

Caractérisation des fluides bi-phasiques cryogéniques par absorption différentielle de rayonnements gamma

Mémoire présenté par Alain CARAPELLE
dans le cadre du DES en Sciences Nucléaires

Remerciements

Je tiens à remercier M. P.-D.Dumont d'avoir accepté d'être le promoteur de ce travail. De même, mes remerciements vont également aux membres du jury : M. J.Cugnon, M. P.Rochus, M. J.-P. Collette et M. M.Henrist d'avoir accepté de consacrer une partie de leur temps à ce travail.

Merci aussi à l'IPNAS pour nous avoir permis de réaliser des tests préliminaires et loué une partie du matériel nécessaire et pour leur aide en général.

Un grand merci aussi à tout le personnel du Centre Spatial de Liège (CSL) qui a collaboré aux projets *FESTIP Work Package 4.3 Slush Hydrogen Test Bench and Densimeter* et *Densimètre Slush*, tous deux réalisés dans le département Technologies Avancées de M. J.-P. Collette.

Table des matières

1 Introduction.....	5
1.1 But de ce travail.....	5
1.2 Etat des choses au CSL.....	5
2 Etude théorique.....	6
2.1 Principe de la mesure.....	6
2.2 Erreur de mesure.....	7
2.2.1 Principe général.....	7
2.2.2 Influence des paramètres I_0 et μ_M	9
2.2.3 Variation de l'erreur de mesure en fonction de la densité mesurée.....	13
2.3 Détermination des μ_M	14
2.3.1 Principe général.....	14
2.3.2 Problème des énergies de liaison des électrons.....	15
2.3.3 Calculs pratiques des coefficients μ_M	16
3 Dispositif expérimental du projet <i>FESTIP</i>	18
3.1 Choix de la source.....	18
3.2 Choix du détecteur.....	19
3.3 Description générale du dispositif de détection des photons γ y compris l'électronique associée.....	21
3.4 Radioprotection.....	24
3.5 Budget radiométrique.....	25
3.6 Dispositifs cryogéniques.....	29
3.6.1 Production de Slush azote.....	31
3.6.2 Production de Slush néon.....	33
3.6.3 Caractéristiques du dispositif de production de Slush.....	34
3.7 Résultats expérimentaux.....	37
3.7.1 Tests préalables.....	37
3.7.2 Mesure de densité d'un fluide non-cryogénique.....	39
3.7.3 Mesure de densité d'un Slush azote.....	39
3.7.4 Mesure de densité d'un Slush néon.....	40
3.7.5 Influence des parois additionnelles.....	41
3.8 Conclusions du projet <i>FESTIP</i>	42
4 Dispositif expérimental du projet <i>Densimètre Slush</i>	44
4.1 Exigences du projet.....	44
4.2 Principe général du système.....	44
4.3 Budget radiométrique.....	46

4.4 Mise en œuvre pratique.....	49
4.4.1 Paramètres d'utilisation du SCA.....	49
4.4.2 Compteur externe.....	51
4.4.3 Mesure du paramètre x.....	53
4.4.4 Logiciel du micro-contrôleur.....	54
4.5 Radioprotection: nouvelle législation.....	56
4.6 Dispositifs cryogéniques.....	57
4.7 Mesures expérimentales.....	57
4.7.1 Rapport signal/bruit.....	57
4.7.2 Mesure du paramètre x.....	58
4.7.3 Mesure de Slush fondant.....	59
4.8 Conclusions du projet <i>Densimètre Slush</i>	61
5 Futurs projets.....	61
6 Conclusions générales.....	61
Annexe 1 : code du programme du micro-contrôleur.....	63
Bibliographie.....	69

1 Introduction

1.1 But de ce travail

Le but général de ce travail est de détailler une méthode de mesure de la densité des fluides cryogéniques. Ce type de mesure est basé sur l'absorption de rayonnement gamma (γ) par le fluide à mesurer.

L'Agence Spatiale Européenne (ESA) est partie prenante pour le développement de ce type d'instrument. En effet, des études préalables [1] ont montré que le remplacement, dans les réservoirs des lanceurs spatiaux, de l'hydrogène liquide par de l'hydrogène pâteux (Slush Hydrogen ou SLH2, c'est à dire un mélange bi-phasique solide-liquide) permet de diminuer la masse du lanceur de 13 à 26 % et donc de satelliser des charges utiles plus importantes.

L'intérêt d'utiliser SLH2 plutôt que l'hydrogène liquide (LH2) comme carburant et refroidisseur est dû aux différences de caractéristiques physiques entre les deux : densité, capacité calorifique, taux d'évaporation et sécurité de manipulation.

Terminons en signalant que des études similaires ont été réalisées aux Etats-Unis au début des années nonante. Hélas, pour de raisons de confidentialité, les résultats ne sont pas facilement disponibles.

1.2 Etat des choses au CSL

Ce travail se base en partie sur les résultats expérimentaux obtenus au CSL dans le cadre des projets *FESTIP Work Package 4.3 Slush Hydrogen Test Bench and Densimeter* et *Densimètre Slush*. Le premier de ces projets avait pour but de vérifier la validité de cette méthode sur un banc de test expérimental. Le deuxième projet consistait à réaliser un densimètre complet qui sera utilisé pour mesurer la densité des fluides produits par l'installation pilote de Magna Steyr en Autriche.

2 Etude théorique

2.1 Principe de la mesure

Le principe de la mesure est simple: on mesure le flux de rayonnement gamma qui traverse le fluide dont on veut connaître la densité.

En effet, l'atténuation d'un flux de rayonnement gamma passant à travers un obstacle peut être calculé grâce à la formule suivante (inspirée de la formule d'absorption de la lumière établie par Lambert au XVIII^{ème} siècle) :

$$I=I_0 \cdot e^{-\mu \cdot x} \quad (1)$$

Avec I_0 l'intensité du flux incident, I l'intensité du flux de sortie, x l'épaisseur de matériau traversée et μ le coefficient d'absorption qui dépend du type de matériel traversé et du rayonnement utilisé. μ a la dimension de l'inverse d'une longueur.

La figure suivante illustre le principe de cette absorption :

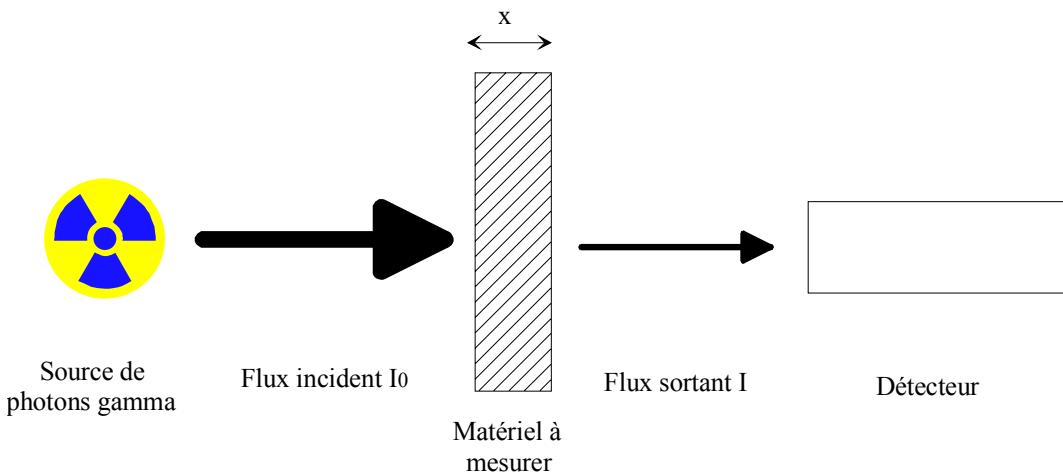


Figure 1. Absorption d'un flux γ

On peut réécrire cette formule en faisant intervenir la densité du matériel, on a alors :

$$I=I_0 \cdot e^{-\mu_M \rho \cdot x} \quad (2)$$

Avec μ_M le coefficient d'absorption massique qui a la dimension du carré d'une longueur sur une masse. Habituellement, les unités utilisées pour μ_M sont les cm^2/g . ρ est la densité. Si on utilise μ_M en cm^2/g , on doit mesurer la densité en g/cm^3 et la longueur x en cm.

De l'équation précédente, on tire facilement la densité :

$$\rho = \frac{-1}{\mu_M \cdot x} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (3)$$

C'est cette dernière formule qui sera utilisée pour mesurer les densités des fluides cryogéniques. La distance x sera mesurée (ou déduite d'une mesure de densité connue dans le cas d'une géométrie complexe, voir chapitre 3.7.1), les flux I et I_0 seront mesurés à l'aide de l'équipement de mesure adéquat (voir chapitre 3). En réalité, on ne mesure pas directement un flux. On se contente de compter les photons γ pendant un temps suffisant (afin de minimiser l'erreur statistique, voir chapitre 2.2). Le coefficient μ_M doit donc être connu avant la mesure. Sa détermination théorique sera examinée dans le chapitre 2.3.

2.2 Erreur de mesure

2.2.1 Principe général

Afin de prévoir l'activité nécessaire pour la source de photons γ (et donc son flux de particules émises) ainsi que le temps de mesure, on doit connaître l'erreur acceptable pour une mesure donnée. Théoriquement, cette erreur provient de trois sources :

- 1) L'erreur sur la mesure de la longueur x
- 2) L'erreur sur la valeur de μ_M
- 3) Les erreurs sur les mesures de I_0 et I

La première de ces trois sources sera estimée une fois pour toute. La deuxième de ces trois sources n'est pas facilement quantifiable. En effet,

les valeurs de μ_M sont établies théoriquement (voir chapitre 2.3), on supposera que cette source d'erreur est négligeable par rapport aux autres. La troisième source d'erreur va dépendre de la mesure. En effet, les mesures de I_0 et I sont des comptages (comptages d'un certain nombre de photons γ). Tout comptage est entaché d'une erreur statistique, les comptages font partie de la statistique de Poisson. Si on compte un grand nombre d'évènements, la loi de Poisson est proche de la loi normale avec un écart type donné par la racine carrée du nombre d'événements comptés. Si lors d'une expérience on compte n événements, la mesure et son erreur absolue sont données par :

$$n \pm \sqrt{n} \quad (4)$$

Donc dans le cas des comptages I et I_0 on a les mesures suivantes :

$$I \pm \sqrt{I} \quad (5)$$

$$I_0 \pm \sqrt{I_0} \quad (6)$$

Calculons l'erreur relative sur la densité calculée à partir de l'équation (3). L'équation (3) est composée de deux facteurs : $-1/(\mu_M \cdot x)$ et $\ln(I/I_0)$. L'erreur relative étant additive pour des facteurs, l'erreur relative sur la densité sera la somme des erreurs relatives des deux facteurs. Comme on néglige l'erreur sur μ_M , l'erreur relative du premier facteur sera donc donnée par l'erreur relative sur x (car l'erreur relative d'un quotient est la somme des erreurs relatives du numérateur et du dénominateur).

Calculons l'erreur relative du deuxième facteur $\ln(I/I_0)$. Les erreurs absolues sur I et I_0 sont données par les équations (5) et (6). Les erreurs relatives de I et I_0 sont donc respectivement \sqrt{I}/I et $\sqrt{I_0}/I_0$. L'erreur relative d'un quotient étant la somme des erreurs relatives, l'erreur relative sur le quotient I/I_0 sera donnée par $\sqrt{I}/I + \sqrt{I_0}/I_0$. On doit maintenant calculer l'erreur relative sur $\ln(I/I_0)$. On est en présence d'une fonction du type $\ln(a \pm \Delta)$ avec Δ l'erreur absolue. On peut réécrire cette équation sous la forme $\ln(a \pm k \cdot a)$ avec $a = I/I_0$ et $k = \sqrt{I}/I + \sqrt{I_0}/I_0$, k est l'erreur relative. Utilisons l'équation qui donne l'erreur

absolue d'une fonction $f(x)$ par développement en série de Taylor au premier ordre : $|f(x + E) - f(x)| \approx |E \cdot f'(x)|$ avec notre fonction $\ln(a \pm k.a)$. Dans notre cas $E = ka$. Donc l'erreur absolue de $\ln(a \pm k.a)$ est k c.-à-d. $\sqrt{\frac{1}{I}} + \sqrt{\frac{1}{I_0}}$.

L'erreur relative sur $\ln(I/I_0)$ est donc $\frac{\frac{1}{\sqrt{I}} + \frac{1}{\sqrt{I_0}}}{\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)}$. L'erreur relative sur la densité sera donc :

$$\frac{\frac{1}{\sqrt{I}} + \frac{1}{\sqrt{I_0}}}{\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)} + \text{erreur relative sur } x \quad (7)$$

Si on écrit les erreurs relatives en %, la mesure de ρ est donnée par :

$$\rho \pm \left[100 \cdot \left(\frac{\frac{1}{\sqrt{I}} + \frac{1}{\sqrt{I_0}}}{\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)} + \text{erreur_relative_sur_x} \right) \right] \text{ en \%} \quad (8)$$

2.2.2 Influence des paramètres I_0 et μ_M

Pour un cas donné, l'équation (2) peut s'écrire $I = k \cdot I_0$ (par ex. pour 3,7 cm d'azote liquide, on a $k = 0,806$, voir chapitre 3.5). L'erreur relative donnée par l'équation (7) sera donc de la forme :

$$\frac{\frac{1}{\sqrt{k \cdot I_0}} + \frac{1}{\sqrt{I_0}}}{\ln(k)} + \text{erreur relative sur } x$$

On peut donc l'écrire $\frac{k'}{\sqrt{I_0}} + \text{erreur relative sur } x$, avec k' donné par :

$$k' = \frac{1 + \sqrt{e^{-\mu_M \cdot \rho \cdot x}}}{-\mu_M \cdot \rho \cdot x \cdot \sqrt{e^{-\mu_M \cdot \rho \cdot x}}} \quad (9)$$

L'erreur statistique peut donc être réduite en jouant sur la valeur de I_0 et/ou de k' .

Influence de I_0

On peut réduire l'erreur statistique en augmentant la valeur de I_0 c'est-à-dire en augmentant le temps de mesure et/ou l'activité de la source (car I_0 est proportionnel au temps de mesure et à l'activité de la source). La figure suivante donne une idée de l'évolution de l'erreur en fonction du produit activité de la source X temps d'acquisition.

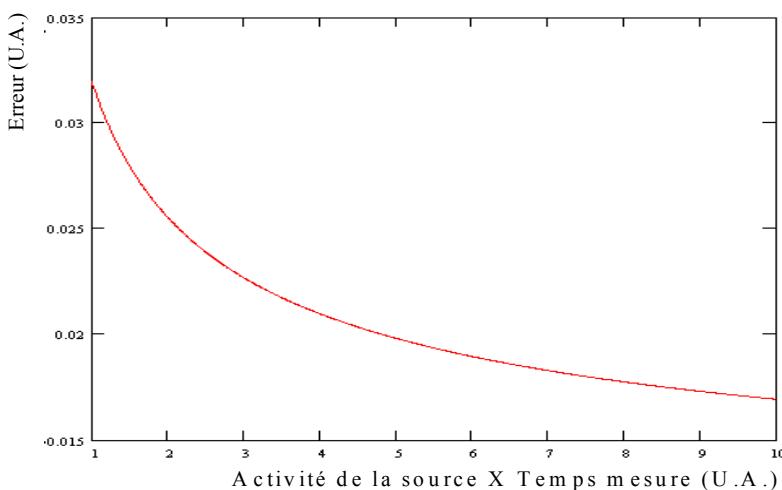


Figure 2. Evolution de l'erreur en fonction du produit activité de la source X temps de mesure

Influence de k'

On peut aussi réduire l'erreur statistique en réduisant k' . L'équation (9) permet de voir que les seuls paramètres variables dans la définition k' sont x , ρ et μ_M . La longueur x est fixée par les contraintes expérimentales. La densité ρ est la grandeur que l'on cherche à mesurer, on ne peut donc pas la faire varier. Le seul paramètre variable que l'on peut changer est μ_M . Il varie avec l'énergie des photons γ incidents (voir chapitre 2.3). Il est donc utile de connaître l'évolution de k' en fonction de μ_M . La figure suivante donne cette évolution dans le cas de l'azote liquide (en supprimant le signe - qui se compense avec celui du facteur $-1/(\mu_M \cdot x)$)

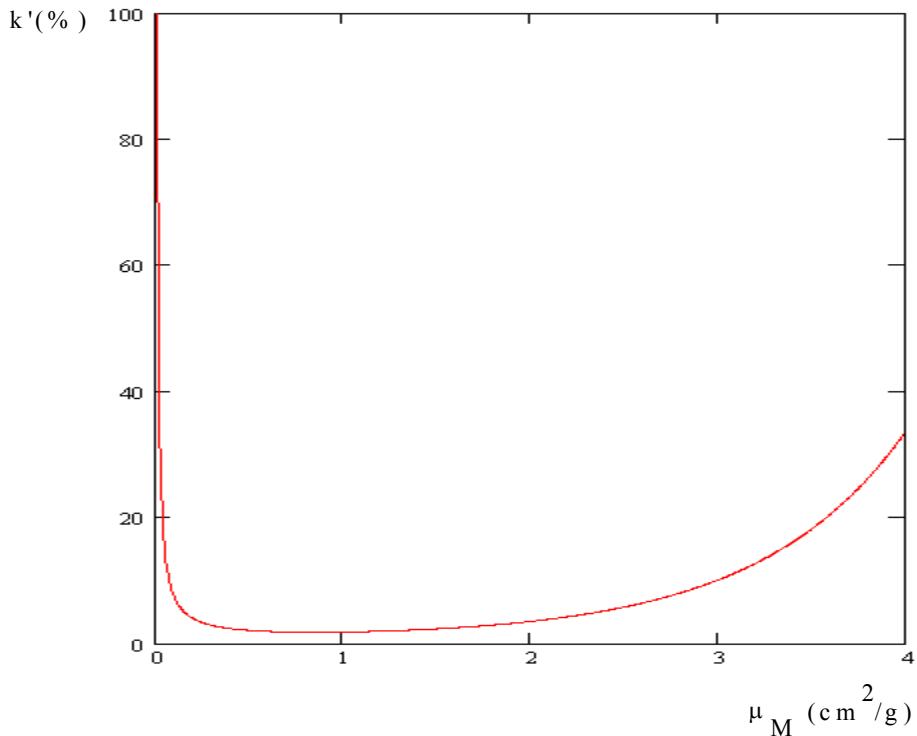


Figure 3. Evolution de l'erreur en fonction de μ_M

On voit que l'erreur est minimale pour les petites valeurs de μ_M . On doit néanmoins éviter les trop petites valeurs sinon l'erreur augmente brusquement. Typiquement, μ_M doit rester supérieur à $0,2 \text{ cm}^2/\text{g}$.

La figure suivante [4] montre l'évolution de μ_M en fonction de l'énergie des photons γ incidents pour l'azote et l'hydrogène.

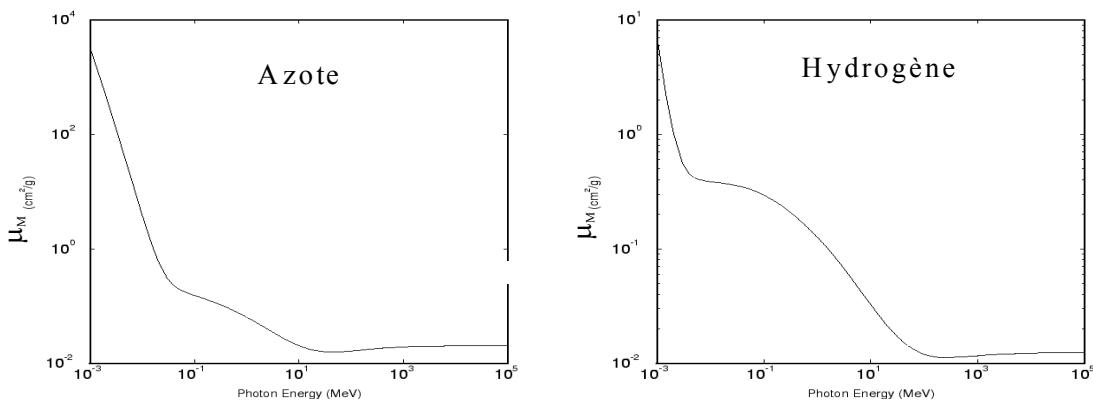


Figure 4. Evolution de μ_M en fonction de l'énergie des photons γ incidents pour l'azote et l'hydrogène

Dans les 2 cas, on voit que pour avoir une valeur minimale pour μ_M (mais en restant supérieure à $0,2 \text{ cm}^2/\text{g}$), on doit avoir des photons γ incidents dont l'énergie est de l'ordre de grandeur du MeV.

