

N° D'ORDRE : 2006EVRY0017

UNIVERSITE D'EVRY VAL D'ESSONNE
ECOLE DOCTORALE SITEVRY

THESE

Présentée pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES
SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE NUCLÉAIRE

Par

Walid DRIDI

Mesure de la section efficace de capture neutronique de l' ^{234}U à
n_TOF au CERN pour les réacteurs nucléaires de
Génération IV

Soutenue le 17 novembre 2006 devant la commission d'examen :

Dr. Bernard BERTHIER	Directeur de Thèse
Dr. Eric BERTHOUMIEUX	Responsable CEA
Pr. Roger BRISSOT	Rapporteur
Dr. Enrique GONZÁLEZ ROMERO	Examineur
Pr. Paul REUSS	Examineur
Dr. Peter SCHILBEECKX	Rapporteur

Remerciements

Trois années de thèse, c'est court mais suffisamment long pour qu'un grand nombre de personnes soit remercié pour leur aide et leur soutien durant l'élaboration de ce travail.

Je voudrais tout d'abord remercier Nicolas Alamanos ainsi que Françoise Auger de m'avoir accueilli au sein du Service de Physique Nucléaire (SPhN) du CEA de Saclay et qui m'ont permis d'achever la thèse dans les bonnes conditions. Je tiens à remercier l'ensemble des membres du jury qui par leur gentillesse et leurs remarques ont rendu la soutenance de thèse si conviviale. Je remercie Paul Reuss d'avoir présidé ce jury, Roger Brissot et Peter Schillebeeckx d'avoir accepté la rude tâche de rapporteur et Enrique González Romero d'y avoir participé.

Je voudrais exprimer ma gratitude envers mon directeur de thèse, Bernard Berthier, que malgré ses responsabilités a toujours gardé sa porte ouverte, et un temps précieux pour discuter. Par ses remarques pertinentes, son soutien constant, il a grandement contribué au bon déroulement de cette thèse, sans compter les multiples signatures administratives.

Cette étude n'aurait pu aboutir sans l'aide précieuse d'Eric Berthoumieux mon responsable CEA. Je te remercie chaleureusement de m'avoir guidé quotidiennement tout au long de thèse. T'as su m'encadrer avec beaucoup d'attention. Les nombreuses discussions que nous avons pu avoir sur les divers aspects expérimentaux m'ont permis de prendre conscience des multiples difficultés inhérentes à nos mesures. Tes grandes compétences dans tous les domaines de la physique expérimentale et ta grande honnêteté resteront pour moi une référence. Ta disponibilité et ta gentillesse ont rendu ces trois années de thèse plus que sereines et agréables.

Je ne peux qu'exprimer ma gratitude à Frank Gunsing qui a toujours patiemment répondu aux nombreuses questions que je lui soumettais durant les trois années. Nos multiples échanges sur la réduction des données, l'analyse et la simulation avec MCNP ont été particulièrement fructueux. Ce travail lui doit beaucoup ! A ne pas oublier ses contrôles techniques de temps en temps.

Je voudrais exprimer ma reconnaissance à Samuel Andriamonje pour son soutien, pour sa très grande disponibilité aux bons moments et pour leur lecture attentive du manuscrit qui a sans aucun doute amélioré la qualité de celui-ci. Je remercie chaleureusement Gaëlle Aerts, Alessandro Borella, Christos Lampoudis, Julien Pancin et Luc Perrot pour leur sympathie et pour leur soutien surtout dans les moments difficiles.

Je tiens particulièrement à remercier Gaëlle qui m'a aidé bien souvent ainsi que ses encouragements.

Je tiens également à remercier les personnes avec qui j'ai travaillé, au sein de la collaboration n_TOF, notamment Franz Käppeler, Alberto Mengoni, Nicola Colonna, Paolo Cennini, Claude Stephan, Laurent Tassan-Got, Jose Luis Tain, Cesar Domingo-Pardo, Daniel Cano-Ott et Carlos Paradela, Carlos Guerrero pour leur accueil et leur bienveillance.

Enfin comment ne pas remercier le reste du groupe neutronique ou MNM! Je pense bien sûr à Danas, Diane, Emmeric, Sophie, Alain, ainsi qu'aux nouveaux Docteurs Marie-Laure et Sébastien C., Post-docs Sébastien B. pour ses encouragements. Enfin une pensée aux thésards du groupe Olivier et Véra, un grand merci pour votre compagnie à l'école d'été à Karlsruhe qui l'a rendu très agréable. Je remercie particulièrement Olivier pour les discussions incontournables sur les divers sujets d'actualités. Je vous souhaite tous les deux bonne continuation dans vos thèses.

Mais qu'elle aurait été l'ambiance dans le couloir et autour de table dans la cantine 3 sans le groupe "gamma" ? Merci pour leur bonne humeur quotidienne Je cite Wolfram, Christophe, Andreas, Emmanuel, Cedric, Alexandre, Audrey, Alexander, Joa et enfin Magda.

Je ne manquerai de rappeler la constante sympathie que j'ai toujours trouvée auprès du personnel du SPhN et spécialement mon tuteur Jean-Eric Ducret, Valérie Lapoux "la défenseur de l'équipe SPhN", Jean-Christophe David, Pierre-François Honoré, Gilles Tricoche. Danielle, Isabelle, vous êtes la patience et la gentillesse même. Que seraient les thésards sans vous pour les guider à travers les procédures administratives de CEA.

Je remercie aussi toute la promo 2001 et 2002 de CNSTN et le directeur du centre Adel Trabelsi pour ses encouragements et ses conseils. Merci bien évidemment à mes meilleures amis, Tarek, Faïçal, Akrem et Hassen, qui ont toujours su m'encourager dans les moments difficiles.

Merci aussi à tous les membres de l'assoc MAIOT surtout Eric, Mathilde, Matias, Celine et Nico pour les bons moments que nous avons partagé que ce soit dans les réunions et aux activités de l'assoc.

Enfin, je remercie du fond du cœur mes parents, mes frères et mes sœurs qui m'ont soutenu et encouragé durant toute ces années et qui m'ont permis d'aller aussi loin dans mes études ainsi que ma femme Sana pour son aide précieuse et pour avoir répondu présent quand j'en avais besoin, et de m'avoir remonté le moral dans les moments de doute et de stress.

Merci à tous ceux que j'oublie et qui, au détour d'un couloir, d'une salle d'expérience, d'une conférence, d'une sortie pour footing, d'un match de foot m'ont encouragé et soutenu.

à mes parents et Sana.

Table des matières

Table des matières	i
Introduction	1
I Contexte de l'étude	5
I.1 Contexte énergétique général	5
I.2 L'énergie nucléaire actuelle	8
I.3 Solutions en cours d'études	10
I.3.1 Systèmes pilotés par accélérateur pour la transmutation des déchets	11
I.3.2 Le cycle thorium	13
I.4 Les données nucléaires pour les cycles de futurs	16
I.4.1 État de l'art	16
I.4.2 Les désaccords entre les bases de données	18
I.4.3 Les données nucléaires pour le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	18
I.5 L'uranium-234	18
I.5.1 Présentation	18
I.5.1.1 Historique	18
I.5.1.2 Voie de production	19
I.5.2 Etat actuel de la section efficace de capture neutronique de ^{234}U	20
II Théorie de la section efficace neutronique	21
II.1 Notion de section efficace	21
II.1.1 Section efficace macroscopique	21
II.1.2 Section efficace microscopique	22
II.2 Les propriétés du neutron	22
II.3 Réactions nucléaires induites par les neutrons	23
II.3.1 Processus de l'interaction neutron-noyau	23
II.3.2 Mode de décroissance du noyau composé	24
II.3.3 Sections efficaces partielles	25
II.3.4 Variation de la section efficace : cas de l'uranium-234	27
II.4 Formalisme de la matrice-R	28
II.4.1 Introduction	28
II.4.2 Description	29

II.4.3	Hypothèses de la théorie	30
II.4.4	Représentation des voies	31
II.4.4.1	Définitions	31
II.4.4.2	Rayon a_c	32
II.4.5	Les expressions exactes de la matrice-R	32
II.4.6	Relation entre matrice de collision et matrice-R	34
II.4.7	Quelques approximations	35
II.4.7.1	Formalisme de Breit et Wigner simple niveau	36
II.4.7.2	Formalisme de Breit et Wigner multi-niveaux	37
II.4.7.3	Formalisme de Reich-Moore	38
II.5	Étude statistique des niveaux	39
II.5.1	Espacement moyen	40
II.5.2	Distribution des espacements de niveau de Wigner	41
II.5.3	Distribution des largeurs neutroniques réduites de Porter et Thomas	42
II.5.3.1	Largeurs neutroniques réduites	43
II.5.3.2	Largeurs radiatives	43
II.6	Conclusion	44
III	L'installation n_TOF du CERN	45
III.1	Le démarrage de projet n_TOF	46
III.2	Le faisceau de protons	47
III.3	Cible de spallation	47
III.3.1	La cible de plomb	47
III.3.2	Interface entre modérateur et tube à vide	49
III.4	Processus de modération	49
III.5	Systèmes optiques de neutrons	50
III.5.1	Système de collimation	50
III.5.2	Les éléments de blindage	52
III.6	L'aire expérimentale	54
III.7	Ligne d'échappement des neutrons	54
III.8	Techniques expérimentales	54
III.8.1	Les moniteurs de faisceau de neutrons	54
III.8.2	Détection des rayons γ	55
III.8.3	Fission	55
III.9	Performances du dispositif	56
III.9.1	Méthode du temps de vol	56
III.9.2	Résolution en énergie de neutrons	57
III.9.3	Flux de neutrons	59
III.10	Comparaison avec les autres installations dans le monde	59

IV Dispositif expérimental	63
IV.1 Introduction	63
IV.2 Les grandes familles de détecteurs	63
IV.3 Les détecteurs à scintillation	65
IV.3.1 Principe de fonctionnement	65
IV.3.2 Caractéristiques	66
IV.3.3 Les différents scintillateurs	67
IV.3.3.1 Les scintillateurs inorganiques	67
IV.3.3.2 Les scintillateurs organiques	68
IV.3.4 Photomultiplicateur	68
IV.4 Mesure de capture neutronique	70
IV.4.1 Principe de la mesure	70
IV.4.2 Taux de capture	70
IV.5 Méthodes de détection des réactions de capture	71
IV.5.1 Détection à énergie totale	71
IV.5.2 Détection à absorption totale	72
IV.6 Le calorimètre à absorption totale de n_TOF	73
IV.6.1 La structure	74
IV.6.1.1 L'armature	74
IV.6.1.2 Sphère en nids d'abeilles	75
IV.6.2 Les modules de détecteur	75
IV.6.2.1 La forme des cristaux	75
IV.6.2.2 Conception mécanique	76
IV.6.2.3 Les constituants de chaque module	78
IV.6.2.4 Assemblage des modules	78
IV.6.3 Le pont diviseur de tension	81
IV.6.4 L'absorbeur de neutrons	83
IV.7 Système d'acquisition	85
IV.8 Analyse de forme des signaux	88
IV.9 Les échantillons	90
IV.9.1 Sources d'étalonnage	90
IV.9.2 Les échantillons pour les mesures de capture	91
IV.9.2.1 Les échantillons pour les mesures de capture	91
IV.9.2.2 Les échantillons pour les mesures de référence et de bruit de fond	93
IV.10 Les expériences de capture	93
V Caractéristiques du TAC	95
V.1 Introduction	95
V.2 Reconstruction des événements	95
V.3 Les performances expérimentales du TAC	95
V.3.1 Discrimination α - γ	95

V.3.2	L'étalonnage en énergie	97
V.3.2.1	Problème de saturation	97
V.3.2.2	Méthodologie	98
V.3.2.3	Linéarité	98
V.3.2.4	La dépendance à la fréquence d'échantillonnage	100
V.3.3	Contrôle de la dérive en énergie	101
V.3.3.1	Anomalie des détecteurs 1 et 6	103
V.3.3.2	Correction de la dérive en énergie	103
V.3.4	La fenêtre de coïncidence et ajustement de la fréquence d'échantillonnage	104
V.3.4.1	Méthodologie	104
V.3.4.2	Ajustement de la fréquence d'échantillonnage	105
V.3.4.3	La fenêtre de coïncidence	105
V.3.5	La résolution en énergie	106
V.3.5.1	Définition	106
V.3.5.2	La résolution en énergie	107
V.3.6	Efficacité aux sources multigammas	108
V.3.6.1	Méthode d'extraction	108
V.3.6.2	Résultats	110
V.4	Efficacité de détection pour les résonances isolées	110
V.4.1	Méthode de soustraction de bruit de fond	110
V.4.2	Efficacité de détection pour les résonances isolées pour ^{197}Au	111
V.4.3	Efficacité de détection pour les résonances isolées pour ^{234}U	112
V.5	Réponse du TAC en fonction du taux de comptage	113
V.6	Sensibilité aux neutrons	113
V.7	Conclusion	115
VI	Simulations Monte-Carlo du TAC	117
VI.1	Introduction	117
VI.2	Pourquoi la simulation ?	117
VI.3	Le code GEANT4 en quelques mots	118
VI.4	Modélisation de la géométrie du TAC	118
VI.5	Caractéristiques adoptées dans la simulation	119
VI.6	Etudes préliminaires	120
VI.7	Modélisation des sources radioactives	122
VI.7.0.1	Cas du ^{60}Co	123
VI.7.1	Cas du ^{24}Na	124
VI.7.2	Cas du ^{88}Y	125
VI.8	Détermination du rayon interne du TAC	125
VI.9	Ajustement de la densité de l'absorbeur de neutrons	128
VI.10	Génération des cascades γ issus de la capture neutronique	129
VI.10.1	Principe	129
VI.10.2	Fonctions de densités de niveaux	131

VI.10.3	Étape préliminaire	133
VI.10.4	Reproduction de la réponse du TAC à ^{197}Au	134
VI.10.5	Reproduction de la réponse du TAC à ^{234}U	137
VI.11	Efficacité de détection simulée	141
VI.12	Conclusion	141
VII	Réduction des données et résultats	143
VII.1	Réduction des données	144
VII.1.1	Relation temps-énergie du faisceau de neutrons	144
VII.1.1.1	L'étalonnage temps-énergie	144
VII.1.1.2	La référence γ -flash	145
VII.1.2	Choix du critère de sélection des événements	145
VII.1.3	Correction de temps mort	146
VII.1.4	Correction de l'empilement	149
VII.1.5	Détermination du bruit de fond	150
VII.1.5.1	Origine du bruit de fond	150
VII.1.5.2	Extraction du bruit de fond	152
VII.1.6	Efficacité de détection	153
VII.1.7	Flux de neutrons	154
VII.2	Analyse dans la région des résonances	156
VII.2.1	Effets expérimentaux	156
VII.2.1.1	Effets de l'épaisseur de l'échantillon	156
VII.2.1.2	Effet Doppler	157
VII.2.1.3	La fonction de résolution	157
VII.2.2	Le code d'analyse en Matrice-R SAMMY	158
VII.2.2.1	La fonction de résolution RPI de n_TOF dans SAMMY	159
VII.2.3	Protocole d'analyse	160
VII.2.3.1	Normalisation	160
VII.2.3.2	Bruit de fond constant déterminé par SAMMY	161
VII.2.3.3	Procédé d'ajustement	161
VII.3	Résultats pour les résonances	161
VII.3.1	Conclusion	165
VII.4	Analyse statistique	165
VII.4.1	Largeur radiative moyenne	165
VII.4.2	Kernel radiatif	166
VII.4.3	Distribution des largeurs neutronique réduites	167
VII.4.4	Espacement moyen	168
VII.4.5	Distribution des espacements	169
VII.4.6	Fonction densité d'onde s	169
VII.5	Détermination de l'incertitude sur les paramètres de résonance	170
VII.5.1	Incertainitude sur la distance de vol	170
VII.5.2	Incertainitude sur la largeur radiative moyenne	171

VII.5.3	Incertitude sur la résolution	171
VII.5.4	Incertitude sur le flux de neutrons	171
VII.5.5	Incertitude provenant du niveau du bruit de fond	172
VII.5.6	Incertitude sur l'épaisseur de l'échantillon	172
VII.6	Comparaison des résultats	172
Conclusion et perspectives		177
Annexes		182
A Les calibrations du Calorimètre		183
B Utilisation du code Monte-Carlo MCNP		187
B.1	Le code de simulation MCNP	187
B.2	L'ensemble du dispositif expérimental modélisé dans le code MCNP . .	187
C Les matériaux constituant le TAC		191
D Paramètres de résonances du ^{234}U		193
Bibliographie		207
Liste des figures		215
Liste des tableaux		218

Introduction

Dans un contexte global de crise énergétique latente et de prise de conscience de l'amorce d'un changement climatique lié à la consommation de combustibles fossiles, l'énergie nucléaire apparaît de nouveau comme une source d'électricité compétitive. Pour convaincre de son opportunité, le nucléaire du futur devra s'inscrire dans une démarche de développement durable. C'est-à-dire qu'il devra utiliser au mieux les ressources en minerai et gérer sa production de déchets. Contrairement aux réacteurs actuels, qui consomment essentiellement l' ^{235}U présent à 0,7% dans l'uranium naturel, les réacteurs de futur devront régénérer leur isotope fissile. Il faudra pour cela utiliser des réacteurs à spectre rapide si l'on continue à utiliser le cycle uranium, ou utiliser le cycle thorium. Dans les deux cas, ces réacteurs utiliseront de nouveaux combustibles, et probablement des spectres de neutrons différents de ceux des réacteurs à eau sous pression (REP) qui constituent l'essentiel du parc mondial des réacteurs depuis des décennies.

