neutron Transport*, La Grange Park , American Nuclear Society. 401p.
- [46] MARLEAU, G., 1996, *Dragon Calculations for the Commissioning of the LEU Fueled Slowpoke-2 Reactor at École Polytechnique*, IGE-222 rev 0.
- [47] MARLEAU, G., NOCEIR, S., ROY, R., ROZON, D., 1997, *Dragon Modelling of the Slowpoke-2 Reactor at École Polytechnique*, CNS Annual Conference.
- [48] Mc GARRY, E. D., 1964, *Measurements of the Resonance Neutron Self-shielding in Gold Wires*, Transaction American Nuclear Society. 7, 86.
- [49] MO. S.C. OTT, K. O., 1987, *Resonance Self-shielding Corrections for Detector Foils in Fast Neutron Spectra*. Nuclear Science Engineering, 95, 214-224.
- [50] MONAGAN, M.B., *et al.* 2002, *Maple 8 Introductory Programming Guide*, Toronto , Waterloo Maple Inc, 379p.
- [51] MONAGAN, M.B., *et al.* 2002, *Maple 8 Advanced Programming Guide*, Toronto , Waterloo Maple Inc, 382p.
- [52] MURRAY, R. L., 2005, *Geometric Buckling of Elliptical Cylinder*, Nuclear Science and Engineering, 150, 245-256

- [53] NIKIFOROV, A., OUVAROV, V., 1983, *Fonctions spéciales de la physique mathématique*, Moscou, Éditions MIR.
- [54] PARRINGTON, J.R., KNOX, H.D., BRENNEMAN, S.L., BAUM, E.M., FEINER, F., 1996, *Nuclides and Isotopes*, 15th ed. General Electric Co and KAPL Inc (Lockheed Martin Company), 64p.
- [55] PAVELLE, R., ROTHSTEIN, M., FITCH, J., 1981, *Computer Algebra*, Scientific American, December, 1981 ; 136-152.
- [56] PERDIJON, J., 1967, *L'analyse par activation*, Masson et Cie. 156p.
- [57] PRESS, W. H., TEUKOLSKY, S. A., VETTERLING, W. T., FLANNERY, B. P., 2002, *Numerical Recipes, The Art of Scientific Computing*, 1992, Cambridge University Press, 961p.
- [58] REIF, F., 1965, *Fundamentals of Statistical and Thermal Physics*, New York, Mc Graw-Hill Book Company. 651p.
- [59] REUSS, P., 2003, *Précis de neutronique*, EDP Sciences. 533p.
- [60] ROSSITO, F., TERRANI, M., TERRANI, S., 1972, *Choice of Neutron Filters in Activation Analysis*, Nuclear Instrumentation and Methods.
- [61] SALGADO, J., GONÇALVES, I. F., MARTINHO, E., 2004, *Development of a Unique Curve for Thermal Neutron Self-Shielding Factor in Spherical Scattering Materials*, Nuclear Science Engineering, 148, 426-428.
- [62] SELANDER, W., N., 1960, *AECL No 1077* (June)
- [63] SPIEGEL, M.R., 1968, *Mathematical Handbook of Formulas and Tables*, McGraw-Hill.
- [64] SQUIRES, G.L., 1996, *Introduction to the Theory of Thermal Neutrons Scattering*, New York, (Reprint of Cambridge University Press, ed., 1978), Dover Publications Inc, 260p.
- [65] St-PIERRE, J. KENNEDY, G. , 2004, *Standardizing NAA of Biological Samples of varying Size, Shape and Composition*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Vol. 259 No.3 (March 2004), 431-434
- [66] TERLETSKII, Y., P., 1975, *Physique statistique*, Montréal, Les Presses de l'Université du Québec. 351p.

- [67] TREMBLAY, L.-M., CHASSÉ, Y., 1970, *Introduction à la méthode expérimentale*, Montréal, CEC. 116p.
- [68] TULI, J. K., 2000, *Nuclear Wallet Cards*, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, USA.
- [69] VUKADIN, Z., 1994, *Solution Of Depletion Chain Equations Using Nonsingular Bateman Coefficients*, Nuclear Science and Engineering: 117, 121-125.
- [70] VUKADIN, Z., 1991, *Recurrence Formulas for Evaluating Expansion Series of Depletion Functions*, Kerntechnik, 56, No 6.
- [71] WARSA, J.S., 2002, *Analytical S_n Solutions in Heterogeneous Slabs Using Symbolic Algebra Computer Programs*, Ann. Nucl. Energy, **29**, 7, 851 (2002)
- [72] WARSA, J.S., 2004, *Krylov Iterative methods and the Degraded Effectiveness of Diffusion Synthetic Acceleration for Multidimensional S_n Calculations in Problems with Material Discontinuities*, Nuclear Science and Engineering, 147, 218-242.
- [73] WESTCOTT, C. W., 1960, *Effective cross section values for well-moderated thermal reactor spectra*, Report AECL-1101, Atomic Energy of Canada, Limited, Chalk River, Ontario.
- [74] YAMAMOTO, H., YAMAMOTO, K., 1965, Self-shielding factors for resonance foils. *J. Nucl. Sci. Technol.* 2 (10), 421.

CÉDÉROM

- [75] Maple-8 Software-CD, 2003, Waterloo Maple Inc., Waterloo.
- [76] Maple-9.5 Software-CD, 2004, Waterloo Maple Inc., Waterloo.
- [77] PRESS, W. H., TEUKOLSKY, S. A., VETTERLING, W. T., FLANNERY, B. P., 2002, *Numerical Recipes, The Art of Scientific Computing*, CODE CDROM v 2.10, Cambridge.
- [78] Nuclear Energy Agency, 2000, *Complete collection of JEFF Reports*, Numbers 1-18.

[79] *ENDF/B-VI DATA LIBRARIES*, 2001, Nuclear Data Section, IAEA.

[80] *ENDF/B-6 ver-8, JENDL ver-3.3, JEFF ver-3.0*, 2003, Nuclear Data Section, IAEA.

INTERNET

[81] GLASCOCK, M.D., 2005, *An Overview of Neutron Activation Analysis, University of Missouri Research Reactor*; http://www.missouri.edu/tildeglascock/naa_over.htm

[82] Idaho National Laboratory, 2006,
<http://www.inl.gov/gammaray/catalogs/catalogs.shtml>