C'est donc dans cette gamme d'énergie que doit émettre la source γ . Les autres critères de choix de la source sont détaillés au chapitre 3.1.

Pour être rigoureux, ce raisonnement devrait être adapté pour chaque espèce à mesurer : azote, hydrogène, néon ... (la variation de μ_M en fonction de l'énergie des γ incidents ne présente pas un minimum au même endroit pour tous les atomes).

Les indications ainsi obtenues sur l'énergie souhaitable pour les photons γ incidents sont grossières. Elles donnent une idée de l'ordre de grandeur mais pas de valeur précise. De toute façon, une valeur précise ne serait pas d'une grande utilité car il n'est pas possible d'obtenir des photons γ de n'importe quelle énergie car on utilise un radio-isotope comme source de photons.

Le raisonnement grossier sur l'influence de k' sur l'erreur nous permet d'atteindre la précision de mesure requise. Nous verrons plus loin que de toute façon, d'autres facteurs réduisent la précision de mesure (phénomène de stratification, aspect neigeux : voir chapitre 3.6.3, stabilité mécanique du dispositif : voir chapitre 3.7.4 ...)

2.2.3 Variation de l'erreur de mesure en fonction de la densité mesurée.

L'équation (9) montre que la valeur de ρ influence l'erreur de mesure. En utilisant la forme $\frac{k'}{\sqrt{I_0}}$ (voir chapitre 2.2.2) pour la partie statistique de l'erreur relative et utilisant l'équation (9), on peut calculer l'évolution de l'erreur de mesure en fonction de la densité mesurée. La figure suivante montre cette évolution dans le cas de l'azote.

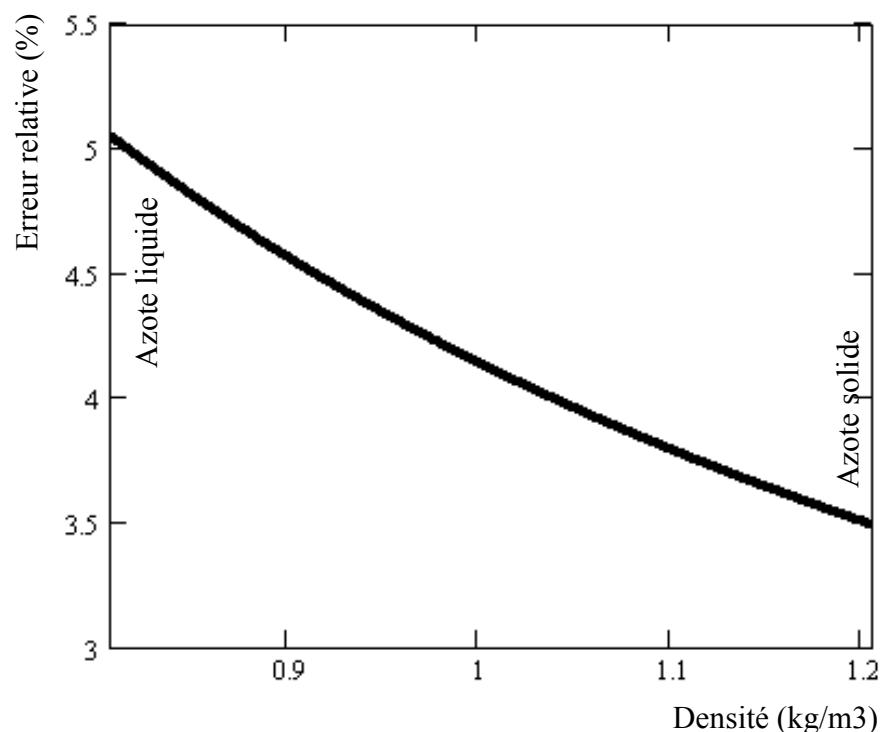


Figure 4bis. Evolution de l'erreur relative en fonction de la densité mesurée pour le cas de l'azote

2.3 Détermination des μ_M

2.3.1 Principe général

Dans le cas d'absorption des rayons γ dans la matière, trois processus principaux interviennent :

- l'effet photoélectrique
- l'effet Compton
- la création de paires électron-positron (e^-e^+)

Le coefficient d'absorption μ de l'équation (1) peut donc s'écrire comme la somme des coefficients d'absorption provenant de ces trois processus. On a donc :

$$\mu = \tau + \sigma + \kappa \quad (10)$$

Avec τ le coefficient d'absorption provenant de l'effet photoélectrique, σ le coefficient d'absorption provenant de l'effet Compton et κ le coefficient d'absorption provenant des créations de paires.

Si on introduit la densité ρ de l'élément traversé par les rayons γ , on peut donner les formules suivantes [2] pour l'évolution de ces coefficients τ, σ et κ :

$$\frac{\tau}{\rho} \approx \frac{Z^4}{(hv)^3} \quad (11)$$

$$\frac{\sigma}{\rho} \approx \frac{1}{hv} \quad (12)$$

$$\frac{\kappa}{\rho} \approx Z \cdot \ln(hv) \quad (13)$$

Avec hv l'énergie du photon γ incident et Z le numéro atomique de l'élément traversé.

L'évolution de μ comme la somme de τ, σ et κ en fonction de l'énergie du photon γ incident est illustrée à la figure suivante pour le cas du Plomb [2].

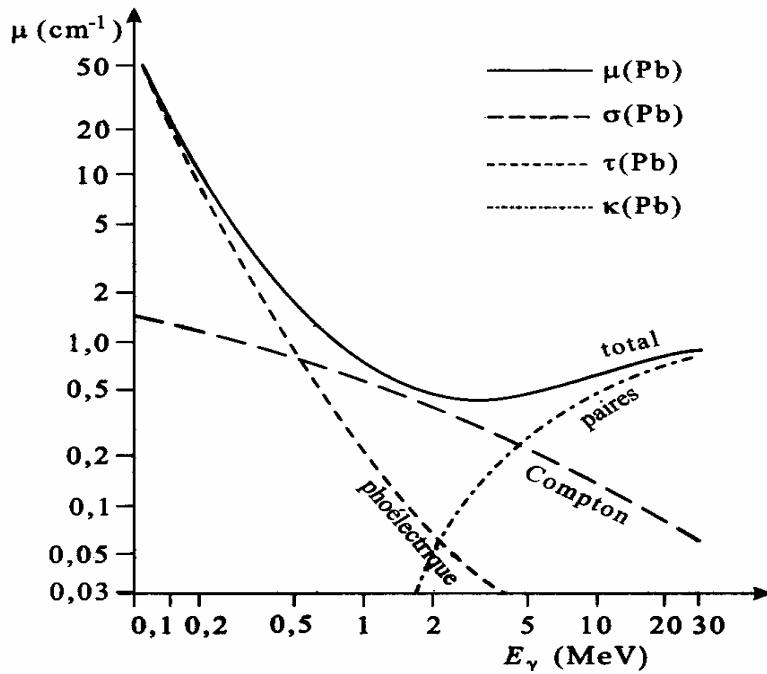


Figure 5. Evolution de μ en fonction de l'énergie du γ : principe général

2.3.2 Problème des énergies de liaison des électrons

Le principe général exposé au chapitre 2.3.1 ne tient pas compte de l'énergie de liaison des électrons dans le matériel traversé. En effet, lorsqu'un photon atteint le matériel avec une énergie égale à l'énergie de liaison d'un des électrons, il peut être absorbé et la variation du coefficient μ présente des brusques variations aux alentours des énergies de liaisons des différents électrons (couches K, L, ...). En pratique, la variation du coefficient μ en fonction de l'énergie ressemble à la figure 6 [3] (en réalité, la figure 6 donne l'évolution de la section efficace σ plutôt que μ , les deux ont néanmoins un comportement similaire).

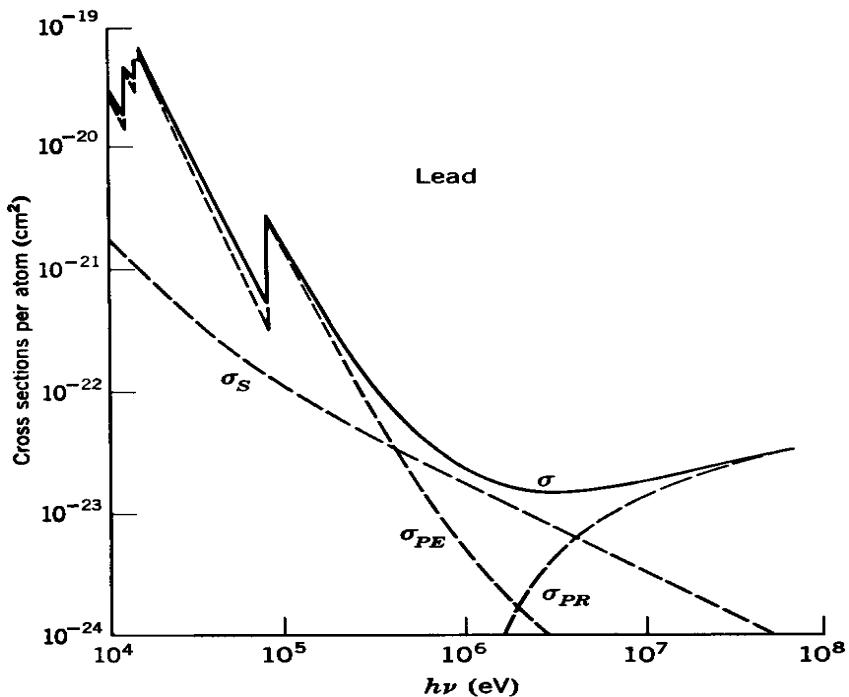


Figure 6. Evolution de μ en fonction de l'énergie du γ en tenant compte de l'énergie de liaison des électrons

On remarque que la section efficace de création de paires σ_{PR} est nulle en dessous de 1,022 MeV. C'est logique car l'énergie minimale de création d'une paire e^+e^- est de 2 fois la masse de l'électron c'est-à-dire $2 \times 0,511$ MeV = 1,022 MeV. La création de paires n'intervient donc pas si les photons γ utilisés ont une énergie inférieure à 1,022 MeV. C'est notamment le cas pour les photons γ de 662 keV émis par le ^{137}Cs .

2.3.3 Calculs pratiques des coefficients μ_M

En raison du problème des énergies de liaison des électrons et des variations brusques du coefficient μ aux alentours de ces énergies, il est plus raisonnable d'utiliser des valeurs du coefficient μ issues de mesures antérieures plutôt que calculées théoriquement. Les valeurs des coefficients disponibles ont été rassemblées par le *National Institut of Standard and Technology* (NIST) et sont disponibles sur Internet [4].

En pratique, nos mesures sont réalisées dans un set-up particulier (voir chapitre 3). Dans ce dernier, les photons γ doivent passer au travers de différents matériaux. De manière à calculer précisément les différents flux de photons γ (voir le budget radiométrique au chapitre 3.5), on doit

connaître les valeurs des coefficients μ_M pour différents atomes et molécules. Pour ce faire, on utilise le logiciel XCOM [5]. Ce logiciel se base sur les bases de données du NIST. Il permet de calculer les coefficients μ_M pour différents composés (à partir de leur formule chimique). Comme il utilise les bases de données NIST, ce programme fournit des μ_M en se basant sur les résultats expérimentaux antérieurs. Terminons en signalant que XCOM est disponible "on-line" (calcul directement sur Internet) ou "off-line" (programme à télécharger sur son ordinateur).

3 Dispositif expérimental du projet *FESTIP*

Comme expliqué dans l'introduction, ce travail se base sur les résultats expérimentaux de deux projets menés au CSL : *FESTIP Work Package 4.3 Slush Hydrogen Test Bench and Densimeter* et *Densimètre Slush*. Dans ce chapitre, nous allons détailler le dispositif expérimental utilisé pour le premier de ces deux projets.

3.1 Choix de la source

Le principe même de la mesure se base sur l'absorption de rayonnements γ , nous devons donc utiliser une source de rayonnements γ . L'utilisation d'un radio-isotope émetteur γ est évidemment la solution la plus simple. De plus comme seul le rayonnement γ nous intéresse, nous pouvons utiliser une source scellée qui ne présente pas de risques de dissémination du radio-isotope.

Plusieurs critères guident notre choix :

- Spectre d'émission de la source : si possible un seul pic (de manière à "concentrer" le maximum de l'activité de la source dans le pic utile) à une énergie "facilement" mesurable par les détecteurs classiques et à une énergie située dans la bonne gamme (pour minimiser μ_M et donc k' , voir chapitre 2.2).

- Demi-vie de l'isotope : la demi-vie doit, si possible, permettre de réaliser des mesures sans tenir compte de la décroissance naturelle de l'activité

- Disponibilité : la source devait être facilement disponible commercialement

Le tableau suivant reprend ces trois critères pour quelques sources.

Source	Energie des pics γ	Demi-vie (année)	Disponibilité
^{137}Cs	0.662 MeV	30.17	+
^{60}Co	1.173 MeV-1.332 MeV	5.272	+
^{22}Na	0.511 MeV-1.274 MeV	2.605	+

En accord avec ce tableau, la source choisie est le ^{137}Cs . La source utilisée est une source de 3 μCi scellée dans un cylindre de 60 mm de diamètre et 12 mm de haut.

La figure suivante montre un spectre γ typique du ^{137}Cs pris avec un détecteur NaI.

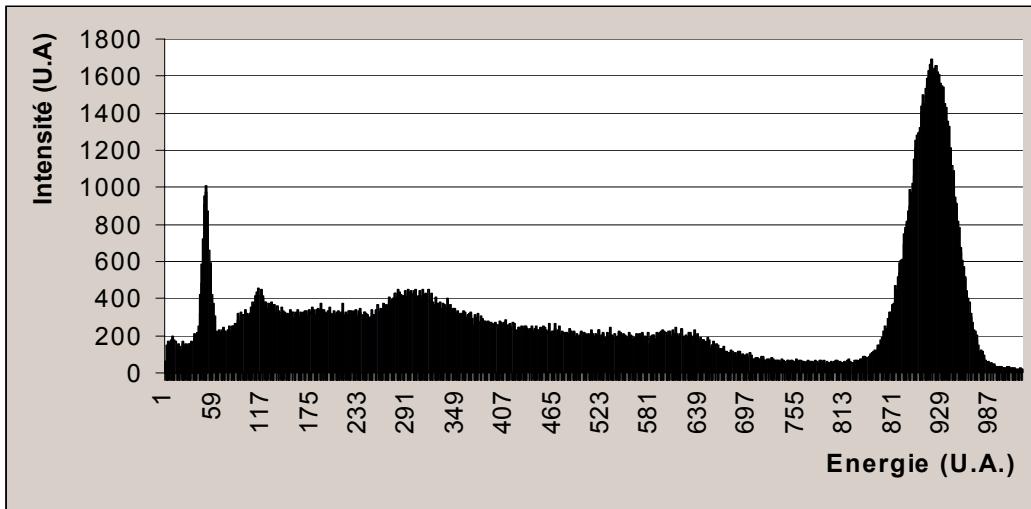


Figure 7. Spectre γ du ^{137}Cs

Le fait de n'avoir qu'un seul pic permet de faciliter la mesure. Cela permet de sélectionner une seule région d'intérêt (Region Of Interest ou ROI).

Ajoutons pour terminer que pour s'assurer que le faisceau γ traverse bien l'échantillon à mesurer nous avons réalisé un collimateur (40 mm de Pb avec une ouverture conique de 20° , voir chapitre 3.5). De plus un blindage supplémentaire a été ajouté autour de la source de manière à réduire le flux γ reçu par le personnel (principe ALARA en radioprotection).

3.2 Choix du détecteur

La détection des photons γ peut se faire en utilisant un des types de détecteurs suivant :

- Détecteur à gaz de type compteur Geiger
- Détecteur à cristal scintillant de type NaI.Tl
- Détecteur à semi-conducteurs ultra-pur de type Ge refroidi

Comme on souhaite s'assurer que l'on travaille dans la gamme d'énergie du pic du ^{137}Cs à 0,662 MeV, on doit pouvoir mesurer l'énergie du photon γ . Comme il n'est pas simple d'utiliser un compteur à gaz pour mesurer l'énergie d'un photon γ , ce type de détecteur ne sera pas utilisé.

On a donc le choix entre les détecteurs à cristal scintillant et les détecteurs à semi-conducteurs ultra-pur. L'avantage de ces derniers est leur meilleure résolution ($\approx 0,15\%$ pour un Ge contre $\approx 4,5\%$ pour un NaI[6]), mais par contre leur efficacité de détection est plus faible (par ex. un Ge ultra-pur ne détectera que $\approx 8\%$ que ce que détecterait un NaI de la même taille[6]). L'efficacité de détection est un facteur déterminant car plus elle est grande plus le taux de comptage sera élevé et donc plus l'incertitude sur la mesure sera faible (voir équation (7)).

De plus les détecteurs à semi-conducteurs ultra-pur doivent être refroidis à l'azote liquide.

Comme la résolution en énergie n'est pas un critère déterminant dans notre cas, le détecteur choisi est donc un NaI.Tl. Ces avantages principaux sont :

- Bonne efficacité de détection
- Résolution en énergie suffisante pour nos besoins
- Pas de système de refroidissement nécessaire
- Coût faible
- Bonne disponibilité

3.3 Description générale du dispositif de détection des photons γ y compris l'électronique associée

La figure suivante reprend le schéma général de l'expérience y compris l'électronique associée au détecteur NaI.

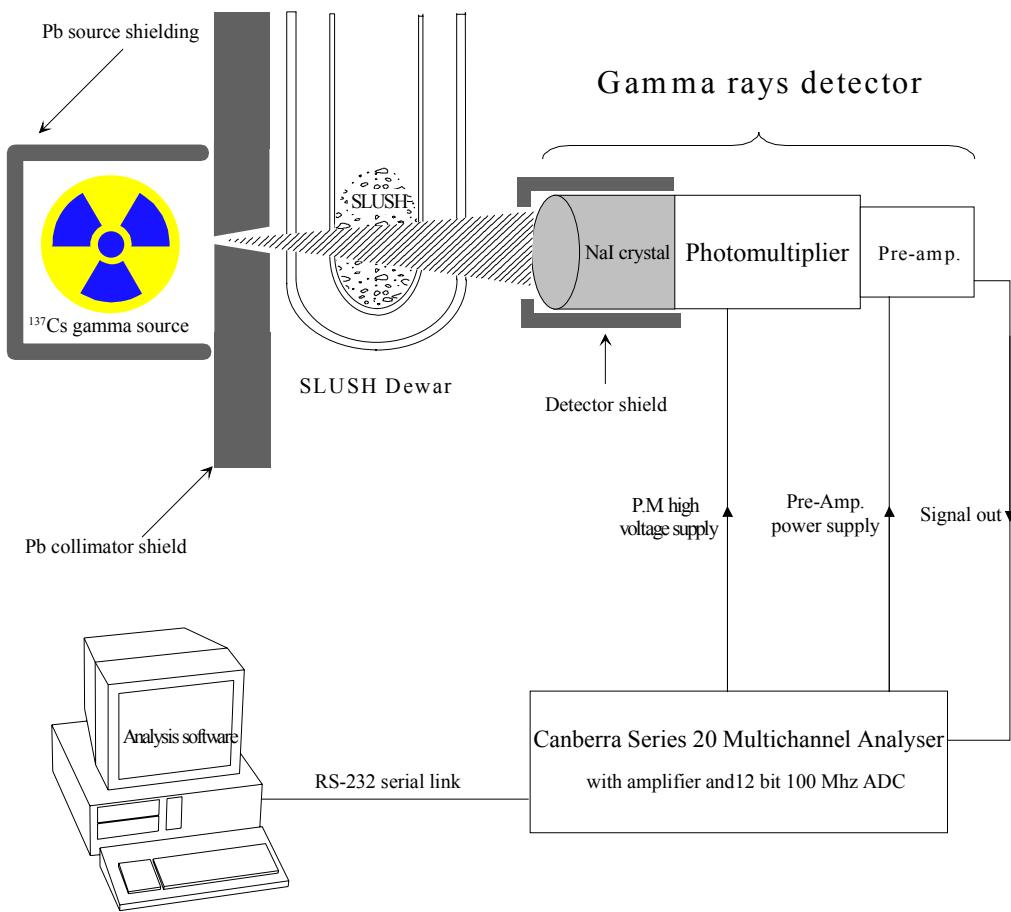


Figure 8. Dispositif expérimental

Les différents éléments sont :

Detector shield : blindage du détecteur

Nous avons ajouté un blindage autour de la partie sensible du détecteur (le cristal NaI). Ce blindage de 2 mm de Pb permet de supprimer une partie des photons qui subissent l'effet Compton (et donc changent de direction de propagation). Ces photons ne passent pas directement par le Slush à mesurer. La suppression de ces photons Comptons par le blindage ainsi que la suppression du bruit de fond (X à γ) permet d'éviter de compter des photons non utiles à la mesure (qui sont de toutes façons éliminés via la définition d'une ROI correcte sur l'analyseur multicanal) et donc de ne pas augmenter le temps mort du convertisseur ADC de l'analyseur multicanal (MCA)

NaI crystal : cristal NaI

C'est la partie sensible du détecteur. C'est un monocristal de NaI (de 3" X 3") avec des impuretés de Tl. Il joue le rôle de scintillateur en convertissant les photons γ en photons de plus basse énergie. Le nombre de photons produits est proportionnel à l'énergie du γ incident. Les photons produits atteignent le tube photomultiplicateur (PM) en passant par un joint optique.