Les grands pays du nucléaire ont mené une étude prospective des concepts dont le potentiel correspond aux objectifs de développement à long terme du nucléaire : c'est le forum « Génération IV ». Ce groupe d'experts internationaux a sélectionné six concepts particuliers qui pourraient devenir les réacteurs de quatrième génération.

En France, les recherches sur ces réacteurs innovants sont aussi stimulées par la loi du 30 décembre 1991 relative à la gestion des déchets nucléaires. Cette loi définit 3 axes de recherche et donne un délai de 15 ans aux chercheurs pour avancer sur ces voies privilégiées. Ce délai a été prolongé jusqu'en 2015.

Dans ce cadre, les acteurs de la recherche et l'industrie concernés (AREVA, CEA, CNRS, EdF, Université) participent au groupement de recherche Gestion des Déchets et Production d'Énergie par les Options Nouvelles (GEDEPEON). Ce groupement, comme son nom l'indique, a deux volets, le premier concernant l'étude de solutions pour la gestion des déchets et le deuxième s'occupant de la recherche pour la production d'énergie nucléaire durable.

Parmi les études pour les réacteurs du futur, un programme de recherche se concentre sur l'utilisation du cycle thorium. Le principal avantage de ce cycle, comparé à celui de l'uranium, est la minimisation de la production d'actinides mineurs, dont l'impact radiologique à long terme est le problème majeur du secteur électronucléaire. Afin d'avoir des calculs plus réalistes pour ce type de filière, une amélioration de la précision des

bases de données nucléaires est indispensable.

Les données nucléaires, en déterminant les sections efficaces des corps présents dans le cœur, sont un point essentiel dans la conception de ces futurs réacteurs. Pour de nombreux noyaux, les sections efficaces sont connues avec une précision assez faible. Dans le cas de ^{234}U , cette précision est estimée à environ 20%, ce qui est suffisant pour des études préliminaires mais peut avoir un impact non négligeable dans la phase de conception des réacteurs.

Dans le cadre d'une collaboration internationale, réunissant de nombreux laboratoires et une centaine de physiciens, une nouvelle série de mesures a été effectuée auprès de l'installation n_TOF au CERN en utilisant la méthode de temps de vol neutronique.

La section efficace de capture neutronique de ^{234}U a été mesurée en 2004 à n_TOF avec une précision élevée due à une combinaison de dispositifs uniques dans le monde :

- un haut flux instantané de neutrons,
- une bonne résolution en énergie des neutrons,
- un détecteur à absorption totale 4π de BaF_2 .

Ce manuscrit présente les résultats de cette expérience. Il est divisé en sept chapitres, quelques détails complémentaires et les paramètres de résonances sont présentés en annexe. Certains chapitres, notamment en ce qui concernent le calorimètre ont été particulièrement développés afin de donner le maximum d'informations sur ce dernier puisqu'il est utilisé pour la première fois à n_TOF.

Avant d'exposer notre travail, nous exposerons le cadre dans lequel il s'inscrit. Ceci fera l'objet du premier chapitre, qui présentera la problématique générale sur l'aval du cycle et la production d'énergie nucléaire, présente et future, sans oublier les éventuelles solutions envisagées dans l'optique d'un nucléaire durable. Nous verrons que le cycle thorium bénéficie de gros efforts scientifiques et que plusieurs concepts technologiques sont à l'heure actuelle à l'étude.

Le chapitre 2 décrit le processus des réactions nucléaires induites par neutrons ainsi que la théorie de matrice-R et quelques formalismes utilisées pour obtenir les paramètres de résonances. Les propriétés statistiques de ces paramètres seront également traitées avec les différentes relations permettant de remonter aux paramètres moyens.

Le chapitre 3 est consacré à la description de l'installation n_TOF du CERN et des techniques expérimentales. Les performances de l'installation seront introduites.

Une explication de principe de mesure de capture est faite dans le quatrième chapitre. De plus le calorimètre d'absorption totale sera décrit ainsi que le système d'acquisition et les mesures effectuées.

Le cinquième chapitre explicite les caractéristiques expérimentales du calorimètre en décrivant les étapes suivies pour cette fin.

Le chapitre 6 présente un travail détaillé de simulation dont l'objet, en premier lieu, est de déterminer l'efficacité de détection du calorimètre. Après avoir effectué des études préliminaires et d'ajustements, nous avons intégré un générateur de cascades γ issues de la capture neutronique dans notre modélisation, afin d'aboutir à notre objectif.

Dans le dernier chapitre nous donnerons les différentes étapes de la réduction des

données qui consiste à corriger de divers effets expérimentaux dont l'effet de temps mort déduit de la simulation Monte Carlo ainsi que la soustraction du bruit de fond. Enfin, dans la dernière partie de ce chapitre, nous présenterons les résultats de l'analyse comme les paramètres de résonances ajustées à partir du code SAMMY pour les énergies entre 0,03 eV et 1,5 keV. Leurs propriétés statistiques seront également déterminées.

Chapitre I

Contexte de l'étude

Dans ce premier chapitre, nous allons présenter les questions que pose le contexte énergétique actuel. Ces questions sont liées d'une part aux conséquences de la production énergétique sur l'environnement et d'autre part à la quantité de ressources aujourd'hui utilisables. Elles lient énergie, environnement et développement. C'est dans ce contexte que s'inscrit le travail que nous avons effectué et qui sera présenté dans les chapitres suivants.

I.1 Contexte énergétique général

L'énergie est au cœur des débats publics : hausses erratiques du prix des carburants fossiles, inquiétudes face à la pollution atmosphérique et aux rejets de gaz à effet de serre, réticences de la population vis-à-vis de l'industrie électronucléaire, interrogations sur les limitations pour le développement des énergies renouvelables. À cela s'ajoute l'annonce, par des géologues, d'une pénurie probable de pétrole d'ici une cinquantaine d'années due à la consommation des pays développés et à la croissance des besoins en énergie de pays très peuplés comme la Chine et l'Inde.

Le tableau I.1 illustre les différentes contributions à la production mondiale d'énergie primaire (énergie produite avant toute transformation, en électricité par exemple). Ce dernier compare la situation actuelle à celle de 1973, date du premier choc pétrolier. Une première constatation générale est que la production d'énergie a augmenté de 75% en 30 ans. 80% de la production totale d'énergie reste couverte par les combustibles fossiles (charbon, pétrole et gaz). La part des sources dites traditionnelles, basées sur l'exploitation de la biomasse (ensemble de la matière végétale, le bois essentiellement), est restée constante. Les autres sources, plus récentes, totalisent à peine 10% de la production totale. La part de l'hydraulique a peu augmenté. Les énergies nucléaire et renouvelables (géothermie, solaire et éolien) ont progressé, même si leur production reste faible. Outre la concurrence des énergies fossiles bon marché, les principaux obstacles à un développement plus important de ces sources d'avenir sont : pour le nucléaire, l'opinion publique, les déchets et la sécurité, et pour les énergies renouvelables des coûts

de revient encore peu compétitifs. Elles présentent néanmoins une complémentarité intéressante dans la mesure où le nucléaire peut assurer l'approvisionnement massif de villes tandis que les énergies renouvelables permettent une production répartie sur des régions peu peuplées, encouragée par le recours possible à l'hydrogène comme vecteur d'énergie sur de grandes distances.

TAB. I.1 – Evolution de la production annuelle des énergies primaires en Gtep (10^9 tonnes équivalent pétrole) et en pourcentage [1].

Source d'énergie \ Unité	1973		2003	
	Gtep	%	Gtep	%
Pétrole	2,715	45,0	3,639	34,4
Charbon	1,496	24,8	2,581	24,4
Gaz	0,977	16,2	2,243	21,2
Hydroélectrique	0,108	1,8	0,233	2,2
Traditionnel	0,676	11,2	1,142	10,8
Nucléaire	0,050	0,9	0,687	6,5
Renouvelable	0,012	0,1	0,054	0,5
Total	6,034	100,0	10,579	100,0

Dans la deuxième moitié du 21^{ème} siècle, l'approvisionnement mondial deviendra critique, en particulier en ce qui concerne le pétrole et le gaz.

D'une part, les combustibles fossiles, tout comme l'uranium tel qu'il est utilisé pour le moment dans les centrales nucléaires, sont extraits de gisements naturels limités. Le tableau I.2 exprime les réserves évaluées pour chaque source d'énergie en nombre d'années d'exploitation, aux taux de consommation et coûts d'extraction actuels. L'extraction de l'uranium de l'eau de mer, possible moyennant une augmentation de 50% du prix de l'électricité, n'est pas prise en compte ici. Cette limitation des réserves devient réellement préoccupante lorsqu'on tient compte de l'augmentation importante de la demande totale en énergie prévue pour les prochaines décennies, diminuant d'autant le nombre d'années d'exploitation restantes.

D'autre part, les ressources fossiles sont principalement responsables de la production de CO₂ relargué dans l'atmosphère, et du changement induit sur le climat. Il en résulte les premières mesures de limitation des émissions qui ont été prises dans le cadre du protocole de Kyoto, et qui visent l'objectif moyen d'une réduction de 5% entre 2008 et 2012 par rapport aux émissions de 1990. Ces limites seront difficiles à atteindre du fait de l'accroissement de la demande énergétique, notamment des pays en émergence comme la Chine, l'Inde ou le Brésil qui sont parmi les pays ayant ratifié le protocole, dont les principales réserves sont constituées de charbon. En effet, la consommation

TAB. I.2 – Réserves disponibles en Gtep [2], et en années d’exploitation au taux actuel de consommation pour les différents combustibles.

Combustible	Gtep	Années
pétrole	150	40 ans
charbon	430	190 ans
gaz	130	60 ans
uranium-235	80	120 ans

moyenne actuelle d’un chinois ou d’un indien est de l’ordre de 1 MWh par an, alors que celles d’un américain et d’un européen sont respectivement de 14 MWh et 6 MWh par an.

Le problème des modes de production d’énergie et leur répartition équitable est donc crucial pour l’humanité. Dans ce cadre, le développement durable implique une approche qui doit viser, en même temps, à :

- réduire la consommation énergétique,
- développer les énergies non émettrices de CO₂ (énergies renouvelables ou nucléaire),
- capturer et stocker le CO₂ lors de l’utilisation des énergies fossiles,
- accroître l’efficacité énergétique (pour la France, les pertes énergétiques représentaient environ 38% de l’énergie primaire en 2002 [3]).

Dans chacun de ces domaines, la recherche a un rôle clé à jouer afin de proposer de nouvelles solutions et d’identifier les ruptures scientifiques et les verrous technologiques.

Par conséquent, il est nécessaire de procéder avec une approche globale fondée sur un « mix » énergétique afin d’établir de nouvelles technologies qui répondent aux critères d’efficacité économique, d’acceptabilité sociale et de protection de l’environnement.

L’énergie nucléaire a beaucoup d’atouts pour être une réponse énergétique satisfaisante, pour le long terme, du point de vue des ressources et de l’environnement. Nous pensons qu’elle aura à l’avenir, plus encore qu’aujourd’hui, sa place dans le « mix » énergétique.

À cela deux conditions : d’abord que l’on soit capable de proposer de nouveaux systèmes nucléaires, plus performants encore en termes de sûreté, d’économie et surtout, qui placeront en première priorité les critères de développement durable et de non-prolifération. Ensuite que l’on sache répondre aux préoccupations de l’opinion publique.

Mais, rendre le nucléaire acceptable, c’est avant tout le démontrer « par la preuve ». De ce point de vue, le fonctionnement exemplaire des réacteurs nucléaires depuis plus de 20 ans (après l’accident de la centrale de Tchernobyl le 26 avril 1986), partout dans le monde, est un atout irremplaçable. Les taux de disponibilité sont satisfaisants, les incidents, même mineurs, diminuent et cela permet de gagner la confiance du public.

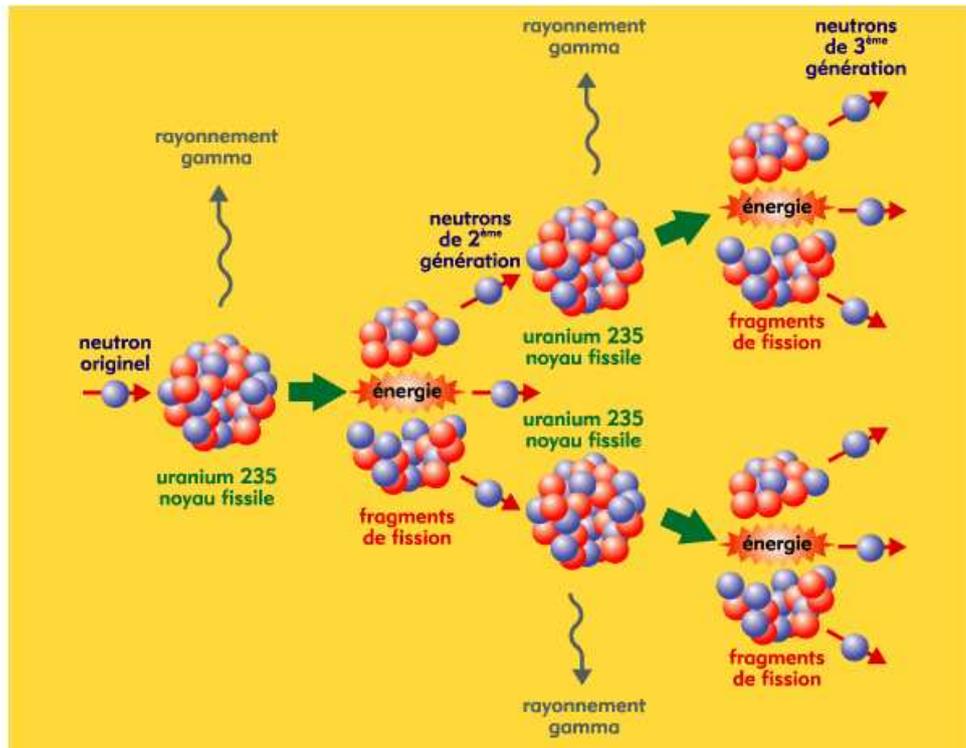


FIG. I.1 – Principe de la réaction en chaîne de fissions. Dans un réacteur nucléaire, la réaction en chaîne est contrôlée pour maintenir un rythme de fissions constant [4].

I.2 L'énergie nucléaire actuelle

En décembre 1953, en pleine guerre froide, le discours « Atoms for Peace » du président américain Eisenhower devant les Nations Unies, incita à une profonde mutation du rôle de l'énergie nucléaire, jusque-là limitée à un usage militaire. Le président fit la promotion de son développement à des fins d'utilisation civile et pacifique pour qu'elle « serve les besoins plutôt que les craintes de l'humanité ». L'année suivante marque en Russie le début de la production commerciale d'électricité d'origine nucléaire. Ces initiatives ont influencé les politiques énergétiques puisque durant ces cinquante dernières années, l'énergie nucléaire s'est largement développée à travers le monde : 441 réacteurs étaient en opération fin 2003, représentant environ 360 GWe installés dans plus de 30 pays. La part du nucléaire dans la production d'électricité est de 16% (30% dans les pays de l'OCDE), ce qui représente également 7% de l'énergie primaire [1].