Le cristal de NaI est scellé dans une boîte pour le protéger des chocs et de l'humidité (NaI est hygroscopique)

Photomultiplier: Tube photomultiplicateur (PM)

Sa photocathode convertit les photons en électrons par effet photoélectrique. Le nombre d'électrons produits est proportionnel au nombre de photons. Les électrons sont multipliés par une série de dynodes. Le signal à la sortie du PM est proportionnel au nombre d'électrons présents après les dynodes.

Preamplifier: Préamplificateur

Il sert à pré-amplifier le signal à la sortie du PM pour pouvoir le conduire au reste de la chaîne d'acquisition. Notons que le signal à la

sortie du préamplificateur est toujours proportionnel à l'énergie du γ incident.

Canberra Series 20 Multichannel analyzer (MCA) : Analyseur multi-canal Canberra Serie 20

Les parties principales du Canberra Serie 20 sont : une haute-tension, une alimentation pour le préamplificateur, un amplificateur, un convertisseur analogique - numérique (ADC), l'analyseur multi-canal en lui-même, une interface de communication série RS-232

- la haute tension sert à alimenter le PM et ses dynodes
- l'alimentation du pré-ampli. (+/- 24V) est aussi fournie par le Canberra
- l'ampli du Canberra est un ampli unipolaire à gain programmable (de 3,5 à 1230)
- le convertisseur ADC est un convertisseur de type Wilkinson sur 12 bit à 100 MHz. Il est recommandé que le nombre d'impulsions à convertir soit assez bas pour que le temps mort de l'ADC soit inférieur à 10 % pour garder une bonne linéarité de conversion
- le MCA en lui-même classe les impulsions sur 4096 canaux (12 bits)
- l'interface RS-232 permet de transférer les données vers un ordinateur

Micro-computer : Micro ordinateur

C'est un micro-ordinateur de type Macintosh LC. Il utilise le logiciel de traitement "GesSpectre" [7] développé par l'IPNAS de l'ULg

3.4 Radioprotection

Les calculs et les tests préliminaires montrent que l'on doit utiliser une source de 3 μCi .

En accord avec la loi, les arrêtés royaux (A.R.) d'application concernant la radioprotection sont ceux en vigueur au moment des expériences (fin 2000, début 2001). Il s'agit donc des A.R. du 28 février 1963 - Moniteur belge du 16 mai 1963, ainsi que les différents A.R. modifiant ce texte jusqu'à l'A.R. du 2 octobre 1997 - Moniteur belge du 23 octobre 1997.

Radioprotection pendant le fonctionnement :

En accord avec ces textes, le ^{137}Cs est un radio-isotope de radiotoxicité modérée (Classe de radiotoxicité C). Un établissement utilisant une source scellée de 3 μCi de ce type de radio-isotopes est un établissement de classe IV. Le CSL étant un établissement de classe III, il peut donc utiliser une telle source.

Notre dispositif expérimental ne permet pas de s'approcher à moins de 10 cm de la source. A cette distance, le débit de dose d'une source de 3 μCi de ^{137}Cs est de $9,72 \cdot 10^{-7}$ Gy/heure [8] ce qui correspond à une dose équivalente de $9,27 \cdot 10^{-4}$ mSv/heure. La limite maximale de 50 mSv/12 mois consécutifs glissants ne peut donc être atteinte (limite maximale pour le personnel exposé). De plus les 3/10^{ème} de cette limite ne peuvent pas non plus être atteints. Par conséquent le personnel sera considéré comme personnel de catégorie B et ne devra donc pas porter de dosimètre [9].

La dose équivalente est tellement faible ($9,27 \cdot 10^{-4}$ mSv/heure), que même à raison de 8 heures de travail par jour sur 220 jours par an, la dose équivalente cumulée sera plus faible que la dose équivalente à laquelle le public peut être exposé (5 mSv/an). La dose équivalente sera du même ordre que la radioactivité naturelle (1 à 2 mSv/an) [2].

De plus, comme la source est scellée, il n'y a pas de risques de contamination radioactive.

Radioprotection pendant le montage :

Comme la source est scellée, on ne peut l'approcher à moins de 1 cm. A cette distance le débit de dose d'une source de 3 μCi de ^{137}Cs est de $9,72 \cdot 10^{-5}$ Gy/heure [8] ce qui correspond à une dose équivalente de

0,0927 mSv/heure. A 1 cm de distance on peut donc travailler 154 heures et rester en dessous de 3/10^{ème} des limites de doses (donc être classé personnel de catégorie B et ne pas porter de dosimètre). Le temps de montage est de l'ordre de 5 heures.

Terminons en signalant que les chiffres utilisés sont ceux pour l'exposition du corps entier. En réalité, seules les mains seront à ces distances (1 cm ou 10 cm) et dans ce cas les normes pour les expositions de certaines parties du corps sont applicables. Pour les mains, les doses équivalentes maximales sont 10 fois supérieures à celles pour le corps dans son ensemble [9].

3.5 Budget radiométrique

Le budget radiométrique est un calcul théorique du nombre de photons présents au différents endroits du dispositif expérimental. Ce calcul est réalisé pour 4 zones :

- ① : Au contact de la source
- ② : Après le collimateur
- ③ et ④ : Ce sont les mêmes zones. C'est la zone juste avant le détecteur. La zone ③ considère le cas de l'azote liquide (LN2) et la zone ④ considère le cas de l'azote solide (SN2). La figure 9 illustre la géométrie du dispositif expérimental et la figure 10 est une photo de ce dispositif.

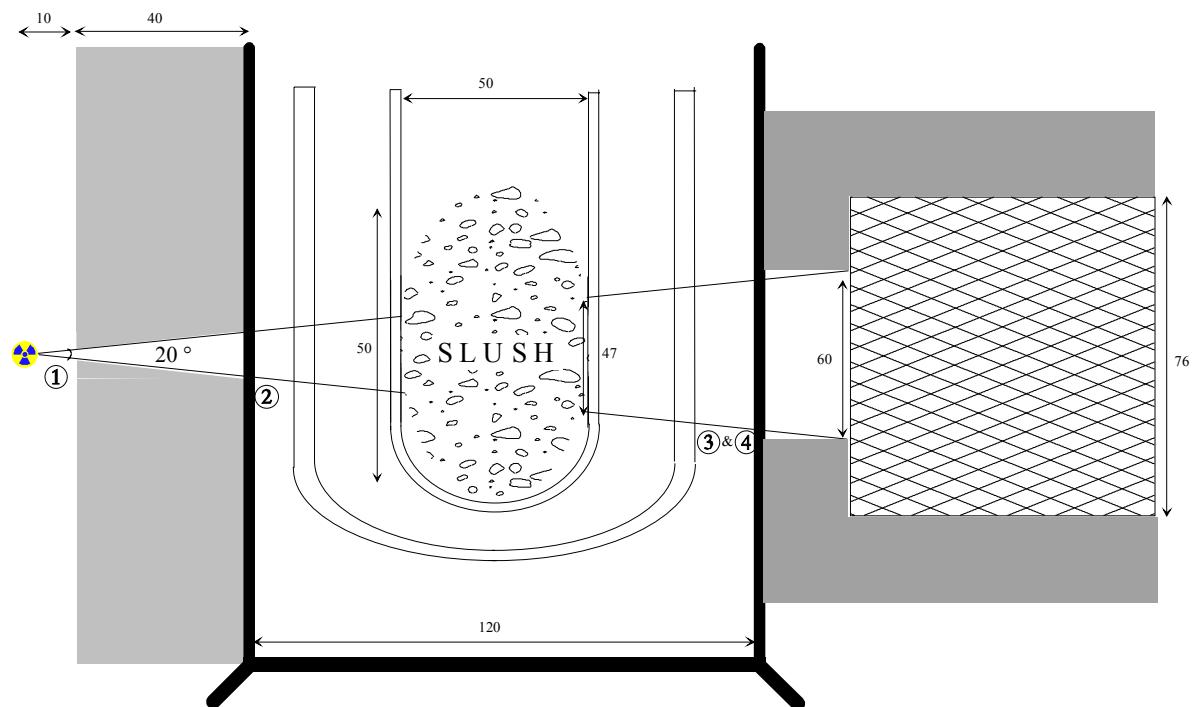


Figure 9. Géométrie de mesure

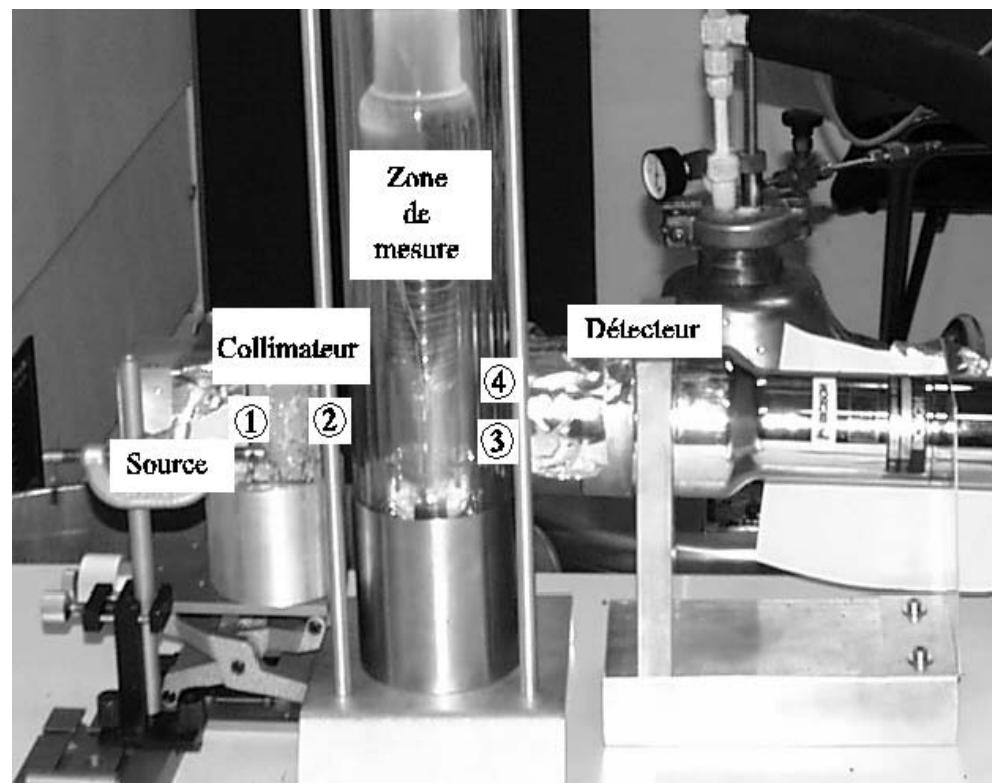


Figure 10. Photo de la géométrie de mesure

Zone ①

La source a une activité de 3 μCi . Elle émet donc 111000 photons γ chaque seconde dans 4π stéradian. On n'utilise que les photons γ qui ont une énergie de 662 keV. Ceux-ci représentent 85 % de l'activité. Le nombre de photons γ dans la zone ① est donc de $0,85 \cdot 111000 = 94350$ photons $\gamma/\text{seconde}$. Un faisceau d'une ouverture angulaire de 20° passe à travers le collimateur.

Zone ②

Après le collimateur, l'intensité du faisceau dans la zone ② sera de 2883 photons $\gamma/\text{seconde}$. Il est intéressant de constater que le flux restant qui ne passe pas par le trou du collimateur (donc qui passe par les 4 cm de Pb du collimateur) est atténué par un facteur $6,71 \cdot 10^{-3}$ (Pour le Pb : $\rho=11,373 \text{ g/cm}^3$ et $\mu_M=0,11 \text{ cm}^2/\text{g}$). Le collimateur joue donc bien son rôle.

Zone ③ et ④

Il s'agit de la même zone. Dans le cas ③ on considère l'azote liquide et dans le cas ④ on considère l'azote solide. On utilise l'équation (2) avec I et I_0 les intensités avant et après la zone du Slush. Le coefficient μ_M est le même quel que soit l'état physique solide ou liquide [10]. Pour des photons γ de 0,663 MeV passant à travers l'azote, on a $\mu_M=0,0772 \text{ cm}^2/\text{g}$.

Azote liquide : Zone ③

La densité de l'azote liquide au point triple est de 809 kg/m^3 . Pour la zone ③ on a donc $I=2883 \cdot e^{-0,0772 \cdot 0,808 \cdot 3,7}=2289$ photons $\gamma/\text{seconde}$ ($3,7 \text{ cm}$ est la longueur x de la zone traversée. Elle est mesurée par calibration sur de l'eau de densité 1, voir chapitre 3.7.1).

Pour pouvoir comparer les prédictions du budget radiométrique avec la réalité, on doit tenir compte de tous les matériaux présents dans le dispositif expérimental.

Dans ce dispositif, le Slush est contenu dans un double dewar composé d'un dewar extérieur et d'un dewar intérieur. L'espace entre ces deux dewars est rempli d'azote liquide afin de minimiser les pertes thermiques

et donc de permettre au Slush de ne pas fondre trop rapidement. Cet azote liquide additionnelle est donc aussi traversé par les photons γ . En conséquence, le flux de sortie est donc réduit. La "couche" d'azote liquide additionnel est épaisse de 11,5 mm. L'intensité du faisceau γ résultant sera donc : $2289 \cdot e^{-0,0772 \cdot 0,808 \cdot 1,15} = 2131$ photons γ /seconde.

Pour être précis, on doit aussi tenir compte du verre composant les dewars. Sur tout le parcours du faisceau l'épaisseur de verre à traverser est de 10 mm (chacun des dewars est composé d'une double paroi, il y a donc 8 parois à traverser !). L'intensité du faisceau γ résultant sera donc : $2131 \cdot e^{-0,0773 \cdot 2,48 \cdot 1} = 1759$ photons γ /seconde (pour le verre $\mu_M = 0,0773 \text{ cm}^2/\text{g}$ et $\rho = 2,48 \text{ g/cm}^3$).

Ces photons sont détectés par le détecteur. Pour comparer le budget radiométrique avec la mesure, on doit connaître l'efficacité du détecteur. Pour ce faire, on place le détecteur juste après le collimateur (c.-à-d. la zone ②). A cet endroit le flux est de 2883 photons γ /seconde. On mesure pendant 5 minutes. La mesure est de (18974 ± 138) photons γ alors que 864900 photons γ sont présents. L'efficacité du détecteur est donc de 2,19 %.

En tenant compte de l'efficacité du détecteur, on doit donc mesurer 1759. $0,0219 = 38,52$ photons γ /seconde.

La comparaison avec l'expérience est la suivante
Expérience :

Temps de mesure : 181 secondes, nombre de photons γ détectés : 7420, nombre de photons γ /seconde détectés : 40,99, erreur : $\pm 1,16\%$

Budget radiométrique théorique :

38,52 photons γ /seconde

Si on tient compte des erreurs, la différence entre la théorie et l'expérience est donc de **5,18 %**.

Azote solide : Zone ④

La densité de l'azote solide au point triple est de 1026 kg/m^3 . Pour la zone ④ on a donc $I = 2883 \cdot e^{-0,0772 \cdot 1,026 \cdot 3,7} = 2151$ photons γ /seconde. Si on tient compte du verre du dewar, de l'azote liquide entre les deux dewars et de l'efficacité du détecteur, on trouve une flux de 36,35 photons γ /seconde

Dans le cas du néon on trouve :

Néon liquide (zone ③) : 34,65 photons γ /seconde

Néon solide (zone ④) : 32,39 photons γ /seconde

3.6 Dispositifs cryogéniques

Ce chapitre décrit le dispositif cryogénique utilisé pour produire le mélange pâteux (Slush mixture) d'azote ou de néon. Bien que le but final soit l'utilisation d'hydrogène pâteux, pour des raisons de sécurité, nous ne travaillons qu'avec de l'azote ou du néon.

Il existe plusieurs méthodes de production de Slush, en voici quelques-unes:

Méthode Auger:

Un cylindre de cuivre creux est refroidi par de l'hélium gazeux froid (à la température de l'hélium liquide). Le cylindre est plongé dans le liquide que l'on veut solidifier en partie (dans notre cas de l'azote ou du néon, mais le principe est aussi valable pour l'hydrogène). A l'intérieur du cylindre, on place un grattoir qui enlèvera au fur et à mesure la couche solide qui se forme au contact de la surface froide. A cause de leur densité supérieure, les particules solides arrachées tombent dans le liquide ce qui conduit à un mélange solide liquide. Cette méthode est illustrée à la figure suivante.

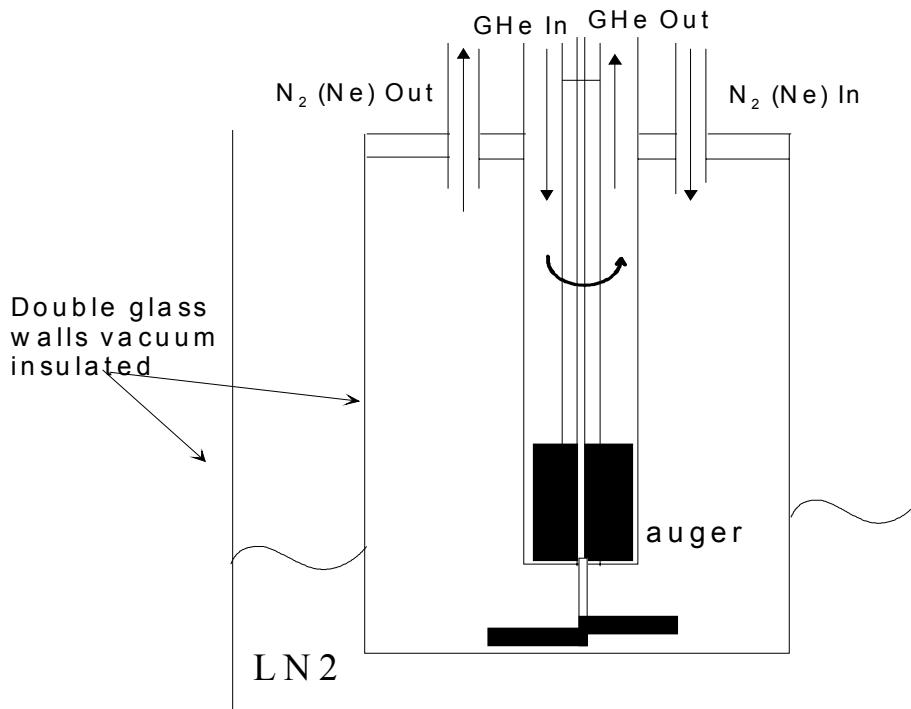


Figure 11. Principe de la méthode Auger

Méthode "freeze-thaw" (gel - dégel):

Cette méthode se base sur des solidifications - liquéfactions successives. Dans le cas de l'hydrogène, le processus se déroule comme suit. On pompe au-dessus de l'hydrogène liquide jusqu'à obtenir une pression de 65 mbar. Un film d'hydrogène solide se forme à la surface du liquide. On laisse remonter la pression juste assez pour que le pourtour du film puisse se liquéfier et laisser ainsi le reste du film couler (à cause de sa densité supérieure) dans l'hydrogène liquide. On abaisse de nouveau la pression pour obtenir un deuxième film solide... On répète tout le processus jusqu'à ce que la fraction solide voulue soit atteinte.

Méthode "Slush gun" (production en spray):

Pour le cas de l'hydrogène, on injecte de l'hydrogène gazeux froid dans un réservoir soumis à une "douche" d'hélium liquide. L'hydrogène subit donc un double refroidissement: via la détente lors de l'injection et via la douche d'hélium liquide.

La méthode utilisée au CSL est la méthode Auger. La figure suivante montre une photo du dispositif utilisé.

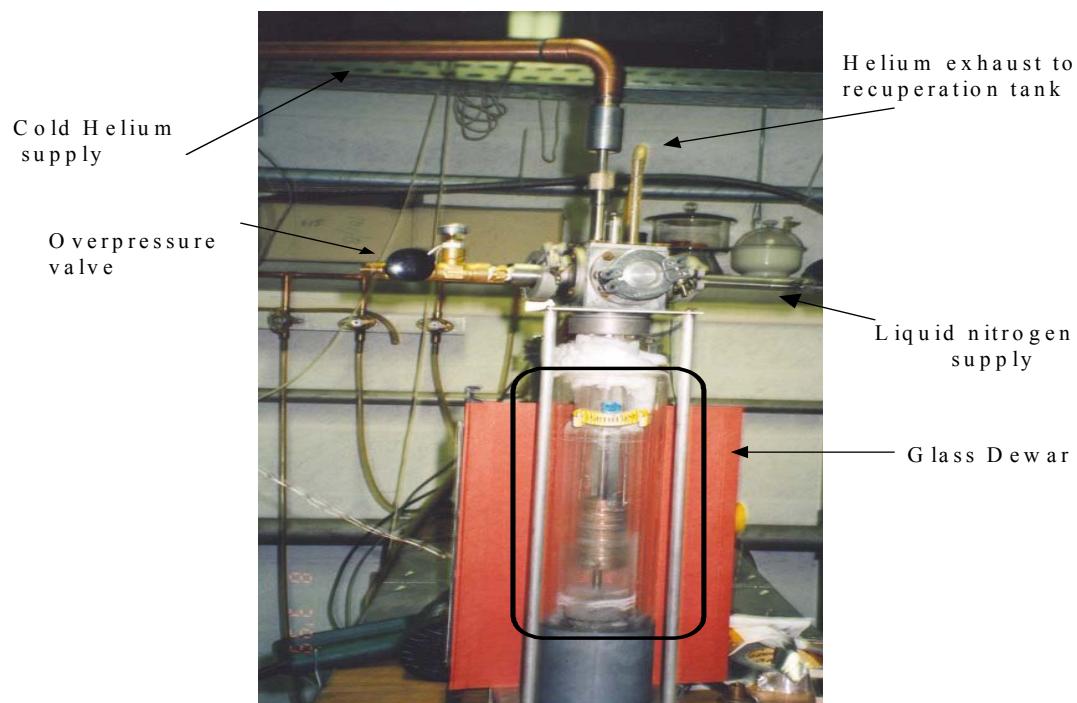


Figure 12. Photo du dispositif Auger utilisé

3.6.1 Production de Slush azote

Dans notre dispositif, un fin tube de cuivre est soudé sur le cylindre. L'hélium gazeux froid (± 4 K, la température de l'hélium liquide avec lequel il est en équilibre) circule dans ce tube pour refroidir le cylindre. L'hélium provient d'un réservoir pressurisé d'hélium liquide (voir figure 15). A l'intérieur du cylindre, un grattoir en Téflon permet d'enlever le solide formé au contact de la surface froide. Les particules solides ainsi enlevées tombent dans le liquide que sera homogénéisé par un "mixer". Ce mixer est manipulé manuellement. Il n'y a pas de senseur de pression car comme les trois états sont présents (solide-liquide-gaz), les conditions de pression et de température sont celles du point triple ($T_{Tr}=63,1\text{K}$, $P_{Tr}=120\text{ mbar}$). La figure 13 montre un gros plan de cette partie du dispositif. La figure 14 montre une photo de l'ensemble de l'expérience. La figure 15 montre le schéma des fluides utilisés. La figure 16 montre un échantillon de Slush azote.

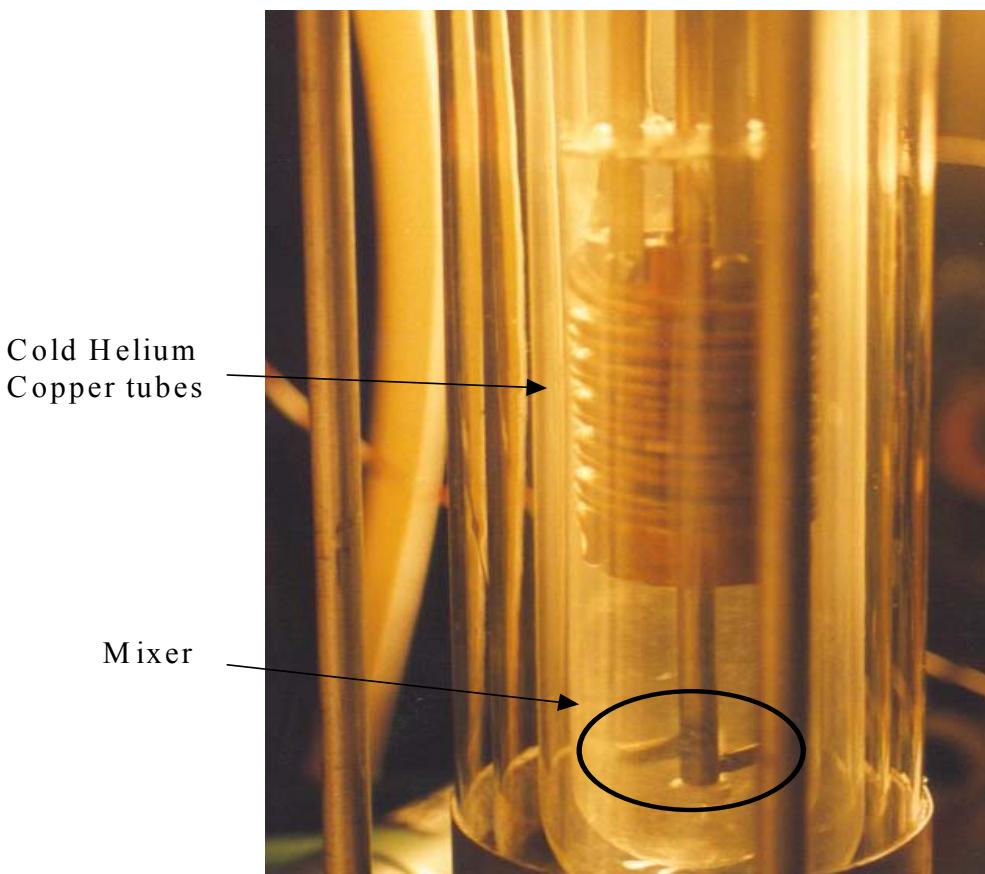


Figure 13. Photo de la zone de production de Slush

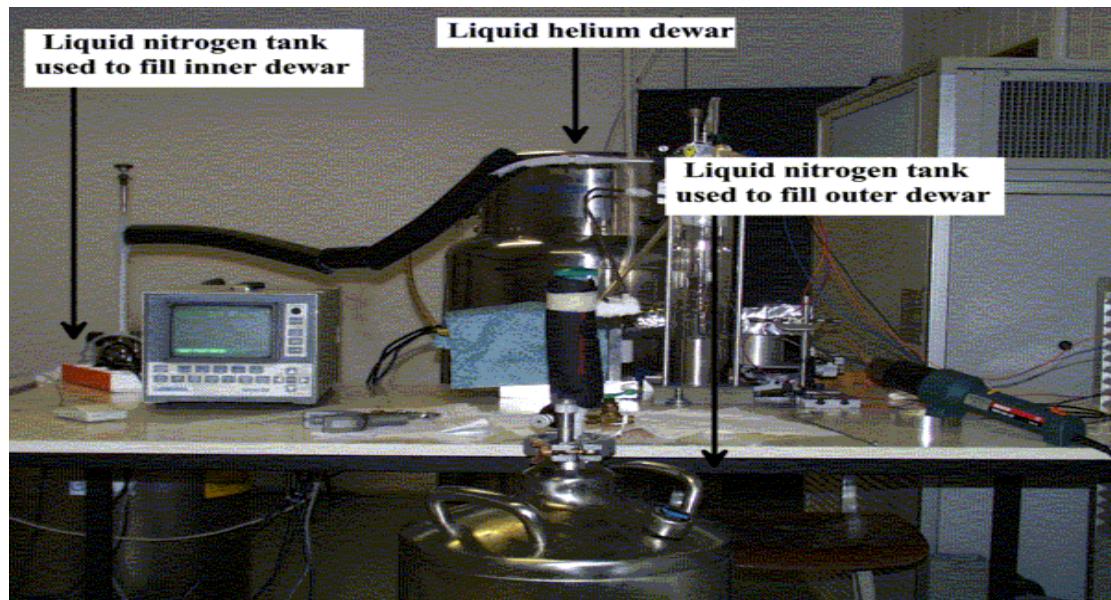


Figure 14. Vue d'ensemble

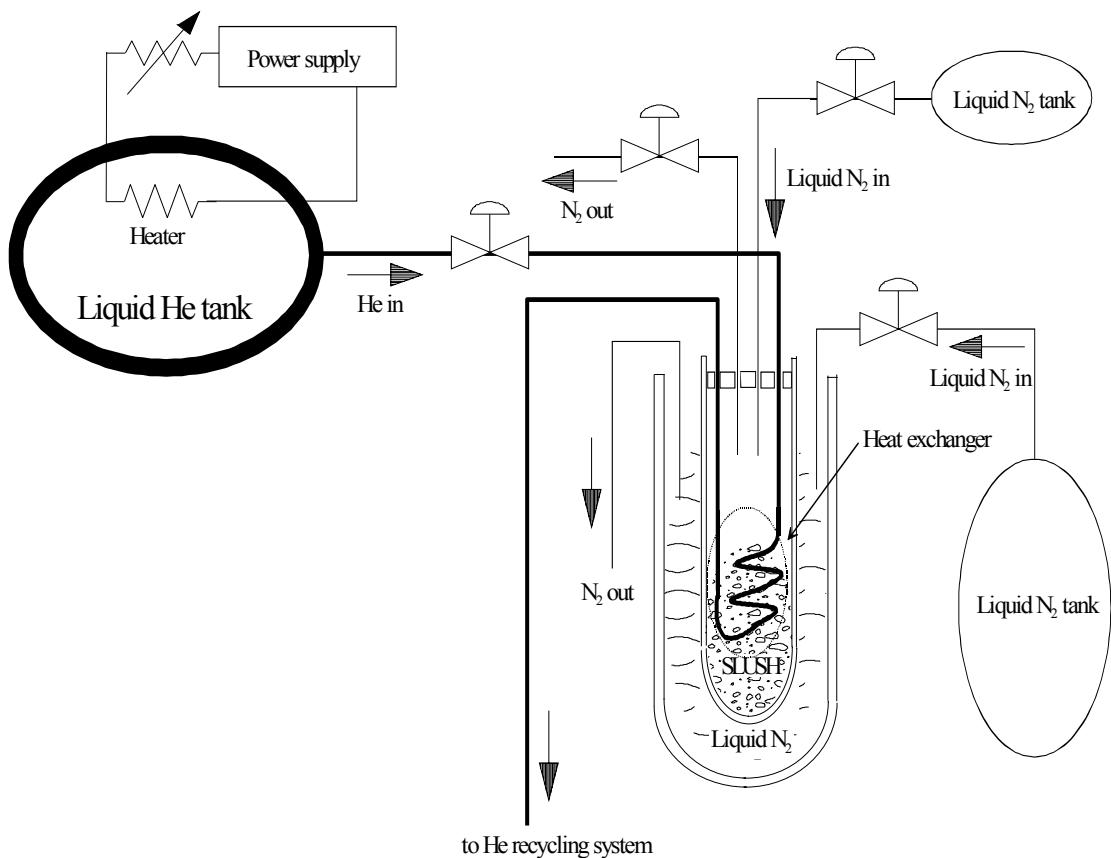


Figure 15. Schéma des fluides

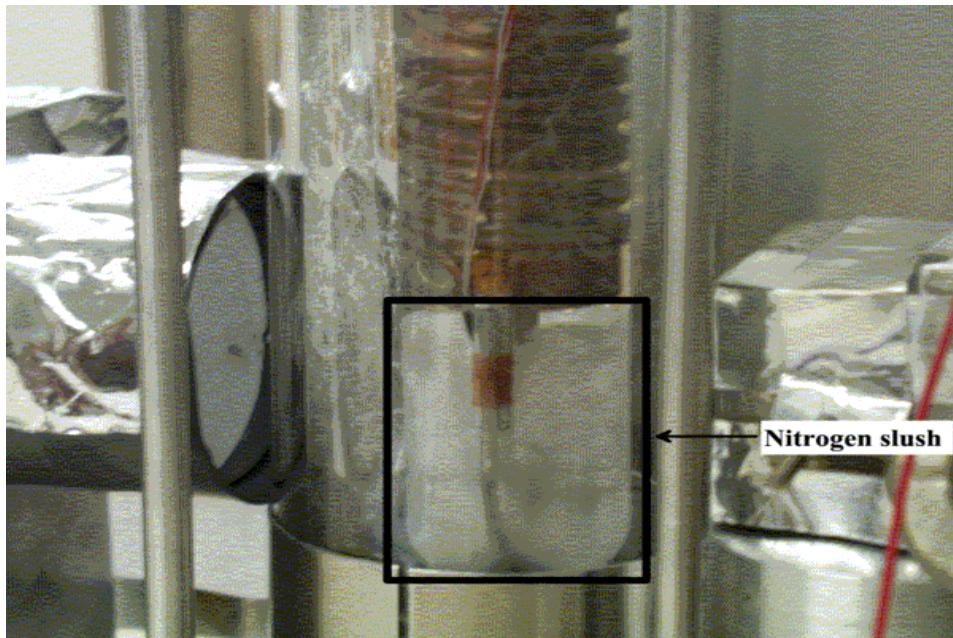


Figure 16. Echantillon de Slush azote

3.6.2 Production de Slush néon

Le principe est le même que pour l'azote. La seule différence vient du fait que pour le néon on doit partir de néon gazeux (contrairement à l'azote qui est liquide au départ). On doit donc d'abord liquéfier le néon. Cette liquéfaction est facilitée par un "pre-cooler" qui fait passer le néon gazeux dans un bain d'azote liquide. La figure suivante illustre ce cas. Pour le néon, on a $T_{Tr}=24,6\text{K}$, $P_{Tr}=430\text{ mbar}$.

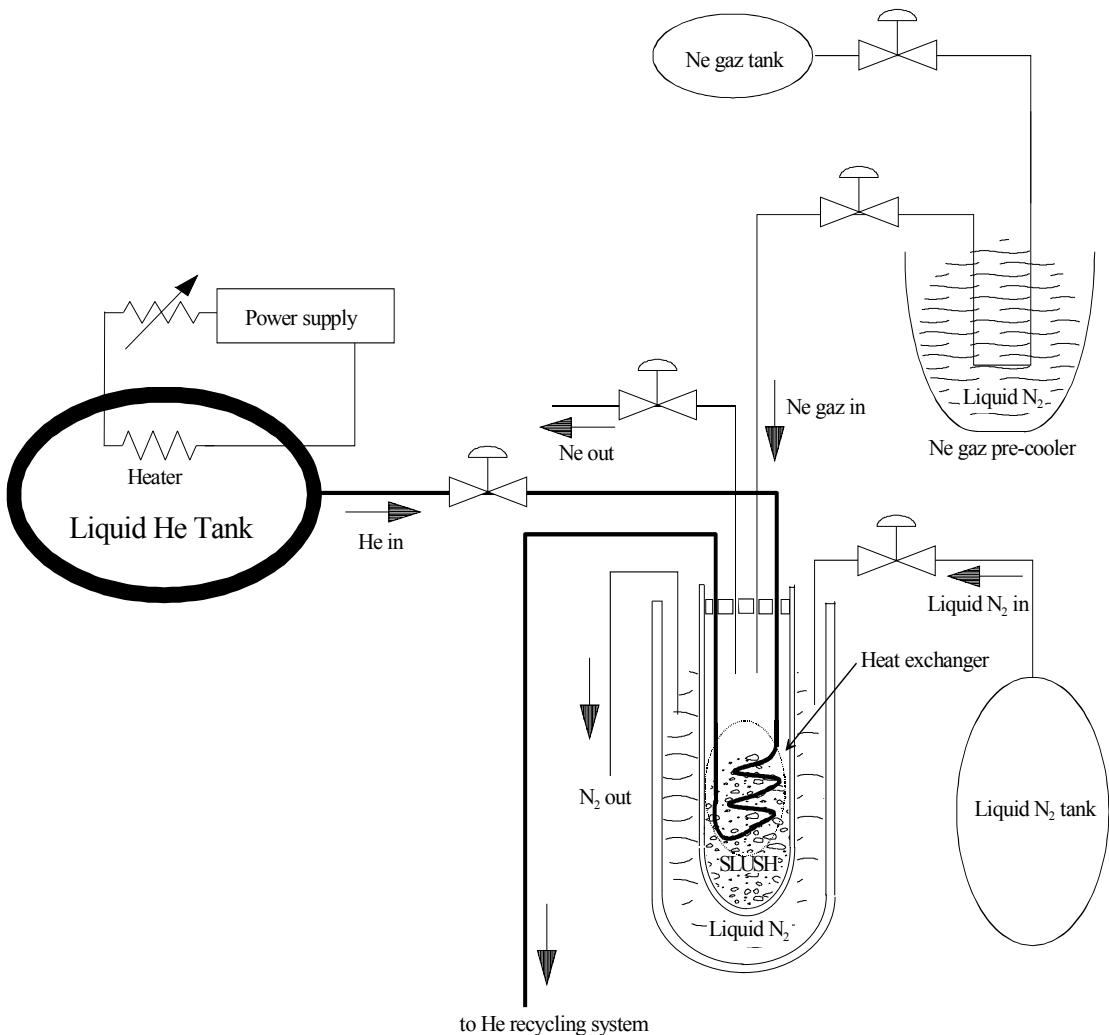


Figure 17. Schéma des fluides dans le cas du néon

3.6.3 Caractéristiques du dispositif de production de Slush

Ce chapitre reprend quelques-unes des caractéristiques du dispositif.

- Le temps nécessaire pour obtenir du SLN₂ est de ± 1 heure
- Le temps nécessaire pour obtenir du SLNe est de ± 5 heures : une heure pour obtenir la première goutte de néon liquide, trois heures pour obtenir assez de néon liquide, une heure pour obtenir du SLNe

Phénomène de stratification :

En raison de la différence de densité entre le solide et le liquide, le Slush produit se retrouve à différentes hauteurs dans le dewar en fonction de sa fraction solide. Le Slush avec la plus grande fraction solide (le plus dense) se trouvera dans le fond et le Slush avec la moins grande fraction solide (le moins dense) se trouvera au-dessus. La figure suivante illustre ce phénomène.

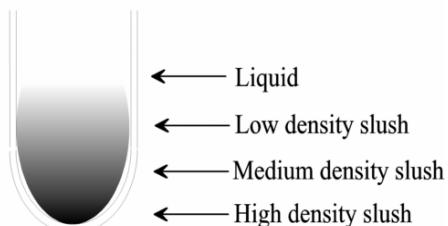


Figure 18. Phénomène de stratification

La mesure de densité est donc une mesure de la zone traversée par le faisceau. Cette zone contient du Slush de densité intermédiaire. On doit donc être conscient que le dewar contient du Slush plus dense (en dessous de la zone de mesure) et moins dense (au-dessus de la zone de mesure).