Les filières actuelles sont basées sur la fission de l'isotope ^{235}U , seul noyau fissile naturel. Cette réaction, correspondant à la cassure de ce noyau sous l'effet de l'impact d'un neutron, est libératrice d'énergie que l'on transforme en chaleur. Comme chaque fois qu'une fission a lieu, il y a au moins deux neutrons émis ; chacun de ces neutrons peut à son tour induire une fission. C'est la réaction en chaîne (voir la figure I.1).

Ces filières utilisent pour la plupart un combustible à uranium enrichi à un taux

de 3% en ^{235}U . En tenant compte de la composition isotopique de l'uranium naturel qui est 99,2742% de ^{238}U , 0,7204% de ^{235}U avec des traces de ^{234}U de 0,0054%, ces filières consomment environ 200 tonnes d'uranium naturel pour produire une énergie de 1 GW électrique, correspondant à la fission d'une tonne de matière, soit un taux d'utilisation final du minerai de 0,5%. Les réserves mondiales en uranium sont estimées à 16 millions de tonnes environ (sans compter l'uranium présent dans l'eau des océans). Ces ressources permettent de continuer à produire de l'énergie nucléaire au rythme actuel pendant 120 ans, mais sont incapables d'assurer un recours massif et durable au nucléaire.

Le tableau I.3 donne l'inventaire des produits que l'on retrouve après un an de fonctionnement dans un réacteur de type REP ayant produit 7 TWh d'électricité.

TAB. I.3 – Inventaire des produits présents dans le combustible d'un réacteur de type REP, au chargement et après un an de fonctionnement [5].

Noyau	Chargement en kg	Déchargement en kg
^{235}U	954	200
^{236}U		111
^{238}U	26 328	25 655
Total U	27 282	26 047
^{239}Pu		156
Total Pu		266
Actinides mineurs		20
^{90}Sr		13
^{137}Cs		30
Autres produits de fission à vie longue		63
Total produits de fission		946
Masse totale	27 282	27 279

Enfin, la gestion des déchets est apparue ces dernières années comme le problème majeur de l'énergie nucléaire. En France, comme dans d'autres pays d'ailleurs, la gestion des déchets les moins actifs et de ceux qui ont des durées de vie les plus courtes (^{90}Sr et ^{137}Cs), est une réalité déjà mise en œuvre dans des centres de stockage industriels. Il faut avoir en mémoire que cela représente plus de 90% du volume total des déchets nucléaires.

Les déchets nucléaires de haute activité et à vie longue produits pendant la production d'énergie (la figure I.2) représentent le grand défi. Ceux-ci, avec quelques pour cent des volumes, concentrent l'essentiel de la radioactivité. On trouve 0,5% d'actinides mineurs tels que (Np, Am et Cm), 4% de fragments de fission à vie longue tels que (^{129}I et ^{99}Tc) et 1% de ^{239}Pu . La France a déjà fait le choix de recycler ce dernier, parce que c'est une matière énergétique valorisable. Ce recyclage se fait dans les combus-

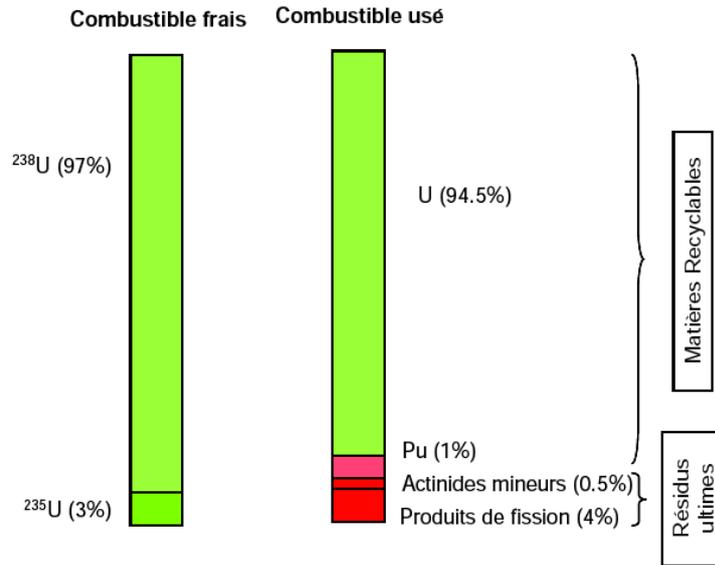


FIG. I.2 – Bilan matière en chargement et après un an de fonctionnement

tibles MOX (mélange d'oxyde). Ensuite parce qu'il est, au cours du temps, le principal responsable de la radiotoxicité des déchets. Actuellement, la R&D engagée en France, de façon encadrée par la loi, a permis d'obtenir de nombreux résultats. Cette R&D va permettre, à l'échéance de la loi Bataille [6], en 2006, de proposer au parlement français différentes solutions techniques pour la gestion de ces déchets. Cependant en avril 2006, l'assemblée nationale a prolongé ce délai jusqu'en 2015 [7].

I.3 Solutions en cours d'études

Des recherches sur la gestion des déchets mobilisent la communauté scientifique nucléaire française et tirent au mieux parti des connaissances accumulées internationalement. Elles se déclinent selon trois grands axes :

- L'axe 1 concerne le stockage géologique et implique la construction de laboratoires souterrains pour étudier sur place des formations présumées favorables.
- L'axe 2 se concentre sur le conditionnement des déchets en vue de permettre, le cas échéant, leur entreposage en toute sûreté sur de longues durées.
- L'axe 3 concerne les méthodes de séparation poussée des déchets des radionucléides à très longue durée de vie et des possibilités de leur transmutation par réactions nucléaires de capture et de fission neutroniques en isotopes de durée de vie plus courte, voire, idéalement, en nucléides stables. Le traitement des combustibles usés est un préalable obligatoire à toute séparation/transmutation.

D'autres solutions comme la réduction de la radiotoxicité des déchets en employant autres cycles de combustible dans les réacteurs actuels ou innovants ou des systèmes dédiés pour la transmutation sont aussi à l'étude.

Le cycle thorium, produisant beaucoup moins d'actinides radiotoxiques est une alternative prometteuse. Plusieurs activités de recherches existent sur des études détaillées d'évolution isotopique dans plusieurs scénarios, mais également sur les données nucléaires nécessaires pour ces applications.

En parallèle, le développement de la quatrième génération de réacteurs [8] est engagé dès à présent, dans un cadre international (dix pays plus l'Union Européenne participent à l'initiative américaine Forum Generation IV) et avec l'objectif d'amener ces nouveaux systèmes à maturité technique, dans la perspective d'un déploiement industriel à l'horizon 2030. Ces systèmes ont pour but de répondre aux enjeux d'une production d'énergie durable, dans une vision à long terme, et notamment de minimiser les déchets radioactifs et d'utiliser au mieux les ressources naturelles en combustible, ainsi que de répondre à de nouveaux besoins en énergie : non seulement la production d'électricité, mais aussi l'hydrogène pour les transports et l'eau potable par dessalement de l'eau de mer. Les six concepts retenus dans la sélection finale, après deux années de travaux préliminaires sont les suivants :

1. GFR (Gas-cooled Fast Reator) : Réacteur rapide refroidi au gaz (hélium) ;
2. LFR (Lead-cooled Fast Reactor) : Réacteur rapide refroidi au plomb ou au plomb-bismuth ;
3. MSR (Molten Salt Reactor) : Réacteur à sels fondus ;
4. SFR (Sodium-cooled Fast Reactor) : Réacteur rapide refroidi au sodium ;
5. SCWR (Supercritical Water-Cooled Reactor) : Réacteur refroidi à l'eau supercritique ;
6. VHTR (Very High Temperature Reactor) : Réacteur à très haute température (1000 °C/ 1200 °C) refroidi à l'hélium.

I.3.1 Systèmes pilotés par accélérateur pour la transmutation des déchets

La transmutation est l'opération par laquelle des éléments très radiotoxiques sont transformés en d'autres éléments de radiotoxicité réduite ou nulle.

Les recherches, menées depuis 15 ans, apportent de nombreuses clarifications et confirment en effet la possibilité de réduire l'inventaire radiotoxique présent dans les combustibles usés. Mais cela ne peut se faire qu'au prix d'efforts technologiques et financiers importants, concernant l'ensemble des usines du cycle du combustible nucléaire et les réacteurs pour espérer enregistrer un gain net significatif au bilan radiotoxique.

La potentialité de divers systèmes de réacteurs pour la transmutation a été étudiée. Il ressort que seuls les réacteurs à spectre rapide, ou des systèmes combinant un accélérateur à un réacteur à cœur sous-critique (ADS, Accelerator Driven System), dits aussi « réacteurs hybrides » permettraient d'atteindre des rendements de transmutation créant une réelle différence en terme de bilan de radiotoxicité. Dans ces

systèmes, l'équilibre neutronique du réacteur nécessite un apport extérieur de neutrons : la marge de sous-criticité ainsi introduite (quelques pour-cent) permettrait d'utiliser des combustibles très chargés en actinides mineurs dans des conditions de sûreté satisfaisantes. Néanmoins, la transmutation reste une opération très complexe, et certainement coûteuse, qui ne pourra pas s'appliquer à tous les radionucléides.

Le principe des ADS est simple (voir la figure I.3) : des protons accélérés produisent, dans une cible située au milieu du cœur du réacteur, les neutrons constituant l'appoint extérieur permettant l'équilibre neutronique d'un réacteur fonctionnant en mode sous-critique, c'est-à-dire incapable à lui seul d'entretenir une réaction en chaîne de fission, « piloté » par une source externe qui lui fournit le complément de neutrons nécessaire. La production des neutrons se fait par le processus de spallation d'un faisceau intense sur une cible lourde. Le maintien à l'équilibre neutronique dans le réacteur est assuré par le contrôle de l'intensité du faisceau.

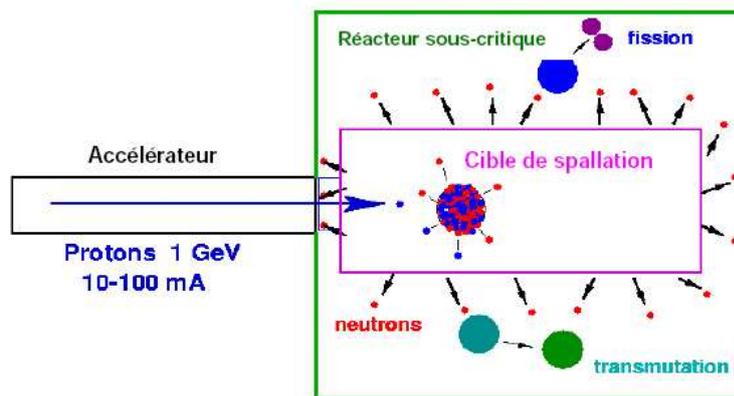


FIG. I.3 – Principe des ADS (Accelerator Driven System), ou « Réacteurs Hybrides »

Si le principe est conceptuellement simple, les ADS seront des installations technologiquement et opérationnellement complexes. Dans un système industriel d'ADS comportant un réacteur de ~ 1 GWth, l'accélérateur de protons associé devra être de très haute puissance (faisceau de protons d'une puissance pouvant atteindre quelques dizaines de mégawatts : énergie de ~ 1 GeV, optimale pour la production de neutrons, intensité de une à quelques dizaines de mA, selon la sous-criticité choisie). Par ailleurs, pour éviter un trop grand nombre d'excursions de puissance qui raccourciraient la vie du réacteur, le nombre autorisé d'arrêts non désirés de l'accélération devra être très faible (quelques pannes par an). Cette exigence de fiabilité, exceptionnelle par rapport à l'usage habituel des accélérateurs par les physiciens, est un défi majeur pour les constructeurs.

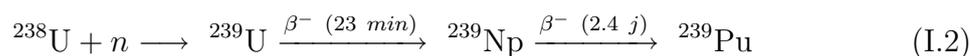
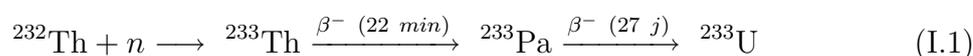
Pour produire un nombre maximum de neutrons, la cible de spallation sera constituée d'un élément lourd (plus riche en neutrons) et les protons y seront complètement arrêtés. Elle devra donc dissiper toute la puissance du faisceau. La conception de ces

cibles, probablement liquides (plomb ou plomb-bismuth), est un défi technologique important : la tenue de la fenêtre d'entrée traversée par le faisceau de protons et soumise à de fortes contraintes d'irradiation est essentielle car elle constitue une barrière entre le vide de l'accélérateur et le réacteur ; l'évacuation de la chaleur produite par l'arrêt du faisceau et la corrosion de l'enveloppe de la cible par les métaux liquides sont aussi des enjeux technologiques majeurs. Le premier test des ADS a été effectué au CERN et a donné des résultats encourageants [9].

Dans la conception d'un prototype d'ADS, des simulations de Monte-Carlo sont employées pour estimer ses performances dans différentes configurations et conditions de fonctionnements. Ces simulations exigent une connaissance précise des données nucléaires, en particulier les données de sections efficaces neutroniques, parce que la qualité des simulations dépend de celle des données utilisées comme paramètres d'entrées. Malheureusement, des insuffisances et des grands écarts existent entre les bases de données actuelles pour les actinides mineurs (AM), les produits de fission (PF) et les isotopes du cycle du thorium, qui sont généralement basées sur différentes mesures expérimentales et des modèles théoriques existants. Le taux de combustion élevé et surtout les options d'incinération des déchets exigent des données de bonne précision pour les actinides mineurs et les produits de fission à vie longue et pour différents matériaux de structure d'ADS.

I.3.2 Le cycle thorium

Le thorium (^{232}Th) est un matériau fertile, environ deux fois plus abondant dans la nature que l'uranium. Par absorption d'un neutron puis décroissance radioactive, il produit du ^{233}Pa puis du ^{233}U , isotope fissile. Ce dernier est lui-même intéressant, car sa fission génère un peu plus de neutrons que celle de ^{235}U ou de ^{239}Pu dans un spectre thermique. Ces différentes raisons ont conduit, dans les années 50, à s'intéresser de près à la filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$; des combustibles ont été fabriqués et utilisés dans différents réacteurs, dont le REP expérimental américain de Shippingport [10], le THTR allemand [10] et le HTGR de Fort Saint Vrain [11]



Malheureusement, la décroissance de ^{232}U entraîne l'apparition de ^{212}Bi et le ^{208}Tl qui forment du ^{208}Pb dans un état excité, dont la décroissance vers le niveau fondamental se caractérise par l'émission d'un rayonnement γ de 2,614 MeV.

Tous ces isotopes sont formés dans les combustibles $\text{Th}-^{233}\text{U}$ recyclés et posent de sérieux problèmes de radioprotection dans les installations de fabrication du combustible ; cet inconvénient est une des raisons qui ont fait préférer la filière uranium-plutonium. La raison principale étant qu'il fallait de toute façon amorcer une filière

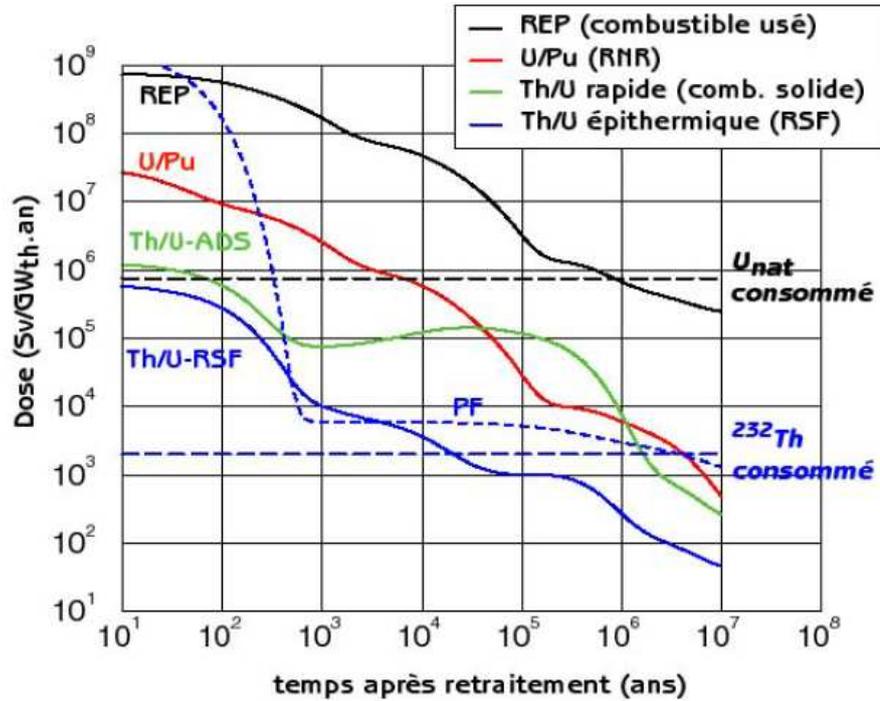


FIG. I.4 – La radiotoxicité induite par la production d'un GWth.an par différentes filières de réacteurs [12].

thorium avec le seul matériau fissile existant dans la nature, ^{235}U ; la filière thorium, contrairement à la filière uranium, ne peut donc pas se développer seule.

Au cours des dernières années, la filière thorium a fait l'objet d'un nouvel examen, à la fois parce que cette filière produit beaucoup moins de transuraniens et parce que la robotique et la télémanipulation ont fait des progrès considérables, limitant les inconvénients liés aux rayonnements γ . Les résultats de ces études sont résumés ci-dessous [12, 13] :

- la meilleure utilisation du thorium est dans les réacteurs à neutrons thermiques à sels fondus, ce qui permet un inventaire réduit en matière fissile, favorable aussi bien au niveau des ressources que de celui des déchets (minimisation de la production de ^{232}U source du ^{208}Tl , des pertes au retraitement, des conséquences de rejets accidentels, de la mise finale aux déchets) ; elle ne permet cependant pas de se passer de ^{235}U ou de ^{239}Pu pour amorcer le cycle et n'élimine donc pas complètement les actinides mineurs ;
- un cycle Th-Pu dans un réacteur à neutrons rapides (critique ou sous-critique) permet de consommer deux fois plus de plutonium qu'un cycle U-Pu (grâce à l'absence de ^{238}U), et de produire des quantités importantes de ^{233}U ; une fois amorcé, le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ peut être auto-entretenu ;
- la radiotoxicité à long terme (mille ans et au delà) des déchets est dominée par

base de thorium et d'uranium. La principale information déduite de ce schéma est la suivante : l'accès aux AM tels que l'américium et le curium est bien plus facile à atteindre dans le cas du cycle uranium que dans celui du cycle thorium qui produit seulement le ^{237}Np .

Les filières à base de thorium sont donc comparables aux filières à uranium en ce qui concerne les produits de fission et les quantités d'actinides à très long terme ; ils sont intéressants pour le dimensionnement « thermique » des stockages, mais présentent des inconvénients certains pour la fabrication des combustibles solides après retraitement. Leur principal intérêt réside dans l'augmentation des ressources ; intérêt à échéance très lointaine si les filières uranium à spectre rapide se développent normalement, à échéance plus rapprochée dans le cas contraire. Sous certaines conditions, évoquées plus haut, ils permettraient de réduire fortement les quantités d'actinides mineurs et, de ce fait, de relâcher les charges thermique des verres (durées d'entreposage d'attente et dimensionnement du stockage géologique).

Dans un tel scénario, où on postulerait l'échec des filières à spectre rapide, le thorium ne peut trouver sa place que dans une filière à spectre thermique capable d'être auto-entretenu : la plus attrayante est la filière à sels de combustibles fondus. Le système nucléaire serait alors le suivant :

- un parc de réacteurs à eau produisant du plutonium,
- un parc de réacteurs à sels fondus à neutrons thermiques, amorcés avec le plutonium produit dans les premiers.

Les réacteurs à neutrons thermiques à sels de combustibles fondus apparaissent alors comme une alternative aux réacteurs à spectre rapide dans la perspective d'un développement durable du nucléaire. Avec comme conséquence la nécessité de mettre en œuvre deux procédés de retraitement, l'un par voie aqueuse pour les réacteurs à eau, l'autre par voie pyrochimique pour les réacteurs à sels fondus.

Les filières à base de thorium présentent donc des avantages certains et des inconvénients qui ne le sont pas moins. Il en résulte qu'il est peu probable qu'elles se développent tant que des besoins massifs en matériaux fertiles ne se feront pas sentir.

Les études sur le cycle thorium reliées aux sections efficaces ne sont pas encore arrivées au niveau de celles du cycle uranium. Le développement et la conception des filières à base de thorium que ce soit pour les systèmes critique ou sous-critique, exigent une bonne connaissance des sections efficaces de tous les isotopes du cycle thorium.

I.4 Les données nucléaires pour les cycles de futurs

I.4.1 État de l'art

Depuis de nombreuses années, les réacteurs sont conçus grâce à des calculs complexes par ordinateur. Pour pouvoir prédire comment un réacteur va se comporter, les calculs ont besoin d'une grande quantité d'informations.

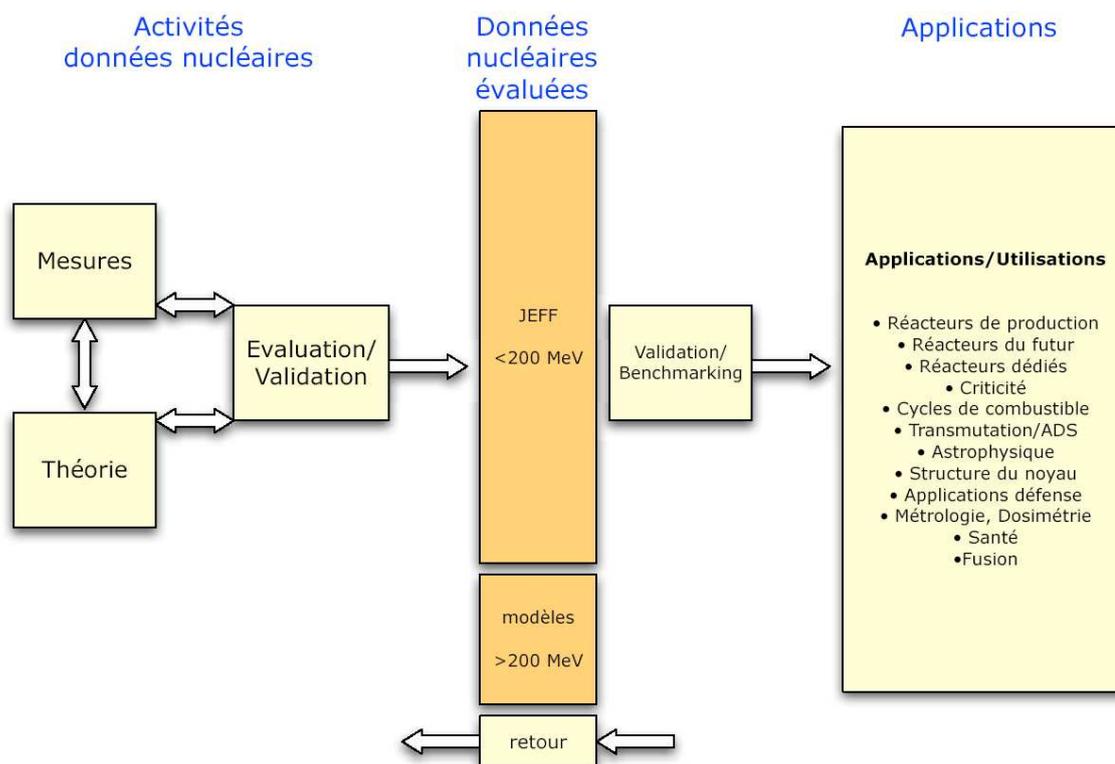


FIG. I.6 – Processus d'utilisation des données nucléaires.

Les données concernent en premier lieu les sections efficaces de toutes les réactions nucléaires qui ont lieu dans le combustible mais aussi sur les déchets qui sont produits ou éventuellement introduits et sur les structures. Ces sections efficaces ont été mesurées jusqu'ici dans des laboratoires spécialisés.

Pour obtenir des données utilisables, on doit procéder à une évaluation. La méthodologie de cette dernière consiste à rechercher la cohérence maximale entre les informations provenant des expériences et celles issues des modèles théoriques. Le travail d'évaluation a été mené au cours des cinquante dernières années par des équipes de divers laboratoires du monde entier. Coordonné souvent à un niveau régional (Europe, Japon, États-Unis, Chine, Russie), il a pris la forme de banques de données évaluées, comportant des données pour l'ensemble des réactions d'un grand nombre d'isotopes (plusieurs centaines), dans un domaine d'énergie qui va de la fraction d'électronvolt à 20 MeV. Pour certains isotopes la limite est étendue jusqu'à 200 MeV. Il existe d'importantes bibliothèques internationales : JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion file, Europe) [14], ENDF/B (Evaluated Nuclear Data File, États-Unis) [15], JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Japon) [16], BROND (Biblioteka Rekomendovannykh Otsenjonnykh Neutronnykh Dannykh, Russie) [17] et CENDL (Chinese Evaluated Nuclear Data Library, Chine) [18] remises à jour régulièrement.

Il existe d'autres bibliothèques, mais depuis une dizaine d'années une importante homogénéisation tend à s'effectuer entre l'ensemble des bibliothèques dans le monde

à travers des fortes collaborations et des accès simplifiés aux données. Un effort de cohérence est en cours au niveau mondial, celui-ci est coordonné par la NEA et l'IAEA.

Les données nucléaires évaluées doivent être validées par l'utilisation de Benchmarking. Elles sont alors disponibles pour plusieurs applications (voir la figure I.6).

I.4.2 Les désaccords entre les bases de données

Les différentes bases de données existantes et disponibles au format ENDF (Evaluated Nuclear Data File), un format standard lisible par les codes de calcul, développé au départ aux États-Unis et utilisé par toute la communauté neutronique mondiale, présentent parfois des désaccords. Ces désaccords sont bien souvent liés à la région d'énergie des résonances non résolues pour les données inférieures à 20 MeV dans le cas des sections efficaces élastique et de capture. Certains noyaux de la filière thorium sont bien mal connus, voire dépourvus d'évaluation en raison des très grande difficultés que peut représenter leur expérimentation et surtout du peu d'intérêt qui lui fut attribué. Il faut noter que ces désaccords proviennent souvent du choix des données expérimentales sur lesquelles l'évaluateur se base pour produire les données évaluées.

I.4.3 Les données nucléaires pour le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

Les recommandations de l'Agence International de l'Energie Atomique [19] (IAEA : International Atomic Energy Agency) ont inclus le ^{232}Th , $^{231,233}\text{Pa}$, et $^{232,233,234,236}\text{U}$ en tant qu'isotopes prioritaires. Pour les réacteurs rapides et les systèmes hybrides, par exemple, les spectres de neutron sont plutôt semblables et les données correspondantes sont exigées avec l'incertitude suivante ([20, 21, 22]) pour les deux concepts : ^{232}Th 1-2%, ^{233}U et ^{234}U avec 3-5%, ^{233}Pa avec 3-10%, ^{231}Pa , ^{236}U avec 10% et ^{232}U avec 20-50%. Parmi les sept isotopes, ^{233}Pa et ^{232}U sont difficiles à mesurer expérimentalement à cause de leur activité spécifique très élevée qui génère des problèmes dans leur disponibilité avec la pureté exigée et qui rend le transport de ces échantillons difficile.

I.5 L'uranium-234

I.5.1 Présentation

I.5.1.1 Historique

La découverte de l'uranium et des minéraux uranifères n'est pas récente puisque c'est le 24 septembre 1789 que le chimiste prussien Klaproth découvre ce nouveau métal, le baptisant du nom de la 7^{ème} planète du système solaire, Uranus, découverte quelques années plus tôt.

Les minerais d'uranium français sont généralement de faible teneur : de 1 à 4 kg d'uranium par tonne, selon les gisements. Leur exploitation se fait en mine à ciel ouvert pour la partie superficielle et par travaux miniers souterrains pour la partie profonde.

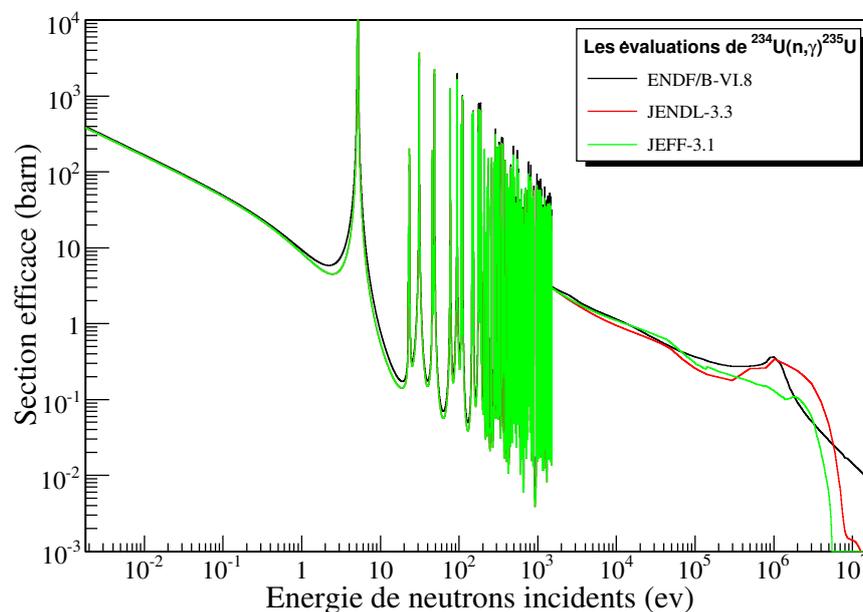


FIG. I.7 – Les évaluations les plus récentes de la section efficace de l' ^{234}U . ENDF/B-VI.8 en noir, JENDL-3.3 en rouge et JEFF-3.1 en vert.

L'essentiel des ressources uranifères françaises se trouve dans des gisements associés à des granites : Vendée, Forez, Limousin. Les zones minéralisées se présentent sous forme de filons, de « stockwerks » ou de colonnes. Les minerais primaires (minerais noir) sont essentiellement composés de pechblende, d'uraninite et de coffinite. Les minéraux secondaires sont des produits d'altération des minerais primaires, ils se rencontrent dans la partie superficielle des gisements et constituent rarement à eux seuls des gisements exploitables (le gisement de Margnac est une exception remarquable).

Les réserves mondiales en uranium sont estimés à 16 millions de tonnes environ (sans compter l'uranium présent dans l'eau des océans) qui est composé essentiellement de ^{238}U , ^{235}U et quelques traces de ^{234}U .

I.5.1.2 Voie de production

Dans le cadre du cycle thorium, l'uranium-234 est formé par capture de neutron de ^{233}U , puis il décroît par l'émission d'alpha avec une demi vie $2,5 \cdot 10^5$ ans. Une autre voie de production, moins importante est la décroissance β^- de ^{234}Pa . En outre, puisque ^{234}U est également formé par la réaction (n,2n) de ^{235}U , il est un isotope relativement important pour les deux cycles uranium et thorium. L'isotope ^{234}U joue un rôle dans le cycle thorium semblable à l'isotope ^{240}Pu dans le cycle de combustible à base de Pu.

I.5.2 Etat actuel de la section efficace de capture neutronique de ^{234}U

Pour la section efficace de capture neutronique de l' ^{234}U , il y a trois évaluations de ENDF, JENDL et JEFF (la figure I.7) qui présentent un désaccord au niveau de la largeur radiative Γ_γ . De plus ces données ont une incertitude de 20% [23]. Il existe seulement deux mesures directe de la capture neutronique de ^{234}U dans le domaine des résonances et au delà. La première mesure est celle de Muradyan et *al.* [24] datée de 1990 et la seconde est fait récemment à Los alamos en LANSCE [25]. Ces deux mesures présentent un désaccord de 30%.

Pour ces raisons, nous avons mesuré en 2004 la section efficace de capture neutronique de l' ^{234}U à n_TOF au CERN dans une gamme d'énergie entre 0,03 eV et 1 MeV dans le but d'avoir des données avec une incertitude de moins de 5%.

Chapitre II

Théorie de la section efficace neutronique

Dans ce chapitre, nous présenterons brièvement les aspects directement reliés à l'interaction neutron-noyau et les principes de la théorie des résonances neutroniques, en commençant par le formalisme de la matrice-R de représentation des sections efficaces avec quelques approximations. Pour finir nous donnerons une description des propriétés statistiques des paramètres de résonances. Pour des études plus approfondies sur le sujet, il est conseillé de consulter les références citées tout au long de ce chapitre à commencer par des ouvrages très généraux sur le domaine que sont les références [26] et [27], ainsi que l'ouvrage détaillé de Lynn [28] et de Lane et Thomas [29].