Comme le but du travail n'est pas d'optimiser la production de Slush, ce problème n'a pas été résolu. Il pourrait être résolu en homogénéisant le Slush avec une vis sans fin (vis d'Archimède).

Vitesse de transition liquide - solide et solide - liquide :

Pour pouvoir réaliser une mesure de densité avec une assez bonne précision (voir équation (7)), on doit compter un nombre élevé de photons γ . Pour compter un assez grand nombre de photons γ , on doit réaliser une mesure assez longue, dans notre cas cinq minutes. Le "temps de vie" du Slush à mesurer doit donc être plus grand que notre temps de mesure de cinq minutes.

De part notre mode de production (utilisation d'hélium à 4 K pour refroidir), le temps de solidification du liquide qui sert à réaliser le Slush est très court. En pratique, on passe d'une phase complètement liquide à

une phase complètement solide en quelques minutes (entre cinq et dix). Il est donc difficile de réaliser plusieurs mesures lors de cette transition liquide - solide.

On réalise donc les mesures lors de la transition solide - liquide. On produit du solide puis on le laisse "fondre naturellement". Cette fonte prend plus d'une heure. On peut donc réaliser plusieurs mesures de Slush de densité décroissante lors de cette fonte (voir chapitre 3.7.3 et 3.7.4).

Aspect "neigeux" d'une partie du solide :

La transition liquide - solide ne se fait pas à vitesse constante. En effet, au début de cette transition, la fraction solide formée est enlevée par le grattoir et tombe dans le fond du dewar. Lorsque la phase solide atteint la hauteur du mixer, celui-ci se bloque et comme le grattoir est sur le même axe que le mixer, il est aussi bloqué. A partir de ce moment, la fraction solide formée au contact de la surface froide (le cylindre de cuivre), n'est plus enlevée et assez rapidement, toute la zone en contact avec la surface froide se solidifie. Cette solidification se fait très rapidement (quelques secondes). Comme il n'y a plus de liquide, cette solidification laisse des "trous". En effet, comme le solide est plus dense, il occupe moins d'espace et on se retrouve avec un solide d'aspect neigeux. On a donc un solide très peu dense et les mesures de densité sur cette zone donnent des valeurs inférieures à la densité du liquide.

Comme le but de ce travail n'est pas d'optimiser la production de Slush, ce problème n'a pas été résolu. De plus, on voit clairement à l'œil nu que l'on a bien deux zones avec deux solides d'aspects différents : la zone basse et moyenne du dewar où le solide à l'aspect d'un glaçon, la zone haute du dewar (celle en contact avec la surface froide) où le solide à l'aspect de la neige.

A cause de ce problème, il n'est pas possible d'obtenir un Slush très dense. Au-dessus d'une certaine fraction solide, le Slush présente un aspect neigeux et les mesures de densité ne sont plus valables. Dès lors toutes nos mesures sur le Slush sont réalisées avec du Slush dont la fraction solide est assez faible pour que ce problème n'apparaisse pas. En pratique, la fraction solide maximale utilisée est de 75 % pour l'azote et 61,5 % pour le néon (voir chapitre 3.7.3 et 3.7.4)

3.7 Résultats expérimentaux

Ce chapitre reprend les résultats obtenus lors du projet *FESTIP Work Package 4.3 Slush Hydrogen Test Bench and Densimeter*.

3.7.1 Tests préalables

Une série de tests préalables est menée afin de s'assurer que les mesures de densité sont réalisées dans de bonnes conditions.

Localisation de la source

Le radio-isotope émetteur est de petite taille mais celui-ci est scellé dans un conteneur. Afin d'optimiser le flux de photons γ incidents, on doit s'assurer que le radio-isotope (que l'on suppose ponctuel) se trouve bien en face de l'ouverture du collimateur. On réalise 10 mesures pour s'assurer de la position du radio-isotope dans le conteneur. Ces mesures confirment que le radio-isotope se trouve bien au centre du conteneur.

Calibration en énergie du détecteur et sélection de la ROI

Les mesures de densité ne demandent pas de mesure d'énergie des photons γ . Nous réalisons quand même une calibration en énergie du système afin de déterminer la ROI autour du pic à 662 keV. Cette calibration est réalisée avec un temps de mesure d'une heure. Le nombre de photons γ mesurés dans le pic à 662 keV est de 19442906.

Efficacité du détecteur

Comme expliqué au chapitre 3.5, on doit connaître l'efficacité absolue du système de détection pour les photons γ de 662 keV. Pour ce faire, on compare l'activité de la source au nombre de photons détectés après le collimateur et tenant compte de l'angle solide autorisé par ce dernier. Les résultats obtenus sont donnés au chapitre 3.5. L'efficacité du détecteur est de 2,19 %. Cette efficacité mesurée provient notamment du temps mort du convertisseur ADC du MCA. Lorsqu'un événement survient pendant une conversion ADC, il n'est pas comptabilisé et l'efficacité de détection s'en ressent.

Mesure du bruit de fond de rayonnement γ

Pour être sûr que les calculs de densité ne seront pas perturbés par un éventuel bruit de fond, on mesure ce dernier. Il peut provenir de plusieurs origines :

- bruit électronique (peu probable)
- radioactivité naturelle (rayonnement cosmique, radioactivité terrestre naturelle)

La mesure montre que le bruit de fond dans la ROI de 662 keV est de $(2,28 \pm 1,51)$ coups/seconde. Il est donc négligé.

Test à vide

Ce test sert à vérifier que tous les systèmes cryogéniques et électroniques sont fonctionnels

Mesure du paramètre x

Le paramètre x utilisé dans l'équation (3) est la longueur de matériaux traversée par le faisceau γ . Cette dernière est facile à mesurer dans le cas d'un faisceau parallèle (de type faisceau laser en lumière visible). Hélas, dans notre cas, le faisceau est de géométrie conique. De plus la zone traversée est cylindrique (le dewar contenant le Slush). La valeur de x dans notre cas est donc une valeur moyenne de la longueur de la zone d'intersection d'un cône et d'un cylindre. Le calcul théorique n'est pas immédiat. On préfère donc mesurer cette distance en utilisant l'équation suivante tirée de l'équation (3) :

$$x = \frac{-1}{\mu_M \cdot \rho} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (14)$$

Pour cette mesure, on utilise un fluide de densité connue : l'eau distillée. Cette mesure donne une valeur de x de 3,7 cm.

3.7.2 Mesure de densité d'un fluide non-cryogénique

Une première série de mesure est réalisée à température ambiante sur des fluides non-cryogéniques. Les résultats de ces mesures sont donnés dans le tableau suivant :

Fluide	Densité mesurée ($\cdot 10^3$ kg/m 3)	Densité théorique ($\cdot 10^3$ kg/m 3)	Différence (%) en tenant compte des erreurs absolues
H ₂ O ₂ (17%)	(1,180±0,059)	1,090	2,84
Acétone	(0,909±0,045)	0,792	9,09
Chloroforme	(1,51±0,0755)	1,489	0

3.7.3 Mesure de densité du Slush azote

La mesure de densité de l'azote liquide donne : (811±41) kg/m 3 . La valeur théorique est de 809 kg/m 3 .

La figure suivante montre l'évolution de la mesure de densité du Slush azote lors de sa fonte naturelle.

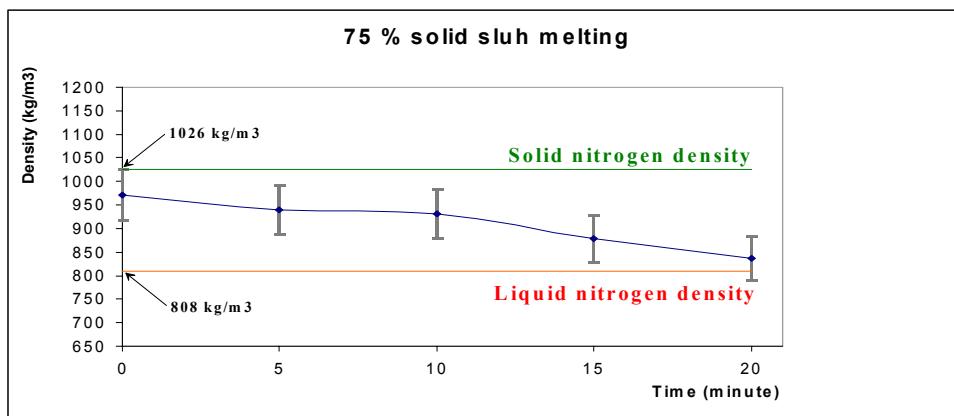


Figure 19. Mesure de densité lors de la fonte du Slush azote

Les barres d'erreurs qui apparaissent sur cette figure tiennent compte de toutes les erreurs constatées c'est-à-dire pas seulement de l'erreur statistique donnée par l'équation (7) mais aussi des erreurs dues au manque de stabilité mécanique du dispositif. En effet, lorsqu'on utilise le mixer pour homogénéiser le Slush, le dewar bouge légèrement et le

chemin que traversent les photons γ varie légèrement. L'erreur totale (c'est-à-dire l'erreur statistique plus l'erreur due à ces petits déplacements du dewar) est calculée en réalisant 13 mesures de la densité de l'azote liquide et en traitant statistiquement ces mesures. L'erreur totale est de $\pm 5\%$ alors que l'erreur statistique est de $\pm 3\%$.

Comme la production de Slush n'est pas optimisée, les inhomogénéités conduisent à une courbe de fonte qui n'est pas parfaitement régulière.

3.7.4 Mesure de densité du Slush néon

La mesure de densité du néon liquide donne : $(1210,7 \pm 35) \text{ kg/m}^3$. La valeur théorique est de $1207,3 \text{ kg/m}^3$.

La figure suivante montre l'évolution de la mesure de densité du Slush néon lors de sa fonte naturelle.

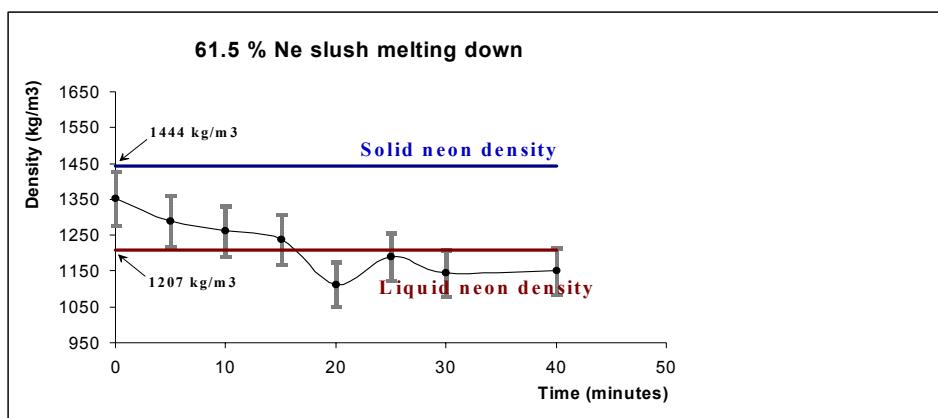


Figure 20. Mesure de densité lors de la fonte du Slush azote

Comme expliqué au chapitre précédent, le manque de stabilité mécanique du dispositif de production de Slush implique des mesures moins précises. Dans le cas des mesures présentées à la figure précédente, on soupçonne ce manque de stabilité de conduire à des mesures de moins bonne qualité. Par exemple, un déplacement latéral de 1 mm du dewar conduit une variation de 3 mm sur le paramètre x, cette dernière conduit à une mesure de densité de 1113 kg/m^3 au lieu de 1207 kg/m^3 (cas de la mesure à 20' sur la figure précédente).

De plus, si on veut être rigoureux, on peut aussi tenir compte de l'augmentation de l'erreur statistique lorsque la densité diminue (voir chapitre 2.2.3).

3.7.5 Influence des parois additionnelles

L'utilisation du Slush hydrogène dans le domaine spatial est envisagée comme une alternative à l'utilisation de l'hydrogène liquide comme carburant pour les futurs lanceurs. Dans le cadre de cette utilisation, des mesures de densité seraient réalisées à plusieurs endroits: sur le lieu de production, sur les canalisations qui acheminent le fluide sur le pas de tir (transfert pipes), sur le réservoir du lanceur (launcher tank) lorsqu'il est sur son pas de tir. Dans ces deux derniers cas les mesures de densité devront avoir lieu au travers de parois de canalisation ou de parois de réservoir.

Afin de s'assurer que la présence de parois ne va pas perturber les mesures de densité, on réalise des mesures sur de l'azote liquide pendant trois minutes avec des plaques en Inox 316 de 2 mm d'épaisseur de part et d'autre du dewar afin de simuler les parois.

Une première mesure est réalisée sans les plaques d'Inox et avec un dewar central vide. Le nombre de photons γ comptés est de (9624 ± 481) en tenant compte des sources d'erreurs réelles de $\pm 5\%$ (voir chapitre 3.7.3). On ajoute les deux plaques d'Inox. En utilisant l'équation (2), avec la valeur précédente comme paramètre I_0 , on calcule que l'on doit avoir 7628 photons γ détectés (pour l'Inox 316 on a $\rho=8 \text{ g/cm}^3$, $\mu_M=0.0726 \text{ cm}^2/\text{g}$). La mesure donne une valeur de (8005 ± 400) . Il y a donc un bon accord entre le calcul et la théorie.

Une deuxième mesure est réalisée avec un dewar central rempli d'azote liquide. On compte (7810 ± 391) photons γ . On ajoute les deux plaques d'Inox. La théorie prédit 6191 photons γ . La mesure donne (6407 ± 320) . Il y a donc de nouveau un bon accord entre le calcul et la théorie.

Une troisième expérience mesure la densité de l'azote liquide avec ou sans les plaques d'Inox. La mesure de densité sans les plaques d'Inox donne $(785 \pm 39) \text{ kg/m}^3$. La mesure avec les plaques donne $(837 \pm 42) \text{ kg/m}^3$. Pour rappel, la valeur théorique est de 808 kg/m^3 .

On voit donc que la présence de parois a une influence prédictible sur la mesure de densité. Comme la théorie permet de calculer l'atténuation du flux γ due aux parois, on peut adapter le temps de mesure et/ou l'activité de la source pour maintenir les erreurs de mesures (données par l'équation (7)) en dessous d'un niveau spécifié.

3.8 Conclusions du projet *FESTIP Work Package*

4.3 Slush Hydrogen Test Bench and Densimeter

Ces mesures montrent la faisabilité des mesures de densité par absorption de photons γ .

On voit que la stabilité mécanique du dispositif pendant la mesure est primordiale.

Les parois additionnelles ont un rôle prévisible et ne remettent pas en cause la faisabilité de ce type de mesure.

On voit aussi que plus le taux de comptage augmente, plus les erreurs diminuent (équation (7)). Si la géométrie de la zone de mesure le permet, on peut augmenter le taux de comptage en augmentant la taille du détecteur.

Calcul dans le cas concret d'Ariane V

En guise de conclusion, illustrons le principe de mesure en calculant deux configurations extrêmes.

Imaginons la mesure de densité d'un Slush hydrogène dans l'étage principal cryotechnique (EPC) H155 d'un lanceur Ariane V [11]. Cet étage a un diamètre de 5,4 m et les parois sont en aluminium de 1,3 mm d'épaisseur. La figure suivante illustre cette mesure.

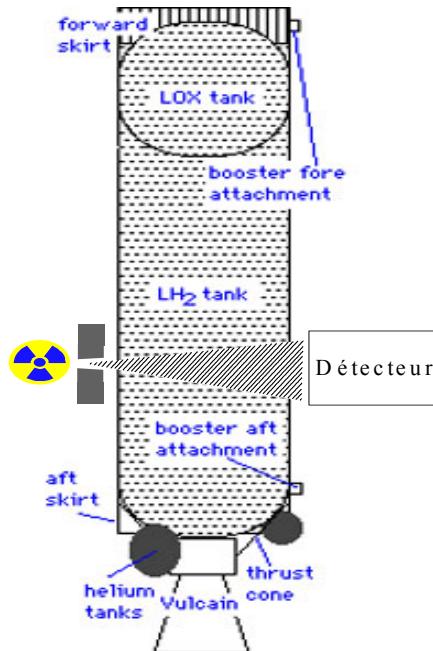


Figure 21. Mesure sur l'EPC d'Ariane V

Utilisons un détecteur BICRON 6H6/6 (6" x 6") et utilisons un collimateur de Pb de 4 cm d'épaisseur avec une ouverture conique angulaire de 1,6° près de la source.

1^{er} cas : Utilisons une source de 0,5 MBq de ¹³⁷Cs (activité maximale pour un établissement de classe IV selon l'A.R. du 2 octobre 1997). Avec un détecteur qui a une efficacité de détection de 2,2 % et si l'erreur sur la mesure du paramètre x (la taille du réservoir) et de 0,1%, l'erreur sur la mesure de densité d'un Slush azote à 50 % solide sera de 14,2 % pour un temps de mesure de 10 minutes.

2^{ème} cas : Utilisons une source de 50 GBq de ¹³⁷Cs (activité maximale pour un établissement de classe III selon l'A.R. du 2 octobre 1997). Avec un détecteur qui a une efficacité de détection de 2,2 % et si l'erreur sur la mesure du paramètre x (la taille du réservoir) et de 0,1%, l'erreur sur la mesure de densité d'un Slush azote à 50 % solide sera de 1,2 % pour un temps de mesure de 1 seconde. Avec une telle source un blindage de Pb de 4 cm sera nécessaire à 1 m de la source (ou 8 cm de Pb à 10 cm de la source) pour que les normes d'expositions du personnel soit respectées.

Entre ces deux valeurs extrêmes (14,2 % d'erreur en 10 minutes et 1,2 % d'erreur en 1 seconde) un compromis doit être trouvé pour l'activité de la source.

L'activité de la source sera donc calculée en fonction de deux paramètres : le **temps maximum d'acquisition** autorisée et l'**erreur maximale acceptable**.

Le but étant d'utiliser la source la moins intense possible (principe ALARA en radioprotection)

Terminons en signalant que théoriquement on peut encore diminuer légèrement l'erreur de mesure en adaptant l'énergie des photons γ incidents (voir discussion sur l'effet du paramètre k' sur l'erreur au chapitre 2.2.2). Pour cela, il faudra choisir un autre radio-isotope. Ce choix d'un autre radio-isotope devra se faire en tenant aussi compte d'autres paramètres : demi-vie, un seul pic, coût, disponibilité ...

4 Dispositif expérimental du projet *Densimètre Slush*

Comme expliqué dans l'introduction, ce travail se base sur les résultats expérimentaux de deux projets menés au CSL : *FESTIP Work Package 4.3 Slush Hydrogen Test Bench and Densimeter* et *Densimètre Slush*. Dans ce chapitre, nous allons détailler le dispositif expérimental utilisé pour le deuxième de ces projets.

4.1 Exigences du projet

Le but de ce projet est de réaliser un appareil de mesure de densité qui soit simple à utiliser. Celui-ci sera utilisé dans l'installation de production de Slush de Magna Steyr en Autriche. L'utilisateur doit pouvoir réaliser une mesure en appuyant sur un seul bouton et obtenir le résultat et l'erreur de mesure automatiquement.

Le système doit quand même permettre de modifier, au besoin, les paramètres expérimentaux (temps de mesure, nature du Slush mesuré, longueur de Slush traversée). Il doit donc y avoir une interface utilisateur qui permet ces modifications.

4.2 Principe général du système

La mesure de densité se base sur le même principe et le même type de dispositif que celui exposé aux chapitres 2 et 3. Il y a néanmoins des différences technologiques importantes entre les deux dispositifs expérimentaux. Le principe de mesure reste basé sur l'ensemble :

$$\text{Source } \gamma \rightarrow \text{Slush} \rightarrow \text{Détection } \gamma \rightarrow \text{Treatment of data}$$

Les différences se situent au niveau du traitement des données. La détection se fait toujours par un cristal scintillant (NaI) associé à un photomultiplicateur et un préamplificateur. Cet ensemble est disponible en un "bloc" via le Scintipak 296 d'Ortec (qui assure aussi l'alimentation haute tension du PM).

Contrairement au dispositif précédent (voir figure 8), le signal de sortie du préampli n'est pas connecté à un MCA mais à un *Amplifier and Timing Single Channel Analyzer* (TSCA) modèle 590A d'Ortec. La sortie de l'analyseur mono-canal (*Single Channel Analyzer* ou SCA) n'est pas

connectée à un ordinateur mais à un micro-contrôleur qui contient un logiciel dédié (voir chapitre 4.4.4). La figure suivante reprend le schéma de l'installation expérimentale, elle est donc à comparer avec la figure 8.