II.1 Notion de section efficace

La probabilité de réaction entre deux particules est généralement décrite en termes de section efficace. Cette quantité donne une mesure de la probabilité qu'une réaction ou qu'un certain type de réaction se produise.

En général, on distingue [30] deux types de section efficace : la section efficace macroscopique et la section efficace microscopique.

II.1.1 Section efficace macroscopique

Soit une particule incidente (un neutron par exemple) se déplaçant à une vitesse donnée v . Pendant une durée élémentaire de temps dt , la probabilité d'interactions avec un noyau cible est proportionnelle à vdt , notée « par convention » : $\Sigma \cdot vdt$

Le coefficient de proportionnalité Σ est appelé section efficace macroscopique du milieu où se trouve la particule incidente. C'est l'inverse d'une longueur : son unité est le cm^{-1} .

II.1.2 Section efficace microscopique

Puisque la probabilité d'interaction d'une particule avec la matière est proportionnelle à la densité de cette dernière, on peut écrire : $\Sigma = N \cdot \sigma$ avec N est le nombre de noyaux constituant la matière considérée par unité de volume et σ une grandeur physique définissant la section efficace microscopique.

L'unité de σ est donc le cm^2 et on peut assimiler la valeur de la section efficace microscopique à la surface d'interaction (pour un type de réaction donné) au niveau des noyaux considérés perpendiculairement à la direction du projectile. Toutefois, la section efficace microscopique est plutôt exprimée en barn, unité plus représentative de la surface d'un noyau :

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$$

La section efficace varie selon la nature du noyau cible, le type de réaction observée et l'énergie cinétique du projectile.

Dans la suite, ce que nous appellerons section efficace correspond à la section efficace microscopique.

II.2 Les propriétés du neutron

Le neutron est une particule élémentaire qui a été découverte en 1932 par James Chadwick [31]. Il a été utilisé pour la première fois par Clifford Shull en 1946 comme outil pour des expériences de diffusion. Il s'agit d'un outil tout à fait exceptionnel car le neutron possède des propriétés uniques et particulièrement adaptées pour ces études.

Le neutron a une masse 1,00866 uma (unité de masse atomique) soit $1,675 \cdot 10^{-27}$ kg, légèrement supérieure à celle du noyau d'hydrogène et une charge électrique nulle. Lorsqu'il est lié dans un noyau, le neutron est stable, mais à l'état libre il est radioactif et se désintègre en un proton par la radioactivité β^- :



La durée de vie du neutron libre est de 10,24 minutes [32]. Dans un réacteur le temps qui sépare la naissance d'un neutron de sa disparition est toujours inférieur à une milliseconde. Il n'est donc pas nécessaire en physique des réacteurs de tenir compte de la désintégration des neutrons et l'on pourra considérer les neutrons libres comme stables.

Cette particule neutre peut pénétrer la matière sans être arrêtée par une barrière coulombienne. C'est pourquoi même un neutron lent, c'est-à-dire un neutron dont l'énergie cinétique est voisine de zéro, peut atteindre le noyau atomique et interagir avec lui, contrairement aux particules chargées (α, β , protons) qui doivent en général être dotées d'une grande vitesse, c'est-à-dire d'une relativement grande énergie, pour provoquer des réactions nucléaires.

II.3 Réactions nucléaires induites par les neutrons

II.3.1 Processus de l'interaction neutron-noyau

Une réaction nucléaire est un processus d'interaction qui se produit lorsque un neutron d'énergie cinétique E_n et un noyau A_ZX parviennent à une distance suffisamment proche l'un de l'autre pour que les forces nucléaires puissent entrer en jeu. Il se produit alors des conversions masse-énergie pouvant changer la nature des noyaux et leurs propriétés physiques. Dans le domaine des énergies inférieures à quelques MeV, ce qui représente la limite supérieure en énergie du domaine intéressant la physique des réacteurs actuels, on distingue deux types d'interactions : les diffusions et les absorptions qui représentent les voies de sorties. En plus, concernant le mécanisme de réaction, il y a une réaction directe ou semi-directe, dans laquelle le neutron interagit directement avec un ou plusieurs nucléons du noyau cible avec une très courte durée, de l'ordre de 10^{-22} s. Mais ce type de réaction reste négligeable pour le domaine d'énergie de notre étude précisé ci-dessus.

Dans une diffusion élastique, le neutron incident qui percute le noyau est réémis avec une énergie inférieure à son énergie cinétique initiale et poursuit son cheminement dans le milieu. Il y a en quelque sorte un rebondissement à la surface du noyau sans réelle pénétration. La différence d'énergie est transformée en énergie de recul pour le noyau-cible. La réaction s'écrit (n,n).

Par opposition, toute réaction au cours de laquelle le neutron est happé par le noyau qu'il a rencontré est qualifiée d'absorption. Le noyau composé ainsi formé est fortement excité car, outre l'énergie cinétique du neutron incident, il a également absorbé l'énergie de liaison (quelques MeV) provenant du travail des forces nucléaires pour le saisir. Cet état très instable, ne dure qu'un très court instant (de l'ordre de 10^{-14} s).

L'énergie d'excitation E^* de ce noyau composé, correspond à la somme de l'énergie S_n de séparation du neutron ($5297,6 \pm 0,5$ keV dans le cas ${}^{234}\text{U}$) et de l'énergie cinétique E_c dans le centre de masse.

$$E^* = S_n + \frac{A}{A+1} E_n \quad (\text{II.2})$$

L'existence de résonances neutroniques peut s'expliquer en considérant les niveaux d'énergie du noyau composé. En effet, les seuls niveaux atteignables à l'aide de neutrons sont les niveaux d'énergie supérieure à l'énergie de séparation des neutrons S_n du noyau composé comme le montre la figure II.1. Un niveau se manifeste sous la forme d'une résonance dans la section efficace de formation du noyau composé lorsque l'énergie d'excitation de ce noyau est voisine de celle d'un tel niveau. Outre son énergie, chaque niveau du noyau composé est caractérisé par un nombre quantique de moment angulaire total J , appelé communément nombre quantique de spin et d'une parité positive ou négative.

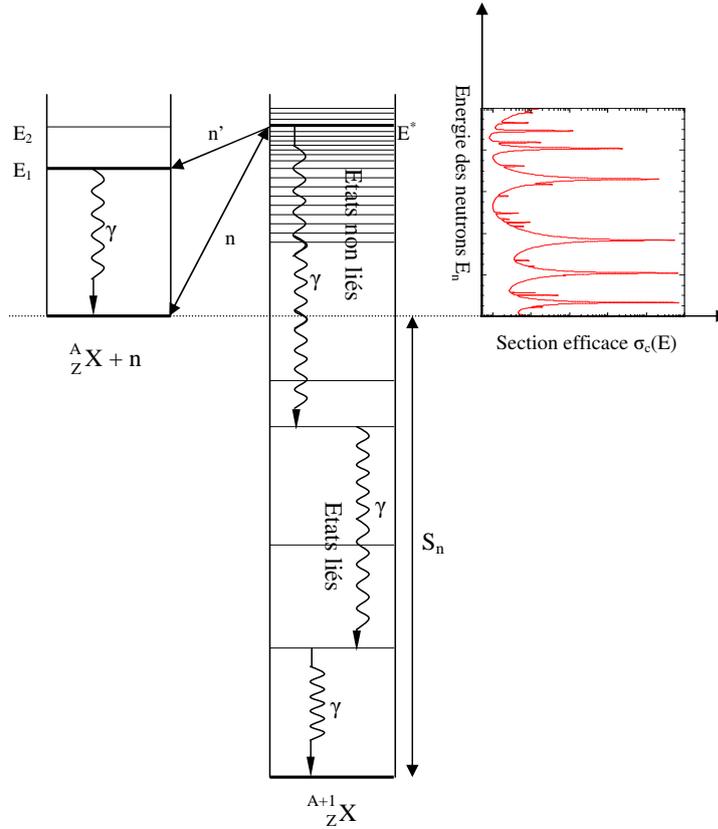


FIG. II.1 – Schéma simplifié des niveaux d'énergie dans le noyau composé avec les différents types de niveaux (liés et non liés) et d'échelles en énergie.

II.3.2 Mode de décroissance du noyau composé

Le mode de désexcitation est considéré indépendant du mode de formation du noyau composé. Parce que le noyau composé peut chercher à se désexciter de plusieurs manières. La section efficace de réaction (n,i) faisant intervenir le noyau composé et où i est le mode de désexcitation (particule ou rayon gamma) s'exprime pour un noyau cible donné comme :

$$\sigma_{(n,i)}(E) = \sigma_c(E) \cdot P_i(E^*) \quad (\text{II.3})$$

avec :

E , énergie cinétique du neutron dans le centre de masse.

E^* , énergie d'excitation du noyau composé.

$\sigma_{(n,i)}(E)$, la section efficace de réaction (n,i) avec formation du noyau composé.

$\sigma_c(E)$, section efficace de formation du noyau composé.

$P_i(E^*)$, probabilité de désexcitation du noyau composé selon le mode i .

Chaque niveau d'un noyau (et même le niveau fondamental pour ${}^{234}\text{U}$ qui est ra-

dioactif) possède une largeur Γ (l'incertitude ΔE sur l'énergie de ce niveau) car il n'a qu'une durée de vie τ finie, les deux grandeurs étant reliées par la relation d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta E \cdot \Delta t = \Gamma \cdot \tau \simeq \hbar \quad (\text{II.4})$$

A chaque état excité est associé une probabilité λ_i de décroissance par unité de temps, appelée constante de décroissance, pour un mode de désexcitation i donné.

On définit la largeur partielle Γ_i d'un niveau pour un mode de désexcitation i comme :

$$\Gamma_i = \hbar \lambda_i = \frac{\hbar}{\tau_i} \quad (\text{II.5})$$

Puisqu'un niveau peut se désexciter selon différents modes, la constante de décroissance du niveau n'est autre que la somme des différentes probabilités de décroissance par unité de temps pour chaque mode. La largeur totale du niveau est donc la somme des largeurs partielles et la durée de vie du niveau est déduite de la largeur totale par la relation d'Heisenberg :

$$\lambda = \sum_i \lambda_i \quad (\text{II.6})$$

$$\Gamma = \sum_i \Gamma_i \quad (\text{II.7})$$

$$\tau = \frac{\hbar}{\Gamma} \quad (\text{II.8})$$

Dans le cas de l'uranium-234, la largeur totale (\approx largeur radiative) est d'environ 40 meV selon ENDF/B-VI et de 26 meV pour JENDL-3.3, pour toute notre plage d'étude, ce qui correspond à une durée de vie des niveaux de l'ordre de 10^{-14} s.

A l'aide des notations précédentes, la probabilité de décroissance $P_i(E)$ introduite dans l'équation (II.3), qui peut s'écrire comme le rapport Γ_i/Γ est valable uniquement pour les résonances, soit :

$$\sigma_{(n,i)}(E) = \sigma_c(E) \cdot \frac{\Gamma_i(E^*)}{\Gamma(E^*)} \quad (\text{II.9})$$

où $\sigma_{(n,i)}(E)$ est appelée section efficace partielle neutronique de réaction (n,i) .

II.3.3 Sections efficaces partielles

Les différentes sections efficaces partielles sont associées aux largeurs partielles correspondantes par l'équation (II.9).

Ces sections efficaces partielles sont :

- Section efficace de diffusion résonnante élastique $\sigma_{(n,n)}(E)$: un neutron est réémis en emportant l'énergie excédentaire. Contrairement à la section efficace de diffusion potentielle $\sigma_p(E)$ qui ne se passe pas par la formation d'un noyau composé, elle est associée à une largeur partielle appelée largeur neutronique et notée Γ_n .

Elastique	Diffusion élastique potentielle	Diffusion	Noyau composé	Totale
	Diffusion résonante élastique (n,n)			
Inélastique	Diffusion résonante inélastique (n,n')	Absorption	Noyau composé	Totale
	Capture radiative (n, γ)			
	Fission (n,f)			
	Emission/activation (n,p), (n, α), ..., (n,xn)			

FIG. II.2 – Schéma de regroupement des différentes sections efficaces neutroniques partielles.

- Section efficace de diffusion résonante inélastique $\sigma_{(n,n')}(E)$: après émission du neutron, la réaction retourne vers la paire de particules neutron-noyau cible, mais ce dernier est laissé dans un état excité.
- Section efficace de capture radiative $\sigma_{(n,\gamma)}(E)$: le noyau composé se désexcite par émission d'un ou plusieurs rayonnements γ . La largeur partielle correspondante est la largeur radiative Γ_γ . Notons que le spectre en énergie des rayonnements γ , déterminé par les règles de sélection, est discret et fonction des énergies, spin et parités des niveaux excités du noyau du nombre de masse ($A+1$).
- Section efficace de fission $\sigma_{(n,f)}(E)$: Les noyaux lourds ($Z > 70$) permettent cette réaction de fission, dans laquelle le noyau composé dans un état excité se scinde en deux noyaux plus légers, car l'énergie d'excitation apportée par le neutron, parfois même sans énergie cinétique, est supérieure à un seuil (barrière de fission) (par exemple, les noyaux ^{233}U , ^{235}U ou de ^{239}Pu ayant un nombre impair de neutrons sont fissiles). La largeur partielle de fission se note Γ_f .
- Sections efficaces partielles d'émission de plusieurs neutrons $\sigma_{(n,xn)}(E)$: si l'énergie cinétique du neutron incident est supérieure à l'énergie de séparation des derniers neutrons du noyau cible, plusieurs neutrons peuvent être émis. La largeur partielle associée à ces réactions est notée Γ_{xn} .
- Sections efficaces partielles d'émission et d'activation : le noyau composé se désexcite en émettant des particules chargées telles que protons ($\sigma_{(n,p)}(E)$ et Γ_p), deutons ($\sigma_{(n,d)}(E)$ et Γ_d , tritons ($\sigma_{(n,^3\text{H})}(E)$ et $\Gamma_{^3\text{H}}$) ou particules α ($\sigma_{(n,\alpha)}(E)$ et Γ_α). Si le noyau résiduel obtenu est instable, il peut décroître par radioactivité β^+ ou β^- : c'est alors une réaction d'activation.

On peut également définir plusieurs sections efficaces partielles correspondant à la combinaison des sections efficaces précédentes : section efficace de diffusion et section efficace d'absorption, section efficace élastique et section efficace inélastique et enfin la somme de toutes les sections efficaces partielles qu'est la section efficace totale.

L'organisation des différentes sections efficaces partielles et de leurs combinaisons est résumé dans la figure II.2. La section efficace de formation du noyau composé sera la somme de toutes les sections efficaces partielles à l'exclusion de la section efficace de

diffusion élastique potentielle.

II.3.4 Variation de la section efficace : cas de l'uranium-234

On observe une variation systématique des sections efficaces en fonction de l'énergie du neutron incident. Les sections efficaces partielles peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur d'une énergie à l'autre. Celles de l'uranium-234 sont présentées sur la figure II.3.

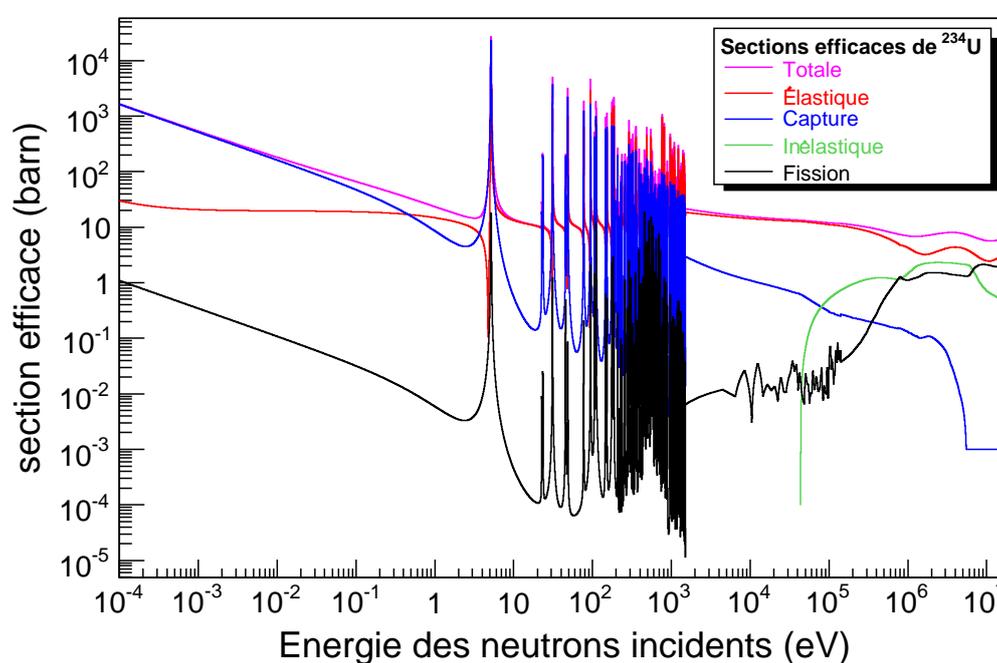


FIG. II.3 – Variation de sections efficaces partielles et totale évaluées, prises de JEFF-3.1 pour l' ^{234}U .