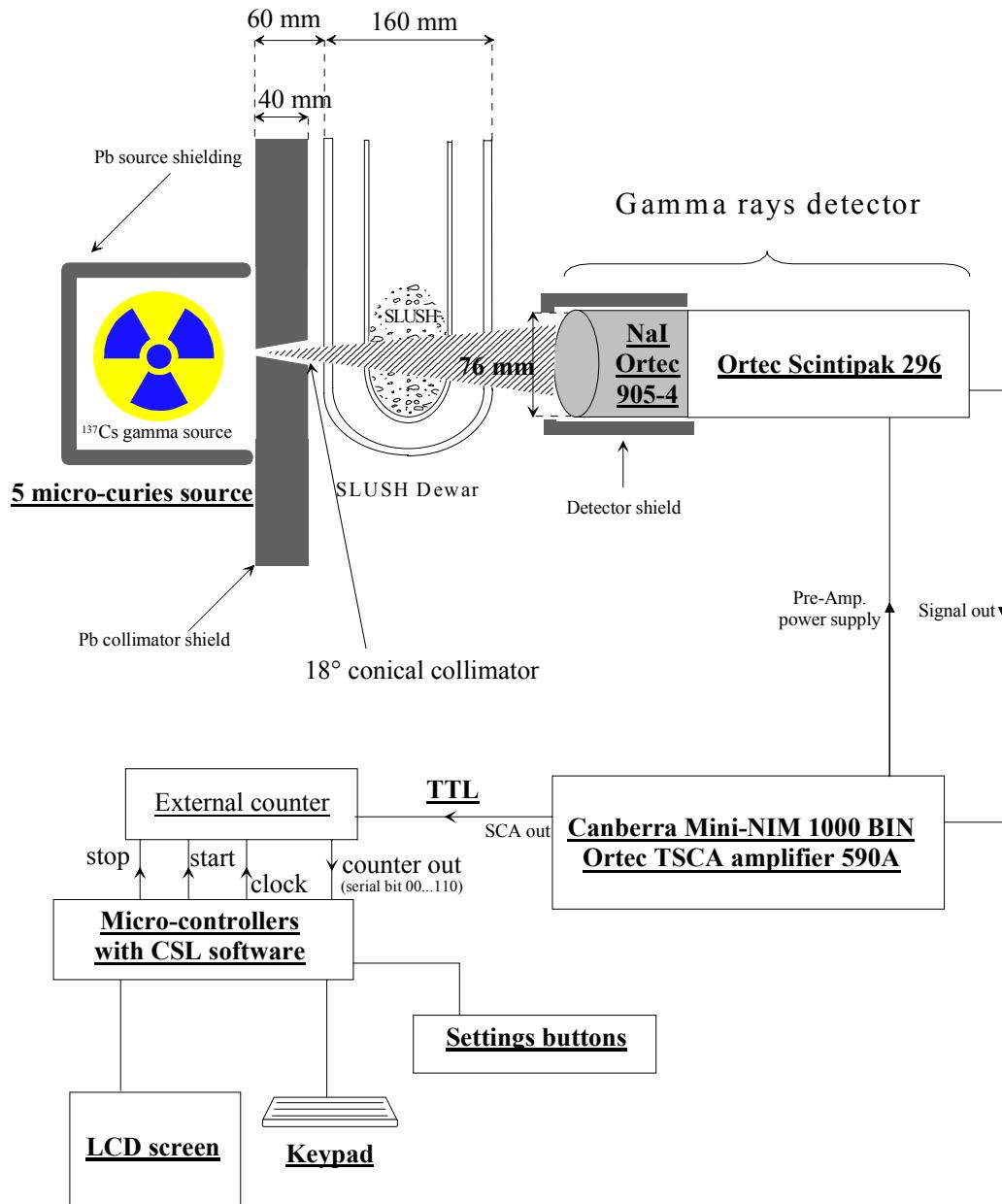


Figure 22. Dispositif expérimental

Ortec 590A Timing Single Channel Analyzer

Ce système est composé d'un amplificateur de mise en forme (shapping amplifier) suivi par un analyseur mono-canal (SCA). Le gain de l'ampli est ajustable continûment entre 5 et 1250. Le SCA permet de choisir une fenêtre d'amplitude en tension pour le pulse venant de l'amplificateur (et donc une fenêtre d'énergie du type $E + \Delta E$ pour le γ détecté). Si le pulse est compris dans cette fenêtre, le SCA sort un signal TTL (amplitude 5 V) de 500 ns de large sur la sortie SCA OUT du 590A.

La fenêtre est ajustée pour ne tenir compte que des pulses venant du pic à 662 keV du ^{137}Cs (voir chapitre 4.4.1). On ne doit tenir compte que des photons γ de 662 keV car le coefficient d'absorption μ_M utilisé est fonction de l'énergie (voir chapitre 2.3). On prend donc le μ_M qui correspond au γ de 662 keV.

Micro-contrôleur

Il compte les pulses issus du SCA, il compte donc les photons γ de 662 keV qui passent au travers du Slush et qui sont détectés. En réalité, le micro-contrôleur ne compte pas directement les pulses, il ne serait pas assez rapide pour les compter tous. C'est donc une électronique externe (voir chapitre 4.4.2) qui compte les pulses et transmet le résultat (sous forme binaire en série) en fin de mesure.

Le micro-contrôleur affiche alors la densité mesurée et l'erreur relative en se basant sur les équations (3) et (7).

4.3 Budget radiométrique

Ce chapitre est analogue au chapitre 3.5. Il reprend le calcul du budget radiométrique dans le cas particulier de l'installation de Magna Steyr en Autriche.

Mais dans ce cas-ci, le but poursuivi est de chiffrer la précision de mesure via un calcul d'erreur en utilisant les formules données au chapitre 2.2.

Le dewar dans lequel la mesure est faite est illustré sur la photo suivante.



Figure 23. Cryostat de Magna Steyr

Il a une hauteur de ≈ 1 m et est constitué de deux dewars double parois. La figure suivante détaille les caractéristiques géométriques de ce cryostat ainsi que les différentes zones considérées pour le calcul du budget radiométrique.

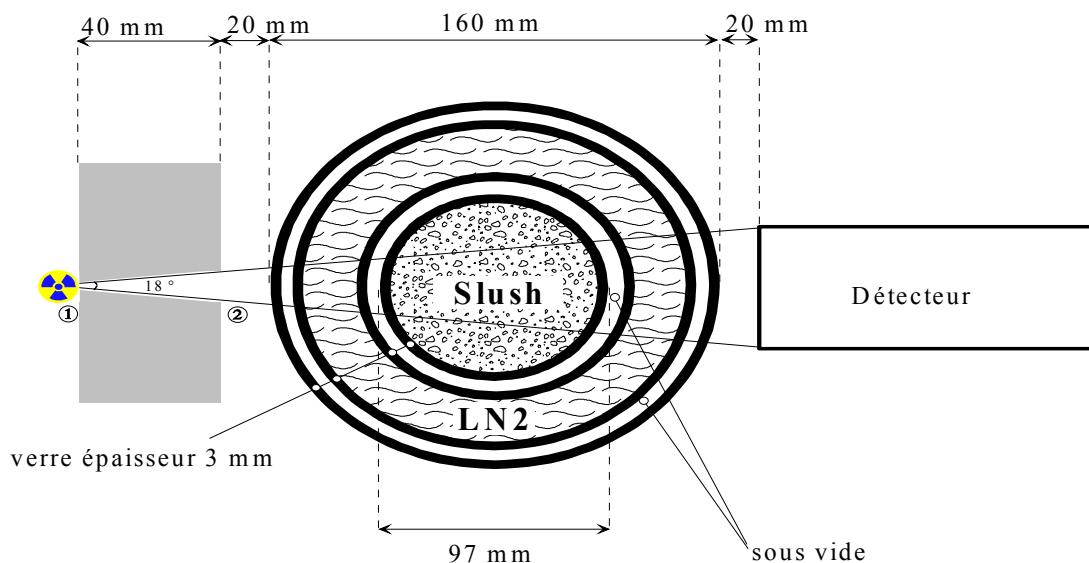


Figure 24. Caractéristiques géométriques du cryostat de Magna Steyr

Calculons les absorptions dues aux différents éléments :

- la source en ① est une source de ^{137}Cs de 5 μCi c.-à-d. 185000 Bq
- le pic utile à 662 keV représente 85 % de l'activité, donc 157250 γ/s
- le collimateur a une ouverture angulaire conique de 18° . L'angle solide est donc de $2\pi(1-\cos 9^\circ) = 7,7356 \cdot 10^{-2} \text{ Sr}$. Le flux présent après le collimateur (zone ②) est donc de $(7,7356 \cdot 10^{-2}/4\pi) \cdot 157250 = 968 \gamma/\text{s}$
- les 8 parois de verre de 3 mm vont atténuer le flux d'un facteur $e^{-0,0773 \cdot 2,48 \cdot 2,4} = 0,631$ (pour le verre $\mu_M = 0,0773 \text{ cm}^2/\text{g}$ et $\rho = 2,48 \text{ g/cm}^3$). En tenant compte de cette atténuation, le flux restant n'est plus que de 611 γ/s
- la couche totale de LN₂ à traverser est de 24 mm. Il y a donc une atténuation de $e^{-0,0772 \cdot 0,808 \cdot 2,4} = 0,861$, le flux restant est donc de 526 γ/s
- si on considère que l'efficacité du détecteur est de 5 %. Le flux de photons γ détectés en l'absence de Slush est de 26 γ/s . Ce flux est le facteur I_0 à utiliser avec les équations (2) et (3): $I_0 = 26 \gamma/\text{s}$.

Calculons l'atténuation du flux due au Slush dans différents cas.

- avec du Slush azote avec une fraction solide de 25 %, on aura un flux résultant $I = I_0 \cdot e^{-0,0772 \cdot 0,8625 \cdot 9,7} = 13,63 \gamma/\text{s}$.
- si on mesure pendant 600 s, on aura: $I = 600 \cdot 13,63 = 8178$ et $I_0 = 600 \cdot 26 = 15600$.
- en utilisant l'équation (8), on calcule que l'erreur relative sur la mesure de ce cas-ci est de 2,95%

Ces mêmes calculs sont effectués pour des Slush avec une fraction solide de 50 et 75 % et pour des temps de mesure de 10 et 20 minutes. Le tableau suivant résume les résultats.

Erreur relative pour différents cas

	Mesure de 600 s	Mesure de 1200 s
Slush 25 % solide	2,95 %	2,09 %
Slush 50 % solide	2,808 %	1,99 %
Slush 75 % solide	2,684 %	1,89 %

On constate que l'erreur diminue lorsque le temps de mesure augmente (comme illustré sur la figure 2).

On constate aussi que plus la fraction solide augmente, plus l'erreur diminue (comme illustré sur la figure 4bis).

4.4 Mise en œuvre pratique

Ce chapitre détaille les améliorations expérimentales par rapport au dispositif présenté au chapitre 3.

4.4.1 Paramètres d'utilisation du SCA

Comme expliqué au chapitre 4.2, nous utilisons maintenant un analyseur mono-canal (SCA) dont la fenêtre en énergie est ajustée sur le pic à 662 keV du ^{137}Cs . Le SCA délivre un pulse TTL de 500 ns de large à chaque fois qu'un photon de 662 keV est détecté.

On doit donc trouver un dispositif qui permet de fixer correctement la fenêtre en énergie ($E + \Delta E$) du SCA. L'idéal est de pouvoir observer le spectre et de régler la fenêtre pour que seul le pic à 662 keV soit considéré.

Un montage comme celui présenté à la figure suivante vient naturellement à l'esprit.

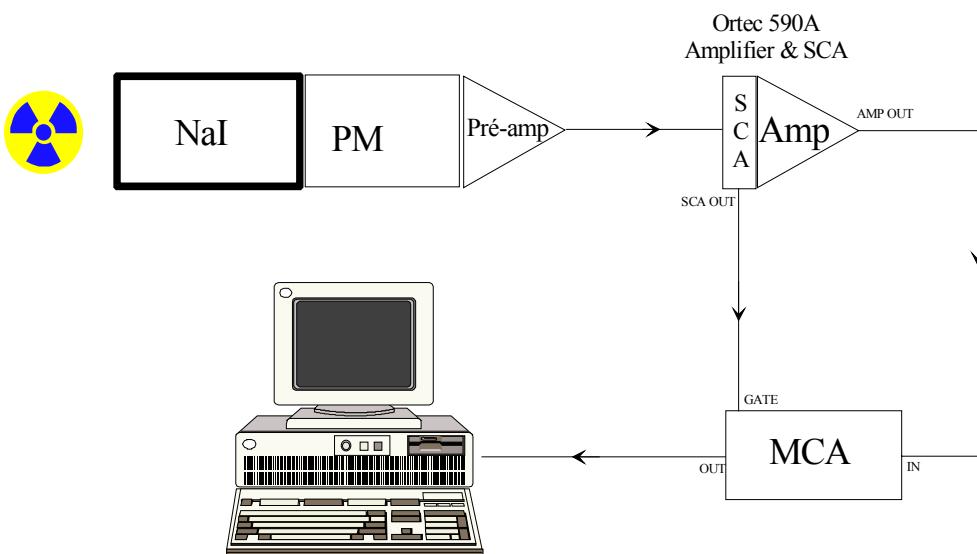


Figure 25. Réglages du SCA : mauvais système

L'idée est de déclencher la conversion ADC du MCA via son entrée GATE. Le pulse de déclenchement envoyé sur l'entrée GATE provient de la sortie du SCA. Ce pulse n'apparaît donc que si le photon γ détecté a bien une énergie comprise dans la fenêtre $E+\Delta E$ du SCA.

Ce type de montage ne fonctionne pas. En effet le SCA doit d'abord attendre que le signal atteigne son maximum avant de décider si oui ou non il est bien compris dans l'intervalle $E+\Delta E$. Le pulse sortant du SCA est donc généré après que le MCA ait reçu le signal à convertir. Le pulse du SCA arrive donc "trop tard" et ne permet pas de déclencher correctement le MCA.

La solution consiste à retarder le signal qui arrive à l'entrée du MCA de manière à ce que le pulse d'acceptation sur l'entrée GATE du MCA soit déjà présent. Pour cela on utilise un "Delay Amplifier" (Ortec 427A). Ce type d'amplificateur permet d'introduire un retard variable pour un signal analogique.

De plus, on doit "allonger" le pulse TTL de sortie du SCA pour qu'il "encadre" le signal pendant sa conversion par le MCA. C'est le MCA qui exige que le pulse TTL de déclenchement à sa porte GATE soit présent pendant tout le signal à convertir. Cet allongement est réalisé par un dispositif maison (basé sur un monostable de type 74LS221)

Le schéma suivant montre le dispositif utilisé.

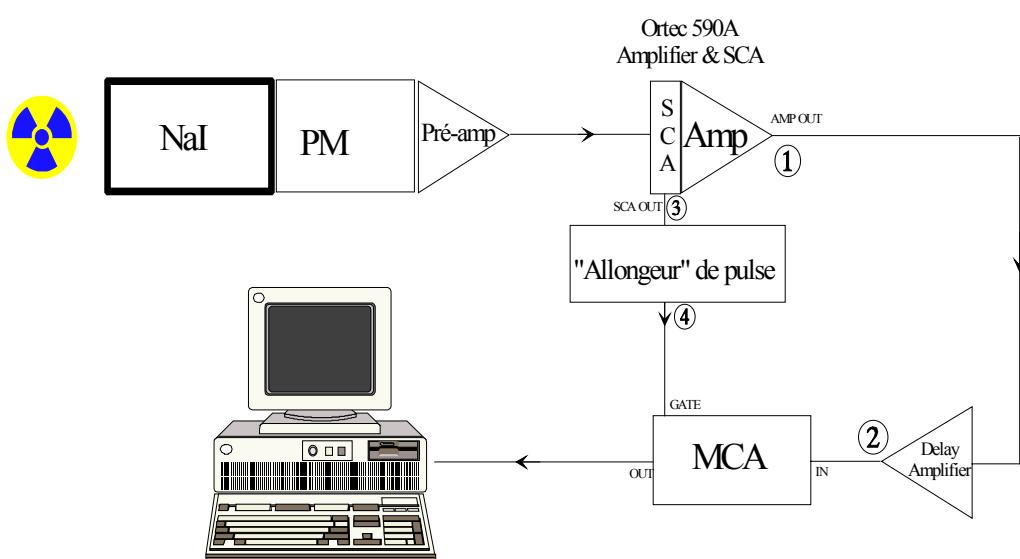


Figure 26. Réglages du SCA : bon système

Les signaux aux points ① et ② et les pulses TTL en ③ et ④ sont détaillés dans le diagramme chronologique suivant.

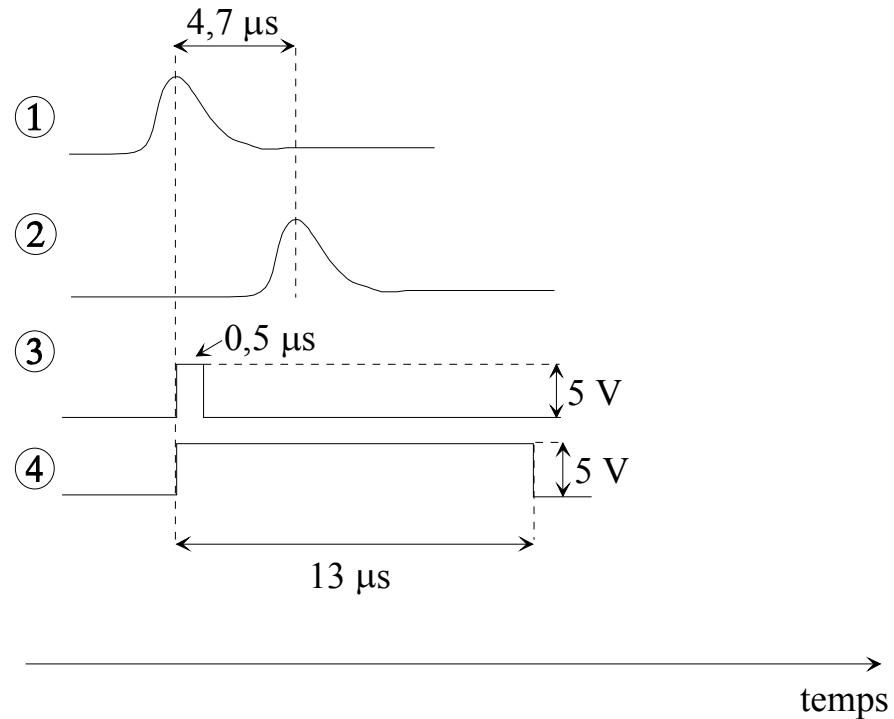


Figure 27. Chronologie des signaux

4.4.2 Compteur externe

Comme montré sur la figure 22, les pulses de sortie du SCA ne sont pas comptés directement par le micro-contrôleur. Celui-ci n'est capable de compter des pulses qu'à une fréquence maximale de 4 kHz, c.-à-d. des pulses espacés au minimum de 0,25 ms. Or malgré la faible activité de la source, la nature aléatoire de la désintégration d'un radio-isotope fait que les désintégrations ne sont pas régulières. Il est donc impossible de prédire exactement quand un photon γ sera émis et donc détecté et par conséquent, les pulses de sorties du SCA arrivent aléatoirement.

On peut néanmoins obtenir une fréquence maximale que la sortie du SCA ne dépassera jamais. En effet, les pulses TTL de sortie du SCA ont une largeur de 500 ns. La fréquence maximale à laquelle peuvent donc sortir les pulses du SCA est donc de 2 MHz.

La fréquence maximale d'acquisition du micro-contrôleur de 4 kHz ne serait-elle quand même pas suffisante ? Risque-t'on de "perdre" beaucoup de photons γ si on ne peut compter qu'à 4 kHz ?

Pour répondre à cette question, on allonge artificiellement les pulses de sortie SCA. Comme le micro-contrôleur ne peut compter plus vite que 4 kHz, cela signifie que deux pulses successifs doivent être écartés d'au moins 250 μ s. On allonge donc les pulses et on compte ceux-ci avec un compteur (HAMEG HM 8021-3) capable de fonctionner à haute fréquence (jusqu'à 1,6 GHz). La figure suivante illustre cette mesure.