Comme pour tous les noyaux, on distingue trois domaines [27] :

- le domaine thermique : $E_n < 1$ eV, variation lente de la section efficace avec l'énergie (comportement en $1/\sqrt{E}$ soit en $1/v_n$, v_n étant la vitesse du neutron) pour les noyaux intermédiaires et lourds ($25 < A < 80$).
- Le domaine des résonances résolues : (zone dite épithermique) correspondant à de brusques variations localisées de la section efficace pour des énergies allant de 1 eV à quelques dizaines de keV pour les noyaux lourds (1,5 keV pour l' ^{234}U), ou jusqu'à des énergies de l'ordre du MeV pour les noyaux légers. Au fur et à mesure que l'énergie augmente, la largeur des résonances augmente tandis que leur amplitude décroît et leur densité augmente. L'espacement entre les résonances est

plus faible pour les noyaux lourds (de l'ordre de quelques eV) que pour les noyaux intermédiaires (quelques keV) ou pour les noyaux légers (jusqu'à quelques MeV). Pour l' ^{234}U , la largeur radiative moyenne est de l'ordre de 40 meV de ENDF/B et 26 meV de JENDL [33] et l'espacement moyen est 10.92 ± 0.47 eV.

- Le domaine des résonances non-résolues : zone d'énergie des neutrons intermédiaires (1 keV à 500 keV) aux rapides (pour quelques dizaines de $\text{keV} < E < 10$ MeV). La largeur des résonances reste à peu près constante, tandis que l'écart entre chacune d'elle se resserre. Il se produit des recouvrements de plus en plus importants et on retrouve progressivement un comportement à variation lente, c'est le domaine du continuum (résonances éparses dues à l'ouverture de réactions à seuil).

Dans un classement très orienté physique des réacteurs, il y a un quatrième domaine, qui s'appelle « le domaine rapide ». Les neutrons rapides sont ceux qui ont des énergies supérieures à 10 MeV. Les sections efficaces présentent de faibles variations et certaines singularités (marches, paliers) peuvent être observées.

Bilan D'après la figure II.3, dans la gamme d'énergie considérée dans ce travail (entre 1 eV et 3 keV), la section efficace de capture radiative prédomine dans les résonances entre 1 eV et 700 eV, pour ^{234}U . La contribution de la section efficace de diffusion élastique n'est cependant pas négligeable. Entre 700 eV et 3 keV, c'est cette dernière qui prédomine. En ce qui concerne le section efficace de fission, elle est inférieure de plusieurs ordres de grandeurs aux section efficace de capture et diffusion.

Le but de notre étude est de déterminer les valeurs des paramètres de résonances.

II.4 Formalisme de la matrice-R

Parmi les ouvrages, assez généraux, concernant la théorie des réactions nucléaires, on peut citer les références Lynn [28] et Fröbrich *et al.* [34]. Une description en détail de la théorie de la matrice-R est faite dans les références, Lane et Thomas [29] ou Wigner et Eisenbud [35]. Toutefois, une première approche de cette théorie peut-être obtenue dans les références [36, 37, 38]

II.4.1 Introduction

La théorie de la matrice-R, est rigoureuse, tant du point de vue mathématique que de la mécanique quantique. Elle décrit les mécanismes des réactions nucléaires. Son application est limitée aux interactions de type noyau composé. Le modèle du noyau noir, par exemple, est un cas particulier de cette théorie. Le formalisme de Breit et Wigner «simple niveau» et sa généralisation «multi-niveaux» peut aussi être déduit de cette théorie.

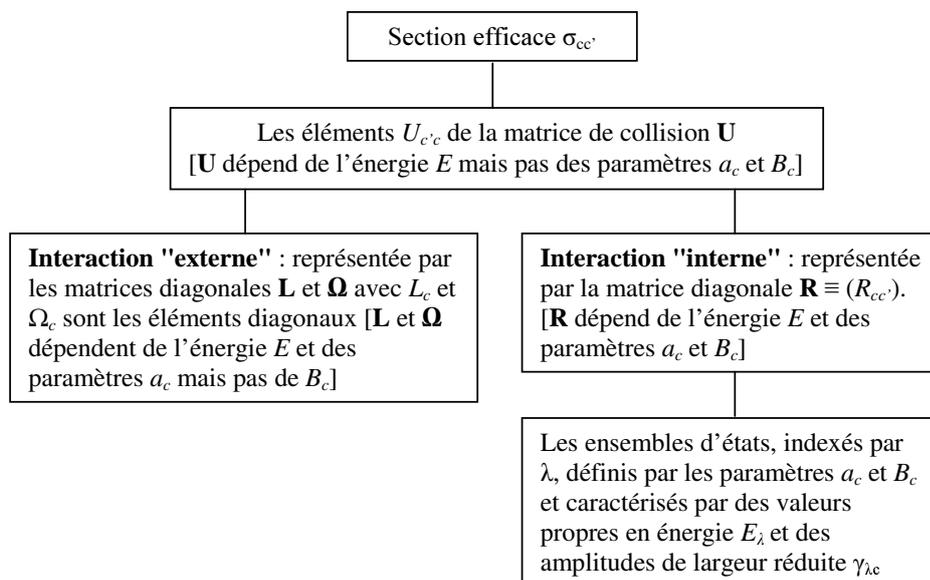


FIG. II.4 – Schéma de principe de la théorie de la matrice-R [29]

En dépit de son aspect général, la théorie de matrice-R ne permet pas de calculer les fonctions d'ondes des nucléons à l'intérieur du noyau. Elle traite donc le noyau comme une « boîte noire ».

II.4.2 Description

Le principe de la théorie, schématisé sur la figure II.4, est le suivant : de l'état initial et final constitué de deux particules séparées dont les fonctions d'ondes (voir la figure II.5) sont connues, le système devient le noyau composé dont la fonction d'onde interne est inconnue mais qui est reconstituée à la surface de ce noyau par les conditions aux limites (expansion des états propres). Les réactions nucléaires sont considérées binaires, c'est-à-dire ne faisant intervenir que deux noyaux ou particules, qu'on appellera voie c , dans la configuration initiale mais également dans la configuration finale : le résultat de l'interaction est constitué de deux corps appelé voie c' . Plutôt que de parler de couple de noyaux ou de particules, le terme de voie est employé, chaque voie étant caractérisée par les différentes grandeurs quantiques du couple. Un rayon a_c définit deux régions de l'espace pour chaque voie c : une région interne où le noyau composé est formé et une région externe où le potentiel nucléaire est nul. Dans la région externe, deux matrices diagonales (L et Ω) décrivent toutes les interactions non polarisées agissant à longue distance entre les deux corps indépendants. Dans la région interne c'est la matrice-R qui tient compte des effets de toutes les interactions. La complexité du système à N nucléons en interaction qu'est le noyau ne permet pas aujourd'hui le calcul détaillé des propriétés internes du noyau et la matrice-R est donc inconnue. Toutefois, en projetant

les fonctions d'ondes internes du noyau sur la surface définie par a_c et en imposant un ensemble de conditions aux limites B_c sur cette surface, une expression de la dépendance en énergie des éléments de la matrice-R a pu être déterminée par Wigner et Eisenbud [35] :

$$R_{cc'}(E) = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E} \quad (\text{II.10})$$

avec :

$\gamma_{\lambda c}$, $\gamma_{\lambda c'}$ et E_{λ} sont indépendants de E et dépendant de a_c et B_c .

λ , indice représentant chaque état propre de l'ensemble d'états caractérisant la région interne.

E , énergie de la particule (ou du noyau) incidente.

E_{λ} , valeurs propres, pour l'énergie, des états λ .

$\gamma_{\lambda c}$, amplitudes de largeur réduite des voies c pour les états λ .

Deux difficultés fondamentales sont soulevées par la théorie de la matrice-R, la première d'ordre physique et la deuxième d'ordre mathématique. Le problème physique concerne la détermination des valeurs des paramètres $\gamma_{\lambda c}$, $\gamma_{\lambda c'}$ et E_{λ} , qui dépendent de la structure interne du noyau, ne peuvent être prédits par la théorie et vont être déterminées par ajustement sur les données expérimentales.

Cependant le problème mathématique demeure, car la taille des matrices entrant en jeu dépasse les capacités des ordinateurs actuels. Pour cette raison, diverses hypothèses simplificatrices sont utiles pour examiner certains cas particuliers. L'approximation de Reich-Moore est la moins restrictive et se trouve, de ce fait, utiliser dans de nombreux codes de calculs des sections efficaces (par exemple : NJOY [39], CALENDF [40], SAMMY [41]).

II.4.3 Hypothèses de la théorie

Les hypothèses à la base de la théorie de la matrice-R sont les suivantes [29] :

- la mécanique quantique non relativiste est la seule appliquée vue la faible énergie cinétique des nucléons dans le noyau,
- les processus sont considérés ceux qui produisent au plus deux noyaux (la fragmentation n'est donc pas considérée),
- les processus de création ou de destruction ne sont pas considérés, ce qui revient à exclure les photons, mais une étude de perturbation entre le couplage des particules et le champ électromagnétique peut supprimer cette restriction,
- les effets potentiels entre paires de noyaux c peuvent être écrits uniquement en fonction de la distance radiale au delà d'une certaine distance a_c .

Toutes ces hypothèses sont justifiées dans le domaine des résonances résolues. Le grand atout de la matrice-R est qu'aucune hypothèse sur l'interaction neutron-noyau est nécessaire.

II.4.4 Représentation des voies

II.4.4.1 Définitions

Considérons une particule incidente sur un noyau cible. Le système ainsi formé (particule et cible) possède, aux énergies E_λ , des résonances λ de spin-parité J^π . Ce système forme une voie d'entrée et peut se désexciter à travers des voies de sortie c' de largeur partielle $\Gamma_{\lambda c}$.

Dans la suite, on utilise les notations de la référence [42], qui définit une voie de réaction $c = \{\alpha, J, s, \ell\}$ par :

Ces voies sont caractérisées par plusieurs paramètres :

- α : la composition du système ; soit dans notre cas en entrée ($^{234}\text{U}, n$) et en sortie ($^{235}\text{U}, \gamma$) - et l'état d'excitation de chaque corps.
- J : moment angulaire total du système (conservé au cours de la réaction) soit :

$$\vec{J} = \vec{s} + \vec{\ell} \text{ avec } |s - \ell| \leq J \leq s + \ell \quad (\text{II.11})$$

avec π la parité, qui s'écrit sous la forme suivante $\pi = (-1)^\ell \cdot \pi_I \cdot \pi_i$

- s : spin de la voie

$$\vec{s} = \vec{I} + \vec{i} \text{ avec } |I - i| \leq s \leq I + i \quad (\text{II.12})$$

où \vec{I} et \vec{i} sont les spins des particules.

- ℓ : le moment angulaire orbital relatif des deux particules. Pour des neutrons lents, seules les faibles valeurs de ℓ sont autorisées.

Un autre paramètre important à introduire est le facteur statistique de spin g_J qui représente le nombre des possibilités d'accéder à un état caractérisé par un moment angulaire J . g_J est donné par :

$$g_J = \frac{2J + 1}{(2I + 1)(2i + 1)} \quad (\text{II.13})$$

Le spin du neutron est $i = 1/2$, tandis que celui de ^{234}U dans son état fondamental est $I^\pi = 0^+$. Le tableau, ci-dessous, présente les possibilités de J^π associées à ^{234}U pour les résonances d'ondes s et p de neutrons incidents.

TAB. II.1 – Combinaisons possibles du moment angulaire orbital ℓ et du spin de la voie s donnant le moment angulaire total, la parité π et le facteur statistique de spin g_J pour le cas de $n+^{234}\text{U}$.

I^π	ℓ	s	J^π	g_J	onde
0^+	0	1/2	$1/2^+$	1	s
	1	1/2	$1/2^-$, $3/2^-$	1, 2	p

Dans tout ce travail, on prendra $\ell = 0$ (seules les ondes s sont considérées).

II.4.4.2 Rayon a_c

La frontière $r = a_c$ est la limite entre la région interne, soumise aux forces nucléaires, et la région externe, soumise aux seules forces coulombiennes, agissant exclusivement sur les particules chargées. Les neutrons, électriquement neutres, n'y sont pas sensibles. Cette délimitation est particulièrement importante puisque c'est à la surface déterminée par ce rayon de voie que vont s'appliquer les conditions aux limites.

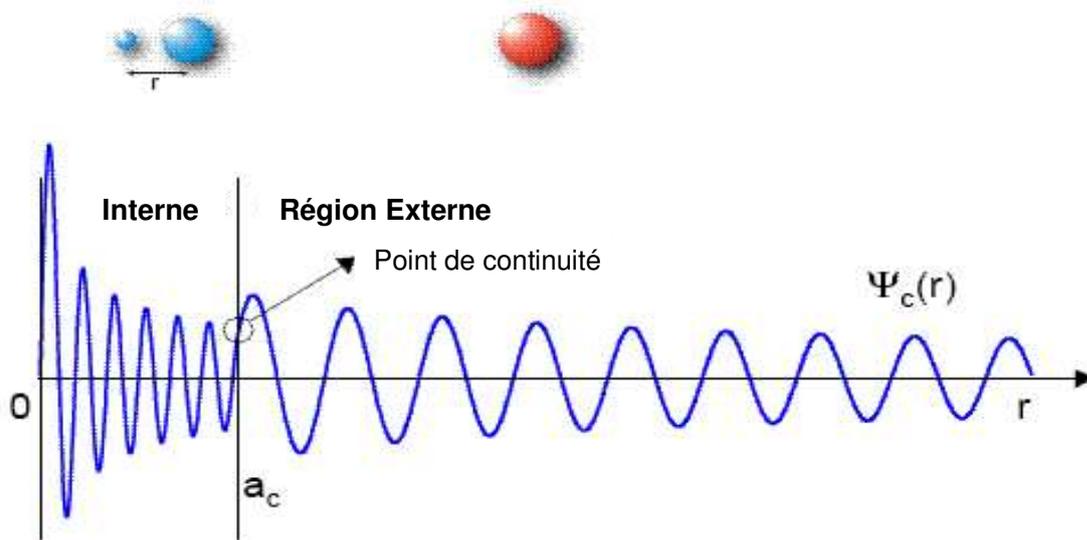


FIG. II.5 – Représentation schématisée de la fonction d'onde Ψ_c d'une voie c en fonction de la distance de séparation r . On distingue deux régions, dans la région interne ($r < a_c$) la fonction d'onde est décrite par les niveaux de décroissance d'un noyau composé. Pour la région externe ($r > a_c$) la fonction d'onde est reliée aux fonctions de Bessel. La distance $r = a_c$ est un point de continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée [43].