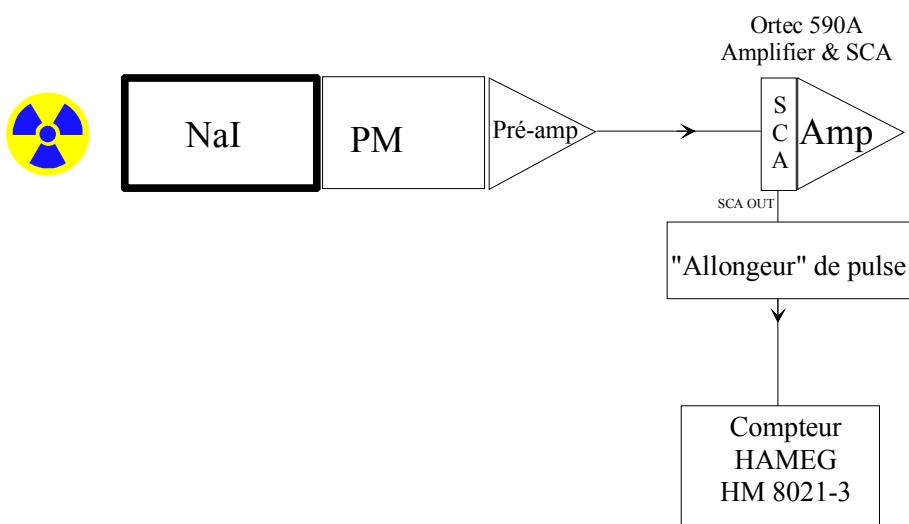


Figure 28. Allongement et comptage des pulses de sortie du SCA

Voici les résultats de cette mesure.

Largeur du pulse	Nombre de pulse comptés en 1 '
0,5 μ s	37579
6,6 μ s	22248
53 μ s	22148

On voit déjà qu'à partir de pulses de 6,6 μ s, on perd plus d'un tiers des pulses. Cela veut donc dire que même si le micro-contrôleur pouvait compter à $(6,6 \cdot 10^{-6})^{-1} = 151,5$ kHz on perdrat un tiers de pulses.

On doit donc absolument utiliser un compteur externe capable de compter à des fréquences de 2 MHz. Ce compteur est réalisé sur mesure et son schéma bloc est donné à la figure suivante.

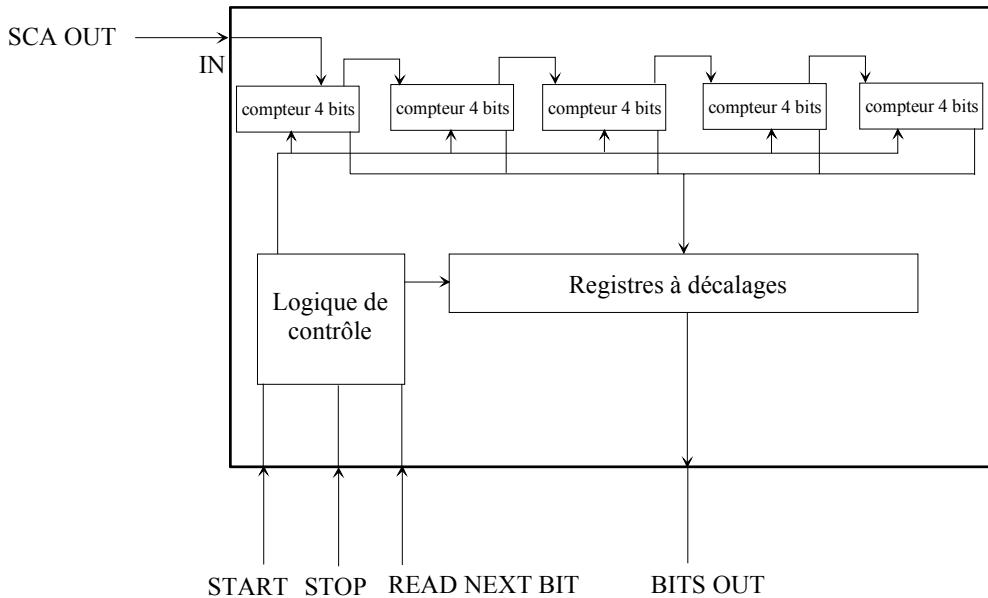


Figure 29. Schéma bloc du compteur externe

4.4.3 Mesure du paramètre x

Comme expliqué précédemment, on doit connaitre la longueur de la zone traversée par les photons γ afin de pouvoir calculer la densité à l'aide de l'équation (3). La mesure directe de ce paramètres était déjà difficile dans le cas de l'expérience détaillée au chapitre 3 (voir chapitre 3.7.1).

Dans l'expérience présentée à ce chapitre, cette mesure est encoré plus compliquée car on a remplacé le mixer par une vis sans fin (voir chapitre 4.6). La valeur du paramètre x est donc une valeur moyenne de l'intersection d'un cône (zone d'irradiation par les photons γ) et d'un cylindre (zone contenant le Slush) auquel on a retiré une zone hélicoïdale (la vis san fin dans le zone de Slush). Le calcul théorique d'une telle valeur n'étant pas immédiat, on réalisera cette mesure de manière expérimentale.

Comme expliqué au chapitre 3.7.1, on utilise l'équation (14) pour calculer la valeur de x. On utilise un liquide de densité et de composition connues (de l'acétone) pour déterminer x.

En pratique, la mesure de x est refaite avant chaque série de mesure. Cette mesure est refaite dans des conditions cryogéniques avec de l'azote liquide comme liquide connu. Cette re-calibration de x en condition cryogénique est obligatoire car la mise en fonction des dispositifs

cryogéniques (LN₂, LHe) induit des déplacements et des contractions mécaniques qui modifient la valeur moyenne de x (désalignement, déplacement...).

Comme les équations (7) et (8) le montrent, l'erreur sur la mesure de la densité fait intervenir l'erreur sur la mesure du paramètre x. Il faut donc pouvoir calculer cette dernière. Un raisonnement analogue à celui du chapitre 2.2.1 permet de déterminer l'erreur relative sur x. Elle est donnée par :

$$\frac{\frac{1}{\sqrt{I}} + \frac{1}{\sqrt{I_0}}}{\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)} \quad (15)$$

Les résultats des mesures de x sont donnés au chapitre 4.7.2.

4.4.4 Logiciel du micro-contrôleur

Pour simplifier l'utilisation du densimètre, on utilise un micro-contrôleur (voir figure 22) afin d'automatiser la mesure. Ce dernier utilise l'équation (3) pour mesurer la densité et l'équation (8) pour donner l'erreur de mesure. L'utilisateur n'a qu'à appuyer sur le bouton "Start" et tout le reste est automatique. La figure suivante montre ce système:



Figure 30. Densimètre à micro-contrôleur

Le micro-contrôleur utilisé est du type TinyTigger de Wilke Technology. Il se programme dans un langage proche du BASIC. L'algorithme général du programme est donné à la figure suivante. Le code du programme est donné à l'annexe 1.

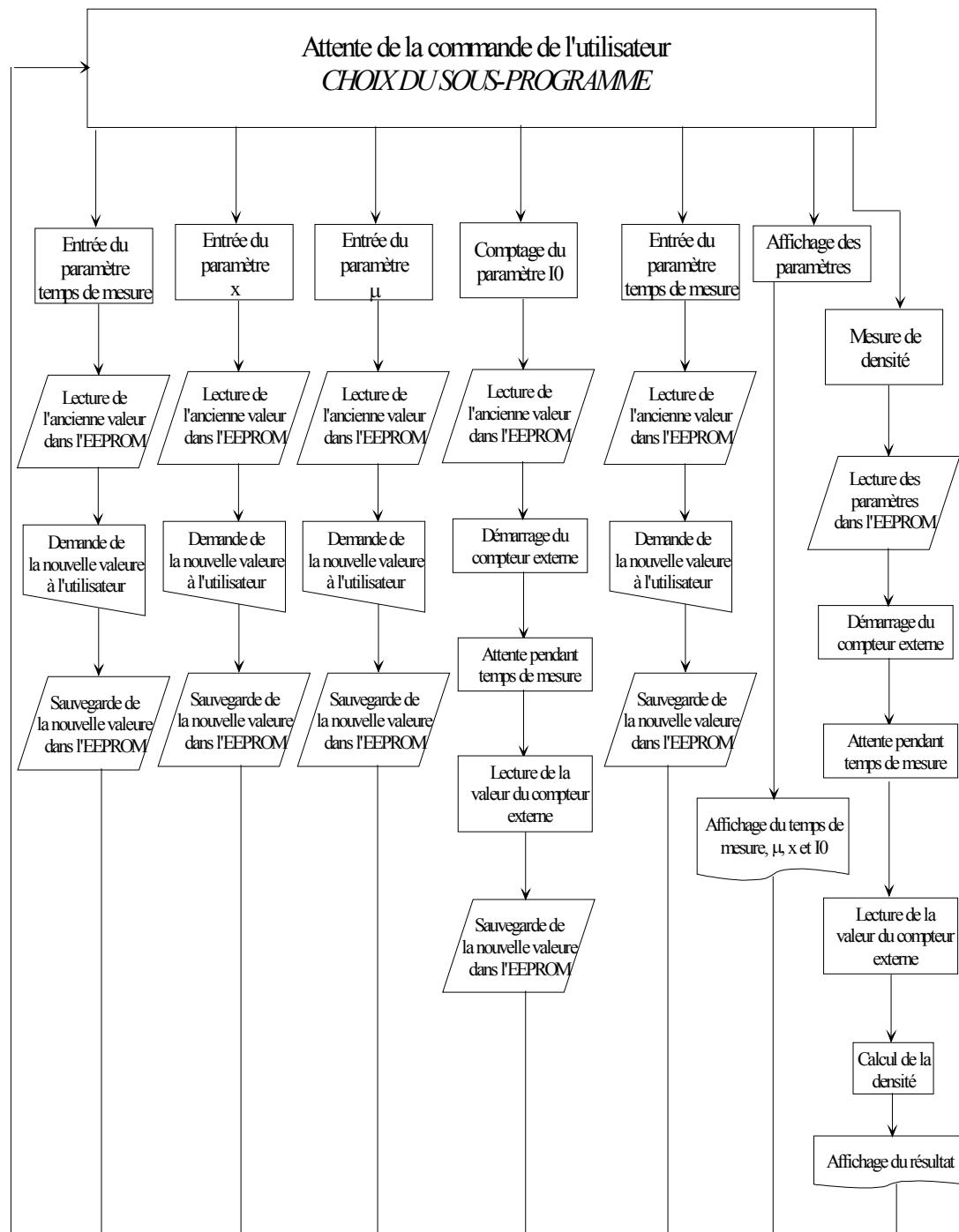


Figure 31. Algorithme du programme du micro-contrôleur

En pratique, pour des raisons de mise au point on a ajouté une fonction qui permet d'entrer la valeur de I_0 manuellement sans passer par le compteur externe.

4.5 Radioprotection: nouvelle législation

Depuis les premières mesures réalisées (voir chapitre 3), une nouvelle législation en matière de radioprotection est entrée en vigueur en Belgique (Arrêté Royal du 20 juillet 2001). Les mesures réalisées actuellement (chapitre 4.7) doivent donc respecter cette nouvelle réglementation.

Voici les principaux points de changement dans cette nouvelle législation :

- La nouvelle loi (Art. 20.1.3) fixe la limite de dose efficace pour le corps entier à 20 mSv par 12 mois consécutifs glissants, ce qui correspond (pour 220 jours de travail à raison de 8 heures par jour) à un débit de dose de 11,36 $\mu\text{Sv}/\text{heure}$. La loi précédente (Art. 20.3) autorisait une dose de 50 mSv par 12 mois consécutifs glissants, ce qui correspond à un débit de dose de 28,41 $\mu\text{Sv}/\text{heure}$.

- D'après la nouvelle loi, toute personne professionnellement exposée doit porter un dosimètre. Pour rappel, pour la nouvelle loi, une personne professionnellement exposée est une personne qui est susceptible de recevoir une dose efficace supérieure à la dose efficace admise pour le public c'est-à-dire 1 mSv.

- Les doses maximales admises pour les mains sont les mêmes pour les deux lois.

La source utilisée est une source de 5 μCi de ^{137}Cs . Notre dispositif expérimental ne permet pas de s'approcher à moins de 10 cm de la source. A cette distance, le débit de dose d'une source de 5 μCi de ^{137}Cs est de $16,2 \cdot 10^{-7}$ Gy/heure [8] ce qui correspond à une dose équivalente de $16,2 \cdot 10^{-4}$ mSv/heure. La limite maximale de 20 mSv/12 mois consécutifs glissants ne peut donc être atteinte (limite maximale pour le personnel exposé). De même, il faudrait rester plus de 617 heures à 10 cm de la source pour dépasser 1 mSv et donc devoir porter un dosimètre. Le temps passé à proximité de la source est de quelques dizaines d'heures, la dose de 1 mSv ne peut donc être atteinte et on ne doit donc pas porter de dosimètre.

De plus, la source est placée dans un conteneur en Pb, dont la seule ouverture est le collimateur. La seule façon de s'exposer au rayonnement directe de la source est donc de se placer face au collimateur. C'est mécaniquement impossible car le collimateur et la source sont fixés au dispositif cryogénique et le collimateur n'est donc pas accessible.

4.6 Dispositifs cryogéniques

L'installation cryogénique utilisée est fort semblable à celle décrite au chapitre 3.6. Il y a néanmoins deux différences importantes.

Le système de mixer utilisé pour homogénéiser le Slush est remplacé par une vis sans fin (vis d'Archimède). De plus, la rotation de ce mixer est maintenant automatisée et non plus manuelle. Cette automatisation est assurée par un moteur à 4 tours/minutes.

4.7 Mesures expérimentales

Dans ce chapitre nous présentons les résultats obtenus avec le densimètre à micro-contrôleur.

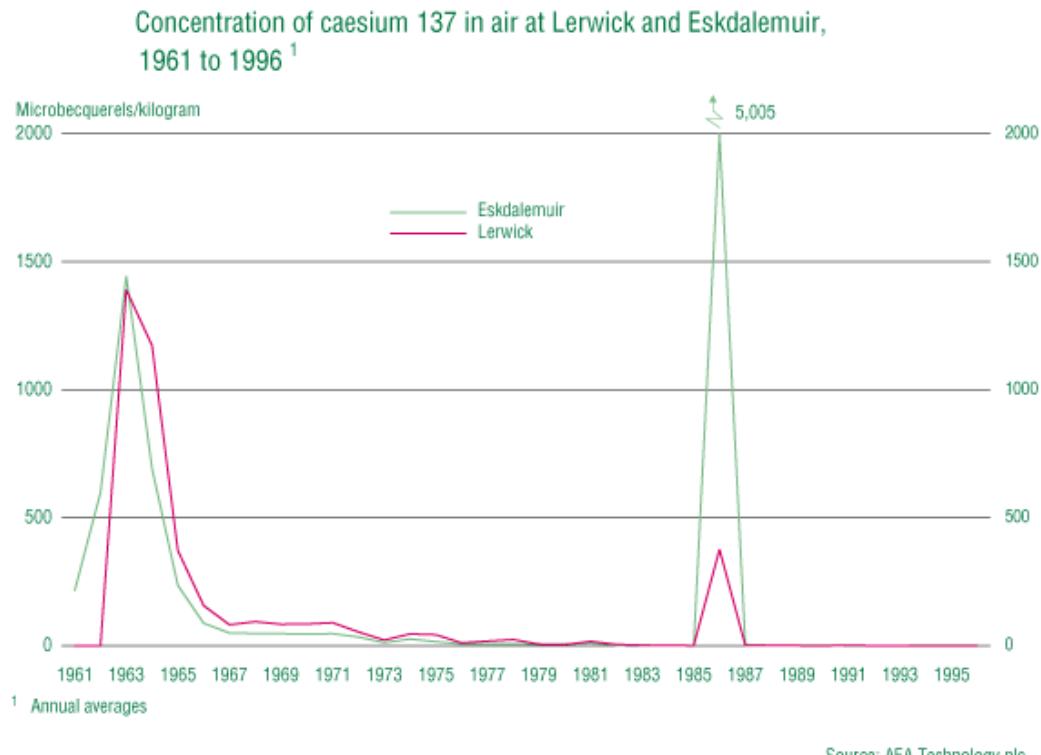
4.7.1 Rapport signal sur bruit

Le but de cette mesure est de chiffrer le bruit de fond dû au rayonnement naturel. Ce dernier provient principalement du rayonnement cosmique et des radio-isotopes naturellement présents dans l'environnement (Radon, Uranium...). Citons aussi pour mémoire deux autres sources artificielles de ^{137}Cs dans l'atmosphère.

La première: les essais nucléaires militaires atmosphériques. Bien que ces derniers soient interdits depuis de nombreuses années, ils ont apporté du ^{137}Cs dans l'atmosphère.

La deuxième: la légère contamination atmosphérique au ^{137}Cs lors de l'accident nucléaire de Tchernobyl.

Comme c'est le ^{137}Cs qui est utilisé pour nos mesures, il est plus rigoureux de citer ces deux sources artificielles de ^{137}Cs dans l'atmosphère même si leur apport au bruit de fond est sûrement négligeable. Pour information, la figure suivante donne l'évolution de l'activité du ^{137}Cs dans l'atmosphère en Ecosse [12].



Source: AEA Technology plc

Figure 32. Evolution de l'activité de ^{137}Cs dans l'atmosphère

En l'absence de source, le nombre de coups comptés dans la région d'intérêt du pic à 662 keV est de 755 coups en 300 secondes.

En présence de la source et de son collimateur, le nombre de coups comptés dans cette même région avec notre dispositif expérimental est de 16564 coups en 300 secondes. Le rapport signal sur bruit est donc de 21,91.

Ce n'est pas tant le rapport qui importe mais plutôt de retirer ce bruit de fond des mesures. Le retrait du bruit de fond n'a que peu d'influence pour les taux de comptages élevés, mais pour les faibles taux de comptages (sources de faible activité, petit angle solide du collimateur) l'impact peut être important.

4.7.2 Mesure du paramètre x

Le principe de la mesure est expliqué au chapitre 4.4.3. Nous réalisons cette mesure avec de l'acétone. On utilise de l'acétone pour éviter de laisser de l'humidité dans le dispositif. En effet, la présence d'eau résiduelle est dangereuse car lorsque les fluides cryogéniques (azote liquide, hélium gazeux froid, néon liquide) sont présents l'eau va geler et se dilater. Ce qui pourrait entraîner, dans le pire des cas, la

cassure du verre constituant le dewar. Dans ce cas, il y a un risque d'implosion car les deux dewars constituants le dispositif sont des dewars double parois avec le vide entre les deux parois. L'utilisation d'eau est donc à éviter pour ne pas abîmer le dispositif et pour la sécurité du personnel. La valeur obtenue avec l'acétone pour le paramètre x est de $1,94 \text{ cm} \pm 3,3\%$.

Le fait que l'on travaille à basse température entraîne des contractions des matériaux du dispositif. Comme ces contractions ne sont pas les mêmes pour tous les matériaux, elles peuvent entraîner des déplacements mécaniques et des désalignements de l'ensemble source - dewar - détecteur. Dans ce cas, la valeur de x ne sera plus tout à fait exacte. Pour éviter ce problème, on re-mesure x dans les conditions cryogéniques avant toute mesure de densité. Cette nouvelle mesure est faite en utilisant l'azote liquide comme fluide connu. C'est cette nouvelle valeur de x que l'on introduit comme paramètre dans le micro-contrôleur.

4.7.3 Mesures de densité

La figure suivante montre la fonte de Slush azote mesurée par le densimètre à micro-contrôleur. Ces mesures sont réalisées en utilisant un cristal NaI et son PM prêtés par l'IPNAS en remplacement de celui défectueux utilisé au CSL. Le temps de chacune des mesures est de 5 minutes. L'angle du collimateur est de 20° .

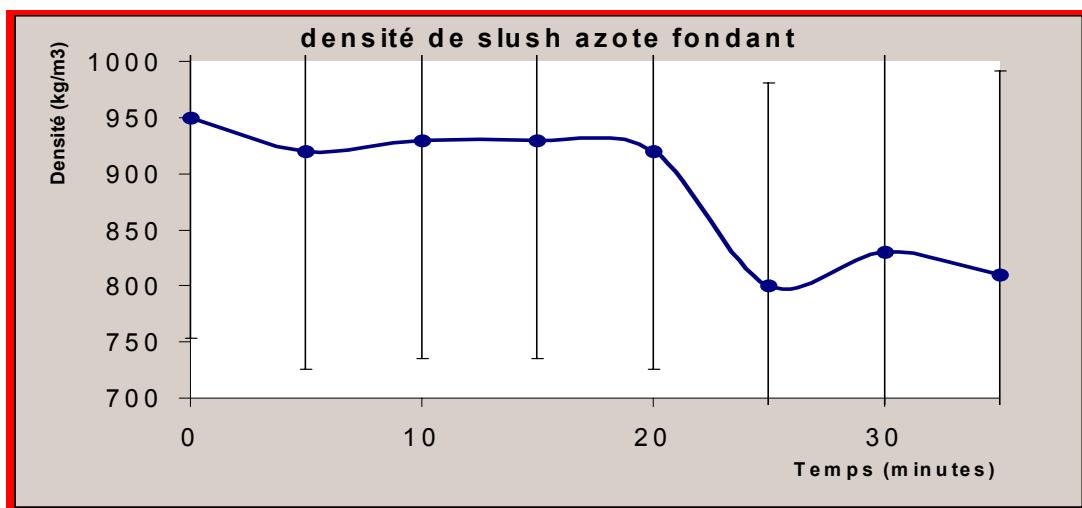


Figure 33. Densité de Slush azote fondant mesuré avec le densimètre à micro-contrôleur

On voit sur la figure que les barres d'erreurs sont importantes. Cela est dû au fait que le temps de mesure est court (car le Slush fond vite) et donc les valeurs de I et I_0 sont petites. Donc le numérateur $\frac{1}{\sqrt{I}} + \frac{1}{\sqrt{I_0}}$ des équations (7) et (8) donnant l'erreur relative est grand. Ce problème est encore accentué par le fait que l'activité de la source est faible et l'angle solide du collimateur est petit. Le flux incident I_0 est donc réduit. Par conséquent le flux sortant I est aussi réduit.

De plus, la zone de Slush traversée est petite, donc I et I_0 seront proches (car x est petit, voir équation (2)). Le dénominateur $\ln(I/I_0)$ des équations (7) et (8) sera donc petit.

Malgré la vis d'Archimède, le phénomène de stratification (voir chapitre 3.6.3) est toujours présent. La mesure de densité est donc celle du Slush en face du détecteur γ . Dès qu'il n'y a plus de Slush devant celui-ci, la mesure tombe brutalement à la valeur de l'azote liquide.

4.8 Conclusion du projet *densimètre Slush*

Ce chapitre 4 montre que la réalisation d'un densimètre automatique de mesure de Slush est possible. Les limitations d'un tel dispositif sont les mêmes que celles d'un dispositif non automatisé comme celui présenté au chapitre 3. Le calcul automatique de la densité n'apporte donc pas de problèmes supplémentaires. L'automatisation n'apporte donc qu'un confort d'utilisation. Néanmoins l'automatisation permet de se passer d'un opérateur. C'est bien dans cette optique que l'automatisation doit être vue pour une application spatiale du densimètre. En cas d'utilisation réelle de Slush dans le domaine spatial, la mesure de densité doit se faire automatiquement et en continu à divers endroit (site de production, canalisation de transfert, réservoir du lanceur, moteurs...). Il y aurait alors plusieurs densimètres qui travailleraient en continu et il ne pourrait y avoir d'opérateur pour chaque machine. L'utilisation d'un densimètre automatique pourrait alors se limiter à un dispositif qui signale, par une alarme, lorsque les valeurs de densité sont hors spécification. L'adaptation du dispositif actuel pour générer ce type d'alarme peut se faire très facilement.

5 Futurs projets

On doit essayer de diminuer les erreurs statistiques. Pour cela on réalisera des mesures plus longues sur des grandes zones de Slush. Ce type de mesure sera réalisé sur l'installation de Magna Steyr.

On pourrait aussi adapter le densimètre pour qu'il soit téléopérable. Ce type d'adaptation ne pose pas de problème particulier.

6 Conclusions générales

Ce travail montre qu'il est possible d'utiliser l'absorption de rayonnements γ pour mesurer la densité de fluides cryogéniques. L'automatisation de la mesure est possible par le biais d'un micro-contrôleur.

Il faut néanmoins rester conscient des limitations de la méthode en raison des erreurs statistiques. Ces dernières sont élevées en raison de :

- La faible activité de la source radioactive utilisée. Cette limitation vient de la législation et non de la physique.
- Le petit angle solide du collimateur. Celui-ci est limité par la taille maximale du détecteur au NaI. Cette taille est limitée par le coût des détecteurs. La limitation est donc plus économique que physique.
- La taille de la zone de Slush traversée. On ne peut espérer une bonne précision de mesure si la zone d'examen est réduite. Ce type de mesure n'est donc pas très précis pour de petits échantillons.
- Le temps de mesure. Si il est trop faible, la précision sera faible. On doit donc adapter l'activité de la source en fonction du temps de mesure maximum acceptable et de la précision demandée (voir le cas théorique d'Ariane V au chapitre 3.8)

Malgré ces inconvénients, cette méthode est dans certains cas la seule utilisable si on ne peut prélever d'échantillon (test non destructif par ex.).

Signalons aussi que le respect de la législation en matière de radioprotection peut imposer dans certains cas des blindages peu pratiques.

Terminons en mentionnant que quelles que soient les précautions prises, l'impact psychologique de l'utilisation d'une source radioactive est très important chez certains utilisateurs.

Annexe 1 : code du programme du micro-contrôleur

```

'-----
'Densimètre Slush CSL GSTP
'with external counter
'
'(c) 2002-2003 A.Carapelle for CSL
'-----

#project_model pm_full                                'program full option
#include define_a.inc
#include KEYB_PP.inc                                 'keyboard
#include ufunc3.inc
task main
LONG Count,MeasurementTime
REAL Mu,x,Ireal,Izeroreal
string NumberOfSecond$                               'LCD driver
install_device #LCD, "lcd1.tdd"
call init_keyb(1)
put #LCD,#0,#UFCO_SER_ECHO,YES
put #LCD,#0,#UFCO_RES_ISEP, 2ch, 2ch
put #LCD,#0,#UFCO_RES_ISEP, 10, 10
'*****
'*****Main program : only respond to buttons*****
'*****Main program : only respond to buttons*****
'DIR_PORT 7,0                                         'port 7 is output
'out 7,255,00000000b
DIR_PORT 8,255                                       'All 7x output to low
Old = 0                                              'port 8 is input
Value = 1                                            'preset vars
FOR sansfin=0 TO 0 STEP 0
    IN 8,Value
    IF Value <> Old THEN
        print #LCD, "<1>"                           'endless loop
        print #LCD, "CSL Densimeter"
        print #LCD, " "
        PRINT #LCD, "Waiting for command"
        Old = Value
    ENDIF
switch Value                                         'read port 8
    CASE 254:
        CALL SetTime                                'if value has changed,
                                                    'save old value
    CASE 254:
        CALL SetTime                                'choose function
                                                    'Set measurement time
button
    CASE 253:
        CALL SetMu                                  'Set abs coef button
    CASE 251:
        CALL SetX                                   'Set length button
    CASE 247:
        CALL DisplayParam                         'display parametes on LCD
    CASE 239:
        CALL CountIO                               'count IO
    CASE 223:
        CALL StartMeasure                         'Mesure density
    CASE 191:
        CALL ForceIO                               'Force IO value
ENDSWITCH

```

```
NEXT
end

' *****
' *****Sub routine SetTime***** :
' *****

SUB SetTime
Long MeasurementTime
PEEK_FLASH 0,MeasurementTime,3           'Read MeasurementTime in
Flash sector 1
print #LCD, "<1>"                      'clear LCD
print #LCD, "Measurement time"
print #LCD, "old value:";MeasurementTime;" s"
print #LCD, "New value: ";
input #LCD, MeasurementTime
print #LCD, "<1>"                      'Read flash sector size
s=sysvarn (35,1)
ERASE_FLASH 0,s                          'erase flash sector 1
for I=0 to 3                            'write in flash sector 1
POKE_FLASH 0+I,MeasurementTime,I
next
print #LCD, "Measurement time set to ";MeasurementTime;" seconds"
WAIT_DURATION 3000
end

' *****
' *****Sub routine SetMu***** :
' *****

SUB SetMu
real Mu
PEEK_FLASH 65536,Mu,8                  'Read Mu in Flash sector 2
print #LCD, "<1>"                      'clear LCD
print #LCD, "Mass. Abs. coef."
print #LCD, "old value:";Mu;" cm2/g"
print #LCD, "New value: ";
input #LCD, Mu$
Mu=VAL REAL(Mu$,",")
print #LCD, "<1>"                      'convert string to real
s=sysvarn (35,1)
ERASE_FLASH 65536,s                    'Read flash sector size
for I=0 to 7                            'erase flash sector 2
POKE_FLASH 65536+I,Mu,I
next
print #LCD, "Mass. Abs. coef. set to ";
print_using #LCD,Mu;" cm2/g"
WAIT_DURATION 3000
end

' *****
' *****Sub routine SetX***** :
' *****

SUB SetX
real x
PEEK_FLASH 131072,x,8                 'Read x in Flash sector 3
print #LCD, "<1>"                      'clear LCD
print #LCD, "Length"
print #LCD, "old value:";x;" cm"
print #LCD, "New value: ";
input #LCD, x$
```

```

x=VAL_REAL(x$,",")                                'convert string to real
print #LCD, "<1>"                               'Read flash sector size
s=sysvarn (35,1)
ERASE_FLASH 131072,s                            'erase flash sector 3
for I=0 to 7                                     'write in flash sector 3
    POKE_FLASH 131072+I,x,I
next
print #LCD, "Length set to ";x;" cm"
WAIT_DURATION 3000
end

' *****
' *****Sub routine ForceI0***** :
' *****

SUB ForceI0
Long Izero
PEEK_FLASH 196608,Izero,3                      'Read IO in Flash sector 4
print #LCD, "<1>"                               'clear LCD
print #LCD, "IO old value:";Izero;" s"
print #LCD, "Force New value to: ";
input #LCD, Izero
print #LCD, "<1>"
s=sysvarn (35,1)
ERASE_FLASH 196608,s                            'erase flash sector 4
for I=0 to 3                                     'write in flash sector 4
    POKE_FLASH 196608+I,Izero,I
next
PRINT #LCD, "<1>"                               '3 beep when finshed
print #LCD, "IO forced to ";Izero
print #LCD, "<07>"                               WAIT_DURATION 3000
end

' *****
' *****Sub routine DisplayParam***** :
' *****

SUB DisplayParam
LONG MeasurementTime,Izero
REAL Mu,x
PEEK_FLASH 0,MeasurementTime,3                  'Read MeasuremenTime in
Flash sector 1
PEEK_FLASH 65536,Mu,8                          'Read Mu in Flash sector 2
PEEK_FLASH 131072,x,8                          'Read x in Flash sector 3
PEEK_FLASH 196608,Izero,3                      'Read Izero in Flash sector
4
print #LCD, "<1>"                               'clear LCD
print #LCD, "Meas.time:";MeasurementTime;" s"
print #LCD, "Mu:";Mu;" cm2/g"
PRINT #LCD, "Press Enter"
INPUT #LCD, GoOn$
PRINT #LCD, "<1>"
print #LCD, "Length:";x;" cm"
print #LCD, "IO: ";Izero
WAIT_DURATION 3000
end

' *****
' *****Sub routine CountIO***** :

```

```

*****  

'Read from external counter  

SUB CountIO  

LONG MeasurementTime,Izero  

PEEK_FLASH 0,MeasurementTime,3           'read measurement time from  

flash memory  

print #LCD, "<1>"                      'clear LCD  

NotStopped=0                            'Stop Flag  

Izero=0                                'Izero value reset  

DIR_PIN 7,0,0                          'port 7 bit 0 is output  

DIR_PIN 7,1,0                          'port 7 bit 1 is output  

DIR_PIN 7,2,0                          'port 7 bit 2 is output  

DIR_PIN 7,3,1                          'port 7 bit 3 is input  

out 7,00000111b,00000000b            'bit 0,1,2 of port 7 to low  

out 7,00000001b,00000001b            'begin of start pulse  

(bit0)  

wait duration 10                       '10 ms wide pulse  

out 7,00000001b,00000000b            'end of start pulse (bit0)  

time=ticks()                           'get current time  

'-----start counting-----'waiting loop during  

sounting  

while NotStopped=0  

    ElapsedTime=(Ticks()-time)/1000  

    print #LCD, "...Counting IO..."  

    print #LCD, "Remaining time (s):"  

    print #LCD, MeasurementTime-ElapsedTime;" s "  

    print #LCD, ""  

    if ElapsedTime+1>MeasurementTime then  

        NotStopped=1  

    Endif  

Endwhile  

out 7,00000010b,00000010b            'begin of stop pulse  

(bit1)  

wait_duration 5                        '5 ms wide for half stop  

pulse  

out 7,00000100b,00000110b          'begin of first clock pulse  

(transfer to register) (bit2)  

wait_duration 2                        '2 ms wide clock pulse  

DURING stop pulse  

out 7,00000100b,00000010b          'end of first clock pulse  

(transfer to register) (bit2)  

wait_duration 3                        '2+3 ms wide for 2nd half  

stop pulse  

out 7,00000010b,00000000b          'end of stop pulse (bit1)  

wait_duration 10                      'wait 10 ms  

Izero=0                                'count value reset  

for k=0 to 19                         'reading loop  

    out 7,00000100b,00000100b        'begin of clock  

pulse:next bit (bit2)  

    wait_duration 10                  '10 ms wide pulse  

    out 7,00000100b,00000000b        'end of clock pulse:next  

bit (bit2)  

    IN 7,CurrentBit                 'read port 8x  

    CurrentBit=BIT (CurrentBit,3)     'take bit 3 from  

value  

    Izero=Izero+CurrentBit*exp(2, (19-k))      'building integer  

value from bits  

    wait_duration 10                  'wait 10 ms

```

```

next                                'next for next bit
Izero=Izero/2
flank
s=sysvarn (35,1)
ERASE_FLASH 196608,s               'erase flash sector 4
for I=0 to 3                        'write in flash sector 4
POKE_FLASH 196608+I,Izero,I        '      "
next
PRINT #LCD, "<1>"
print #LCD, "I0 set to ";Izero
print #LCD, "<07>"                 '3 beep when finshed
WAIT_DURATION 3000
end
*****Sub routine StartMeasure*****
*****SUB StartMeasure
LONG MeasurementTime,Izero
REAL Mu,x,IsurIzero,ro,RelErr
Long I
PEEK_FLASH 0,MeasurementTime,3
PEEK_FLASH 65536,Mu,8
PEEK_FLASH 131072,x,8
PEEK_FLASH 196608,Izero,3
print #LCD, "<1>"                  'clear LCD
time=ticks()
NotStopped=0
DIR_PIN 7,0,0                         'port 7 bit 0 is output
DIR_PIN 7,1,0                         'port 7 bit 1 is output
DIR_PIN 7,2,0                         'port 7 bit 2 is output
DIR_PIN 7,3,1                         'port 7 bit 3 is input
out 7,000000111b,00000000b          'bit 0,1,2 of port 7 to low
out 7,00000001b,00000001b           'begin of start pulse
(bit0)
wait_duration 10                      '10 ms wide pulse
out 7,00000001b,00000000b           'end of start pulse (bit0)
time=ticks()
'-----start counting-----'waiting loop during
sounting
while NotStopped=0
    ElapsedTime=(Ticks()-time)/1000
    print #LCD, "*Measuring density*"
    print #LCD, "Remaining time (s):"
    print #LCD, MeasurementTime-ElapsedTime;" s "
    print #LCD, " "
    if ElapsedTime+1>MeasurementTime then
        NotStopped=1
    Endif
Endwhile
out 7,00000010b,00000010b          'begin of stop pulse
(bit1)
wait_duration 5                       '5 ms wide for half stop
pulse
out 7,00000100b,00000110b          'begin of first clock pulse
(transfer to register) (bit2)
wait_duration 2                       '2 ms wide clock pulse
DURING stop pulse

```

```

out 7,00000100b,00000010b           'end of first clock pulse
(transfer to register)  (bit2)
wait_duration 3                      '2+3 ms wide for 2nd half
stop pulse
out 7,00000010b,00000000b          'end of stop pulse  (bit1)
wait_duration 10                     'wait 10 ms
I=0                                  'count value reset
for J=0 to 19
    out 7,00000100b,00000100b       'reading loop
pulse:next bit (bit2)
    wait_duration 10                'begin of clock
    out 7,00000100b,00000000b      '10 ms wide pulse
bit   (bit2)
    IN 7,CurrentBit               'read port 8x
    CurrentBit=BIT (CurrentBit,3)  'take bit 3 from
value
    I=I+CurrentBit*exp(2, (19-J)) 'building integer
value from bits
    wait_duration 10              'wait 10 ms
next
I=I/2                                'next for next bit
flank
s=sysvarn (35,1)
PRINT #LCD, "<1>"
Ireal=I
Izeroreal=Izero
IsurIzero=Ireal/Izeroreal
ro=(-1/(Mu*x))*ln(IsurIzero)
RelErr= 1/sqrt(Ireal)
RelErr=RelErr+ 1/sqrt(Izeroreal)
RelErr=RelErr/ln(IsurIzero)
RelErr=(-100)*RelErr
print #LCD, "<1Bh>A"; CHR$(0); chr$(0); "<F0h>";
print #LCD, "Density=";
using "NF<3><1> <2> 0 0 0 0 0 0 4,4 0 0 0 0 0 0"  'formatting
result
print_using #LCD, ro;
print #LCD, "<1Bh>A"; CHR$(15); chr$(0); "<F0h>";
print #LCD, "g/cm3";
print #LCD, "<1Bh>A"; CHR$(0); chr$(2); "<F0h>";
print #LCD, "Error=+/- ";
using "NF<2><1> <2> 0 0 0 0 0 0 4,4 0 0 0 0 0 0"  'formatting
result
print_using #LCD, RelErr;" %"
print #LCD, "      Press enter"
print #LCD, "<07>"                  '3 beep when
finshed
input #LCD, GoOn$

end

```

Bibliographie

- [1] SDP FESTIP phase 1 Heat Management final presentation, ESA April 1997
- [2] H.Stöcker, F.Jundt et G.Guillaume, Toute la physique, Dunod (1999)
- [3] R.Eisberg et R.Resnick, Quantum physics of atoms, molecules, solids, nuclei, and particles Second Edition, John Wiley & Sons (1985)
- [4] Coefficients d'absorption massique sur le site web du NIST :<http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/cover.html>
- [5] M.J. Berger and J.H. Hubbell , NBSIR 87-3597, XCOM: Photon Cross Sections on a Personal Computer, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD 20899, USA (1987).
Adresse du site web :
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/XCOM.html>
- [6] P.-D. Dumont, Notes de TP de complément de physique nucléaire de 2ème licence, (1995-96)
- [7] P.-H. Lefèvre, M. Clar, et H.-P. Garnir,*Design of a networked multichannel analyzer (nMCA)*, Proceedings of the 7th International Conference on Accelerator and Large Experimental Physics Control Systems,
Ed. D. Bulfone et A. Daneels (Trieste, Italy, 1999), pp. 567 - 569
Adresse du site web :
<http://www.ulg.ac.be/ipne/nMCA/>
- [8] A.Smons, Fiches de radiprotection, SUCPR Ulg (2002)
- [9] A.Smons, cours de radioprotection (1995)
- [10] J.J. Singh, C-P. Shen and D.R. Sprinkle. Feasibility Study of a Low-Energy Gamma Ray System for Measuring Quantity and Flow Rate of Slush Hydrogen , *NASA Technical Paper 3150, April 1992*
- [11] http://www.esa.int/export/esaLA/ASEZXQI4HNC_launchers_0.html

[12] Statistiques de ministère écossais de l'environement :
<http://www.scotland.gov.uk/library/stat-ses/sesc7-4.htm>