Plusieurs suggestions ont été faites par divers auteurs évaluant a_c avec une simple dépendance des nombres de masse A_1 et A_2 des deux noyaux en interaction. Une prescription générale utilisée, est la suivante :

$$a_c = 0,8 + 1,23(A_1 + A_2)^{1/3} \text{ fm} \quad (\text{II.14})$$

II.4.5 Les expressions exactes de la matrice-R

La section efficace partielle $\sigma_{c,c'}^J$, pour la transition de la voie d'entrée c vers la voie de sortie c' , s'exprime en fonction des éléments de la matrice de diffusion $U_{cc'}^J$, via la relation :

$$\sigma_{cc'}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J |\delta_{cc'} - U_{cc'}^J|^2 \quad (\text{II.15})$$

avec :

$$\delta_{cc'} = \delta_{\alpha\alpha'} \cdot \delta_{\ell\ell'} \cdot \delta_{ss'}$$

k_c , le nombre d'onde associé à la voie d'entrée (le nombre d'ondes du neutron dans notre cas).

$$k_c = \frac{\sqrt{2 \cdot \mu_c \cdot E}}{\hbar} \text{ avec } \mu_c = \frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2} \text{ masse réduite de la voie d'entrée} \quad (\text{II.16})$$

J , moment angulaire total de la voie d'entrée.

g_J , facteur statistique de spin.

Notons que, pour $c \neq c'$, la section efficace partielle est proportionnelle à la probabilité, au sens de la mécanique quantique, $|U_{cc'}^J|^2$ d'une transition de la voie c à la voie c' , et à la probabilité g_j d'avoir le moment angulaire correct à partir des spins des partenaires de la collision. Le symbole de Kronecker $\delta_{cc'}$, intervient puisque les particules entrantes et sortantes ne peuvent être distinguées si $c = c'$. Le facteur cinématique π/k_c^2 permet de relier probabilités et sections efficaces. La matrice de collision \mathbf{U} est symétrique car nous pouvons considérer les interactions nucléaires (et coulombiennes) comme invariante par rapport à l'inversion du temps. De plus, \mathbf{U} est unitaire puisque la somme des probabilités des transitions dans les différentes voies est égal à un, $\sum_{c'} |U_{cc'}^J|^2 = 1$

La section efficace intégrée sur les angles $\sigma_{\alpha\alpha'}$, est la somme, sur les voies $c = \{\alpha, J, s, \ell\}$ et $c' = \{\alpha', J, s', \ell'\}$ conduisant le système de la répartition α à la répartition α' , des sections efficaces partielles $\sigma_{cc'}^J$:

$$\sigma_{\alpha\alpha'}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s,s'=|I-i|}^{I+i} \sum_{\ell=|J-s|}^{J+s} \sum_{\ell'=|J-s'|}^{J+s'} |\delta_{cc'} - U_{cc'}^J|^2 \quad (\text{II.17})$$

Les différentes sections efficaces partielles se déduisent ensuite de cette formule avec :

– section efficace de diffusion élastique :

$$\sigma_{\alpha\alpha}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s=|I-i|}^{I+i} \sum_{\ell=|J-s|}^{J+s} \left(|1 - U_{cc}^J|^2 + \sum_{(\alpha'=\alpha), s' \neq s, \ell' \neq \ell} |U_{cc'}^J|^2 \right) \quad (\text{II.18})$$

ou encore, puisque la matrice \mathbf{U} est unitaire :

$$\sigma_{\alpha\alpha}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s=|I-i|}^{I+i} \sum_{\ell=|J-s|}^{J+s} \left(1 - 2\text{Re}(U_{cc}^J) + \sum_{(\alpha'=\alpha), s' \neq s, \ell' \neq \ell} |U_{cc'}^J|^2 \right) \quad (\text{II.19})$$

– section efficace de réaction ($\alpha \neq \alpha'$) :

$$\sigma_{\alpha,\alpha'}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s,s'=|I-i|}^{I+i} \sum_{\ell=|J-s|}^{J+s} \sum_{\ell'=|J-s'|}^{J+s'} |U_{cc'}^J|^2 \quad (\text{II.20})$$

- section efficace inélastique (la somme de toutes les réactions telles que $\alpha' \neq \alpha$) :
- section efficace totale (la somme sur toutes les configurations α' possibles ou bien la somme la section efficace élastique et nonélastique) :

$$\begin{aligned}
\sigma_{\alpha,t}^J &= \sigma_{\alpha,\alpha}^J + \sum_{\alpha' \neq \alpha} \sigma_{\alpha,\alpha'}^J \\
&= \sum_{\alpha'} \sigma_{\alpha,\alpha'}^J \\
&= \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s=|I-i|}^{I+i} \sum_{\ell=|J-s|}^{J+s} (1 - \text{Re } U_{cc'}^J) \quad (\text{II.21})
\end{aligned}$$

Une sommation sur J , permet ensuite d'obtenir les sections efficaces sur l'ensemble des configurations de spin.

II.4.6 Relation entre matrice de collision et matrice-R

La relation entre la matrice de collision et la matrice-R est obtenue en appliquant la continuité de la fonction d'onde du système à la surface ($r = a_c$) séparant la région externe de la région interne. Après l'application des conditions aux limites et plusieurs réarrangements, la matrice de collision \mathbf{U} peut être exprimée explicitement en fonction de la matrice-R :

$$U_{cc'} = \Omega_c P_c^{\frac{1}{2}} [(\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L} - \mathbf{B}))^{-1}]_{cc'} [\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L}^* - \mathbf{B})]_{cc'} P_{c'}^{\frac{1}{2}} \Omega_{c'} \quad (\text{II.22})$$

avec :

- les matrices \mathbf{P} , \mathbf{L} , \mathbf{B} et Ω sont diagonales et la matrice-R est réelle et symétrique.
- $\Omega_c = \left(\frac{I_c}{O_c} \right)_{r=a_c}$, projection du rapport entre l'onde incidente I_c et l'onde sortante O_c à la surface ($r = a_c$) de la voie. Pour les particules neutres, $\Omega_c = e^{-i\Phi_c}$ avec $\Phi_c = \Phi_\ell$ déphasage provoqué par la diffusion valant pour des neutrons en onde s ($\ell = 0$) : $\Phi_c = \rho = k_c \cdot a_c = -\Phi_{c'}$, k_c étant le nombre d'onde du neutron incident. Mais, d'une façon générale, Φ_c est égal à :

$$\Phi_c = \arg O_c(a_c) = \arctan \left(\frac{\text{Im} O_c}{\text{Re} O_c} \right) \quad (\text{II.23})$$

- $L_c = S_c + iP_c = \left(\frac{\rho}{O_c} \frac{dO_c}{d\rho} \right)_{r=a_c}$ où S_c et P_c sont respectivement les facteurs de déphasage et de pénétrabilité de la barrière potentielle.
Dans le cas de neutrons en onde s : $P_c = P_0 = \rho = k \cdot a_c = -\Phi_{c'}$ (et $S_c = S_0 = 0$).
- $R_{cc'}(E) = \sum_\lambda \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_\lambda - E}$, éléments de la matrice-R.
- $B_c = \frac{\delta_{\lambda c}}{\gamma_{\lambda c}}$, avec $\gamma_{\lambda c}$ projection sur la surface de la voie c des fonctions propres réelles X_λ de l'hamiltonien H de la région interne dont E_λ sont les valeurs propres :

$$HX_\lambda = E_\lambda X_\lambda \quad (\text{II.24})$$

$\delta_{\lambda c}$ est la projection sur la même surface de la dérivée de X_λ par rapport à la distance radiale r . B_c représente les conditions aux limites lors de la projection des fonctions d'ondes sur la surface définie au rayon d'entrée. Le choix $B_c = -\ell$ a été proposé [44].

La relation précédente peut s'écrire pour des particules incidentes neutres sous la forme :

$$U_{cc'} = e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left\{ \delta_{cc'} + 2iP_c^{\frac{1}{2}} [(\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L} - \mathbf{B}))^{-1} \mathbf{R}]_{cc'} P_{c'}^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (\text{II.25})$$

TAB. II.2 – Les facteur de pénétrabilité P_ℓ , de décalage de niveau S_ℓ et de phase du potentiel de diffusion Φ_ℓ en fonction de $\rho = k_c a_c$ [45].

ℓ	P_ℓ	S_ℓ	Φ_ℓ
0	ρ	0	ρ
1	$\frac{\rho^3}{1+\rho^2}$	$-\frac{1}{1+\rho^2}$	$\rho - \arctan(\rho)$,
2	$\frac{\rho^5}{9+3\rho^2+\rho^4}$	$-\frac{18+3\rho^2}{9+3\rho^2+\rho^4}$	$\rho - \arctan(\frac{3\rho}{3-\rho^2})$,
ℓ	$\frac{\rho^2 P_{\ell-1}}{(\ell - S_{\ell-1})^2 + P_{\ell-1}^2}$	$\frac{\rho^2 (\ell - S_{\ell-1})}{(\ell - S_{\ell-1})^2 + P_{\ell-1}^2} - \ell$	$\Phi_{\ell-1} - \arctan\left(\frac{P_{\ell-1}}{\ell - S_{\ell-1}}\right)$,

L'équation (II.22) définit la matrice de collision en fonction des paramètres de la matrice-R, $\gamma_{\lambda c}$ et E_λ qui représentent le processus physique de la réaction et les quantités S_c , P_c et Φ_c , décrivent l'onde incidente I_c et l'onde sortante O_c en dehors d'une sphère de rayon a_c .

II.4.7 Quelques approximations

La difficulté majeure de la relation précédente est, vue la taille des matrices, l'inversion de $[\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L} - \mathbf{B})]$. Pour cela plusieurs approximations ont été développées afin de surmonter sa complication. Sauf dans le cas où seulement quelques voies sont impliqués, l'inversion est en général impossible sans hypothèses supplémentaires.

Une méthode pour contourner cette difficulté a été proposée par Wigner en introduisant une nouvelle matrice inverse \mathbf{A}^{-1} , appelée matrice inverse de niveau, dont les éléments représentent les propriétés du niveau λ du système. Le problème d'inversion d'une matrice concernant toutes les voies devient un problème d'inversion d'une matrice concernant les niveaux. La matrice de niveau $A_{\lambda\mu}$ est introduite selon :

$$[(\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L} - \mathbf{B}))]_{cc'}^{-1} = \delta_{cc'} + \sum_{\lambda\mu} \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} (L_{c'} - B_{c'}) A_{\lambda\mu} \quad (\text{II.26})$$

Dans ce cas, les éléments de la matrice A^{-1} sont donnés par :

$$\begin{aligned}
(A^{-1})_{\lambda\mu} &= (E_\lambda - E)\delta_{\lambda\mu} + \sum_c (L_c - B_c)\gamma_{\lambda c}\gamma_{\mu c} \\
&= (E_\lambda - E)\delta_{\lambda\mu} + \Delta_{\lambda\mu} - \frac{i}{2} \sum_c \sqrt{\Gamma_{\lambda c}\Gamma_{\mu c}} \\
&= (E_\lambda - E)\delta_{\lambda\mu} + \Delta_{\lambda\mu} - \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda\mu}
\end{aligned} \tag{II.27}$$

avec

$$\Delta_{\lambda\mu} = \sum_c (S_c - B_c)\gamma_{\lambda c}\gamma_{\mu c}, \text{ le décalage de niveaux.}$$

et

$$\Gamma_{\lambda\mu} = 2 \sum_c P_c \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c}$$

$\Gamma_{\lambda c}$ est la largeur partielle associée à l'amplitude de largeur réduite $\gamma_{\lambda c}$, soit la largeur partielle de désexcitation de niveau λ dans la voie c , avec :

$$\Gamma_{\lambda c} = \gamma_{\lambda c}^2 \cdot 2P_c \tag{II.28}$$

La matrice de collision s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
U_{cc'} &= e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left[\delta_{cc'} + i \sum_{\lambda,\mu} \sqrt{\Gamma_{\lambda c}} A_{\lambda\mu} \sqrt{\Gamma_{\mu c'}} \right] \\
&= \Omega_c \Omega_{c'} \left[\delta_{cc'} + 2i \sqrt{P_c P_{c'}} \sum_{\lambda,\mu} A_{\lambda\mu} \Gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c'} \right]
\end{aligned} \tag{II.29}$$

Dans l'équation (II.27), $\sum_c \sqrt{\Gamma_{\lambda c}\Gamma_{\mu c}} = \Gamma_{\lambda\mu}$ correspond à la contribution des éléments non-diagonaux de la matrice A^{-1} qui correspond aux interférences entre niveaux dans les différentes voies de sortie. Le traitement de cette contribution avec diverses hypothèses simplificatrices va donner naissance aux différents formalismes de section efficace. Le plus connu est celui de Breit et Wigner « simple niveau » (SLBW) qui a considéré seulement un seul niveau. Il peut être étendu à plusieurs niveaux indépendants, qui est de Breit et Wigner « multi-niveaux » (MLBW). Le formalisme de Reich-Moore [46] qui a négligé la contribution des éléments non-diagonaux des voies des photons, qui est juste une approximation pour les noyaux moyens et lourds. Ces trois formalismes seront détaillés ci-dessous. Il y a d'autres formalismes comme celui de Kapur et Peierls [47], Wigner et Eisenbud [35], Adler et Adler [48], Hwang [49] et les plus récents comme celui de Luk'yanov et Yaneva [50].

II.4.7.1 Formalisme de Breit et Wigner simple niveau

L'équation (II.27) peut être simplifiée si un seul niveau contribue. Dans ce cas la matrice contient un seul élément. En effet, la matrice A^{-1} est diagonale et dans ce cas :

$$(\mathbf{A}^{-1})_{\lambda\mu} = (\mathbf{A}^{-1})_{\lambda\lambda} = (E_\lambda - E) + \Delta_\lambda - \frac{i}{2}\Gamma_\lambda \tag{II.30}$$

avec :

$$\Delta_\lambda = \Delta_{\lambda\lambda} = -\sum_c (S_c - B_c) \gamma_{\lambda c}^2, \quad \Gamma_\lambda = \Gamma_{\lambda\lambda} = \sum_c \Gamma_{\lambda c} = \sum_c 2P_c \gamma_{\lambda c}^2$$

La matrice de collision s'écrit alors :

$$U_{cc'} = e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left[\delta_{cc'} + i \frac{\sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\lambda c'}}}{(E_\lambda - E) + \Delta_\lambda - \frac{i}{2} \Gamma_\lambda} \right] \quad (\text{II.31})$$

La section efficace totale dérivant de ce formalisme s'écrit, dans le cas d'un neutron incident et pour le niveau λ :

$$\sigma_c(E) = \pi \lambda_c^2 g_J \left[4 \sin^2 \Phi_c + \frac{\Gamma_\lambda \Gamma_{\lambda c} \cos 2\Phi + 2(E - E_\lambda - \Delta_\lambda) \Gamma_{\lambda c} \sin 2\Phi_c}{(E - E_\lambda - \Delta_\lambda)^2 + \frac{\Gamma_\lambda^2}{4}} \right] \quad (\text{II.32})$$

avec :

$\lambda = \lambda/2\pi$, longueur d'onde du neutron incident.

g_J , facteur statistique de spin.

Le premier terme de l'équation (II.32), qui est indépendant de l'énergie, correspond à la diffusion potentielle élastique. Le second terme est symétrique par rapport à l'énergie de la résonance et décrit les sections efficaces des résonances des niveaux. Enfin, le troisième terme, qui est asymétrique et représente le terme d'interférence entre l'onde diffusée et l'onde réémise, est appelé terme d'interférence potentiel-résonnant.

Dans un cas plus pratique, on peut voir comment devient la section efficace pour les neutron en voie d'entrée. On suppose que les voies sont la diffusion élastique et la capture neutronique, $\Gamma_\gamma = \Gamma = \Gamma_n + \Gamma_\gamma$. Pour $\ell = 0$, on peut écrire $\sin 2\Phi_c = \rho = ka_c$ et $\sin 2\Phi_c = 0$ pour $\ell > 0$. Le terme symétrique peut être approximé par $\cos 2\Phi_c = 1$ pour toutes les valeurs de ℓ .

Le section efficace de réaction devient alors :

$$\sigma_{cc'} = \pi \lambda_c^2 g_c \frac{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\lambda c'}}{(E - E_\lambda - \Delta_\lambda)^2 + \frac{\Gamma_\lambda^2}{4}} \quad (\text{II.33})$$

et le décalage Δ_λ est déterminé en appliquant les conditions aux limites.

II.4.7.2 Formalisme de Breit et Wigner multi-niveaux

Plusieurs résonances peuvent être pris en compte en sommant les sections efficaces du formalisme SLBW. C'est la plus simple méthode de traitement des sections efficaces de plusieurs résonances. Dans le formalisme MLBW, proche du précédent, tous les termes non diagonaux de la matrice inverse de \mathbf{A} de niveaux sont négligés, ce qui revient à négliger les termes d'interférences entre les niveaux mais pas entre les voies. Les éléments de la matrice \mathbf{A}^{-1} est sous la forme :

$$(\mathbf{A}^{-1})_{\lambda\mu} = (E_\lambda - E + \Delta_\lambda - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda\mu}) \delta_{\lambda\mu} \quad (\text{II.34})$$

et ceux de la matrice de collision :

$$U_{cc'} = e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left[\delta_{cc'} + i \sum_{\lambda} \frac{\sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\lambda c'}}}{E_{\lambda} - E + \Delta_{\lambda} - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda \mu}} \right] \quad (\text{II.35})$$

Le formalisme de Breit et Wigner ayant négligé les interférences entre les résonances, une erreur importante peut être commise si les résonances sont proches l'une de l'autre, la section efficace à une énergie donnée ne pouvant se réduire à la simple sommation des contributions de chaque résonance isolée.

II.4.7.3 Formalisme de Reich-Moore

Cette approximation consiste à négliger les interférences entre toutes les voies de décroissances γ possibles, donc à annuler leurs contributions non diagonales. En effet, pour les noyaux lourds et moyens lors de l'émission de rayonnements γ faisant suite à une capture, le nombre de voies de sorties possibles est très important. Pour cela, les amplitudes $\gamma_{\lambda c}$ sont non-correlées et distribuées suivant une loi normale de valeur moyenne nulle. La valeur attendue du produit des amplitudes est nulle lorsque $\lambda \neq \mu$, parce que $\langle \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} \rangle = \gamma_{\lambda c}^2 \delta_{\lambda \mu}$. En additionnant toutes le voies γ , on trouve :

$$\sum_{c \in \gamma} \Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\mu c} = \sum_{c \in \gamma} \Gamma_{\lambda c}^2 \delta_{\lambda \mu} = \Gamma_{\lambda \gamma} \delta_{\lambda \mu} \quad (\text{II.36})$$

L'approximation revient à négliger la contribution non-diagonale des voies gamma et donc de ne considérer, dans notre cas, que les interférences entre voies de fission et la voie de diffusion. C'est la base de l'approximation de Reich-Moore.

Les éléments de la matrice \mathbf{A}^{-1} s'écrivent alors, en séparant les termes uniquement diagonaux de la voie gamma des autres :

$$\begin{aligned} (\mathbf{A}^{-1})_{\lambda \mu} &= (E_{\lambda} - E) \delta_{\lambda \mu} - \sum_{c \in \gamma} \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} (L_c - B_c) - \sum_{c \notin \gamma} \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} (L_c - B_c) \\ &= (E_{\lambda} - E) \delta_{\lambda \mu} - \Gamma_{\lambda \mu} (L_c - B_c) \delta_{\lambda \mu} - \sum_{c \notin \gamma} \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} (L_c - B_c) \\ &= (E_{\lambda} - E + \Delta_{\lambda} - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda \gamma}) \delta_{\lambda \mu} + \sum_{c \notin \gamma} \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} (L_c - B_c) \end{aligned} \quad (\text{II.37})$$

Il est alors possible de définir une matrice-R réduite :

$$R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda \gamma}} \text{ avec } (c, c' \notin \gamma) \quad (\text{II.38})$$

réduite dans le sens où elle est seulement définie dans un sous-espace de voies sans photon. Les seuls traces des voies photons éliminées sont les largeurs radiatives totales, $\Gamma_{\lambda \gamma}$, dans les dénominateurs.

Pour un noyau non-fissile, seuls deux voies sont permises : $c' = n$ ou $c' = \gamma$ c'est-à-dire 1 voie élastique plus 1 voie de capture, donc la matrice-R réduite peut s'écrire :

$$R_{nn} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda n}^2}{E_{\lambda} - E - \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda\gamma}} \quad (\text{II.39})$$

En supposant certaines conditions aux limites telles que $B_c = S_c$, la matrice de collision réduite s'écrit :

$$U_{nn} = e^{-2i\Phi_n} \left[\frac{1 + iP_n R_{nn}}{1 - iP_n R_{nn}} \right] \quad (\text{II.40})$$

II.5 Étude statistique des niveaux

Le formalisme dédié à l'analyse de la région des résonances non-résolues est basé sur le traitement probabiliste des paramètres de la matrice-R extraites de la région des résonances résolues [51].

Dans cette dernière les énergies des résonances peuvent être confondues avec les valeurs E_{λ} et que les largeurs $\Gamma_{\lambda c}$ sont des grandeurs mesurables dont les propriétés sont directement liées à celles des largeurs réduites $\gamma_{\lambda c}$. Pour un noyau lourd tel que ^{234}U , le nombre de niveaux du noyau composé est très élevé, donc le nombre de résonances est très grand. Il est donc possible d'extraire les propriétés statistiques de leurs paramètres, c'est à dire leurs valeurs moyennes et leurs fluctuations associées.

Ces paramètres sont, principalement, la fonction densité du neutron (S_{ℓ}), la largeur moyenne radiative ($\langle \Gamma_{\lambda\gamma, \ell} \rangle$) et l'espacement moyen de niveau ($\langle D_{\ell} \rangle$).

La fonction densité (S_{ℓ}) rapporte les propriétés statistiques de base des états composés et dépend très peu de l'énergie.

La fonction densité est étroitement liée au coefficient de transmission (T_{ℓ}) qui est déterminé dans ce cas du modèle optique par :

$$S_{\ell} \equiv \frac{ka_c}{2\pi} \frac{T_{\ell}}{P_{\ell}\sqrt{E}} \quad (\text{II.41})$$

S_{ℓ} est aussi définie comme le rapport entre la largeur partielle moyenne réduite et l'espacement des niveaux moyen :

$$S_{\ell} = \frac{1}{2\ell + 1} \sum_J \frac{g_J \langle \Gamma_{\lambda c}^{\ell} \rangle}{D_J} \quad (\text{II.42})$$

Pour $c = n$, la largeur neutronique réduite est sous la forme :

$$\Gamma_{\lambda n}^{\ell} = \frac{ka_c}{P_{\ell}} \frac{\Gamma_{\lambda n}}{\sqrt{E}} = \frac{2a_c \sqrt{2m_n}}{\hbar} \gamma_{\lambda n}^2 \quad (\text{II.43})$$

Pour les résonances d'onde s ($\ell = 0$), $\Gamma_{\lambda n}^0$ est simplement donnée par :

$$\Gamma_{\lambda n}^0 = \Gamma_{\lambda n} \sqrt{\frac{1eV}{E}} \quad (\text{II.44})$$

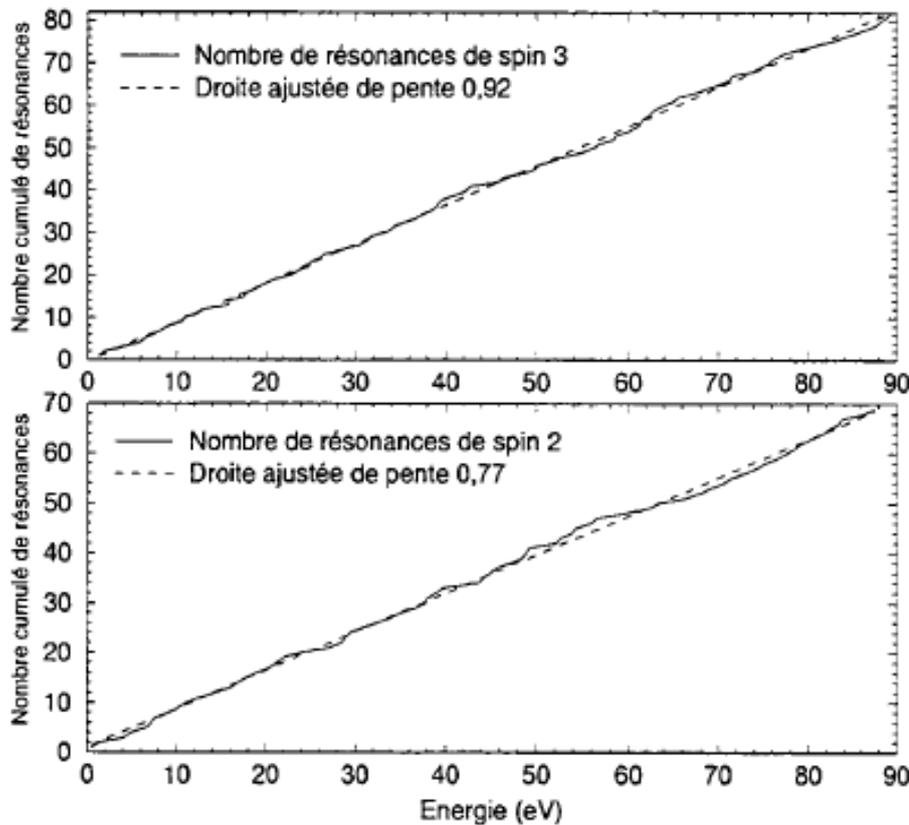


FIG. II.6 – Nombre cumulé de résonances avec $\ell = 0$ pour chaque spin de ^{237}Np en fonction de l'énergie. La pente de la droite obtenue par ajustement correspond à $\frac{1}{\langle D \rangle}$ [36].

La prédiction de l'espacement moyen des niveaux est souvent déterminée par la formule de Gilbert et Cameron [51], la distribution de l'espacement en énergie entre les niveaux adjacents pour une séquence de niveau J^π qui obéit la loi de Wigner [52], et la fonction densité de la largeur réduite $\gamma_{\lambda c}$ est décrite par la distribution de Porter-Thomas [53].

II.5.1 Espacement moyen

La description de la décroissance du noyau composé peut être menée dans le cadre de la théorie statistique des réactions nucléaires. L'espacement moyen de niveaux est l'un des paramètres les plus importants, qui représente l'espacement entre deux niveaux correspond à la différence entre les énergies, du neutron de moment orbital ℓ , des deux résonances correspondantes.

L'espacement moyen observé $\langle D_\ell \rangle$ des niveaux du noyau composé est défini comme

le rapport :

$$\langle D_\ell \rangle = \frac{E_2 - E_1}{N - 1} \quad (\text{II.45})$$

avec :

N , nombre de résonances entre les deux niveaux.

E_2 , énergie de la dernière résonance.

E_1 , énergie de la première résonance.

L'histogramme donnant le nombre cumulé N de résonances, en fonction de l'énergie E , peut être ajusté à l'aide d'une régression linéaire.

L'équation de la droite ainsi obtenue n'est autre que :

$$N(E) = b + \frac{1}{\langle D_\ell \rangle} \cdot E \quad (\text{avec } b \text{ constante}) \quad (\text{II.46})$$

II.5.2 Distribution des espacements de niveau de Wigner

Les espacements extraits expérimentalement entre les résonances ne sont cependant ni répartis régulièrement ni distribués aléatoirement. Il est donc important d'étudier leur distribution. Cette étude nécessite de connaître chacun d'eux et non seulement la valeur moyenne, ce qui signifie connaître tous les niveaux excités du noyau composé. Ces derniers sont représentés par des valeurs propres de l'hamiltonien régissant l'interaction neutron-noyau. Comme cet hamiltonien n'est pas connu, des hypothèses ont été faites sur la distribution des éléments de matrice représentant cet hamiltonien.

Wigner a trouvé que la distribution des espacements pour une famille de résonances qui sont de même spin et parité, s'exprime par :

$$p(x) \cdot dx = \frac{\pi}{2} \cdot x \cdot e^{-\frac{\pi}{4}x^2} \cdot dx \quad (\text{II.47})$$

avec $x = \frac{D}{\langle D \rangle}$, espacement réduit.

La valeur moyenne et la variance de cette distribution sont :

$$\langle x \rangle = 1 \quad (\text{II.48})$$

$$\text{var}(x) = \left(\frac{4}{\pi} - 1 \right) \quad (\text{II.49})$$

D'où l'incertitude sur l'espacement moyen pour N résonances observées :

$$\frac{\Delta \langle D \rangle}{\langle D \rangle} = \sqrt{\frac{1}{N} \left(\frac{4}{\pi} - 1 \right)} \quad (\text{II.50})$$

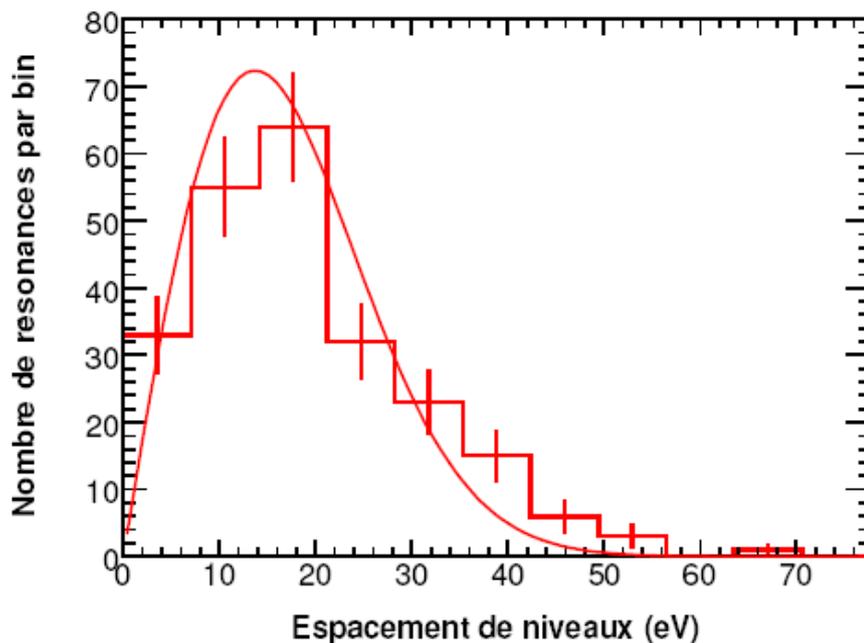


FIG. II.7 – Distribution expérimentale observée des espacements de ^{232}Th et comparaison à la loi de Wigner calculée pour $\langle D \rangle = 17,2$ eV [54].

ainsi que la valeur de l'espacement le plus probable :

$$D_m = \langle D \rangle \sqrt{\frac{2}{\pi}} \quad (\text{II.51})$$

L'expression II.47 est connue sous le nom de loi de Wigner ou loi de répulsion de niveaux puisque la probabilité d'avoir des espacements petits (des niveaux très proches) est faible.

Cette distribution tend vers zéro pour des valeurs de x proches de zéro : on parle alors d'un phénomène qui s'appelle « repoussement de niveaux ». Si un niveau manque entre deux niveaux observés, l'espacement observé est plus grand, et deux espacements plus petits ne sont alors pas observés. La figure II.7 présente la distribution expérimentale observée des espacements pour les résonances d'onde s comparée avec celle provenant de la loi de Wigner pour $\langle D \rangle = 17,2$ eV.

II.5.3 Distribution des largeurs neutroniques réduites de Porter et Thomas

Harvey et Hughes [55] sont les premiers à avoir donné une loi de distribution des largeurs neutronique à partir des résultats de 14 noyaux. Une analyse plus détaillée par la méthode du maximum de vraisemblance permet à Porter et Thomas [53] de déterminer que les amplitudes $\gamma_{\lambda n}$ sont distribuées selon une gaussienne de valeur

moyenne nulle et qu'une telle distribution doit résulter de la complexité des interactions dans un noyau composé lourd.

II.5.3.1 Largeurs neutroniques réduites

La distribution des largeurs neutroniques réduites autour de leur valeur moyenne suit une loi en χ^2 à 1 degré de liberté, appelée loi de Porter et Thomas :

$$\chi^2(x) \cdot dx = \frac{1}{\sqrt{2\pi x}} \cdot e^{-\frac{x}{2}} \cdot dx \quad (\text{II.52})$$

avec $x = \Gamma_{\lambda n}^\ell / \langle \Gamma_{\lambda n}^\ell \rangle$

Cette loi doit être encore valable pour les autres amplitudes partielles, à condition de négliger les petites transitions finales, c'est à dire en considérant que la transition primaire emporte la quasi-totalité de l'énergie d'excitation.

II.5.3.2 Largeurs radiatives

Dans le cas d'une capture radiative, le noyau composé se désexcite par émission γ . Il atteint son état fondamental après une ou plusieurs transitions. À chaque transition primaire correspond une voie de sortie et une largeur radiative partielle, la largeur radiative totale étant la somme des largeurs radiatives partielles.

Si la distribution de ces dernières suit une loi en χ^2 à ν degrés de liberté (loi de Porter et Thomas généralisée) :

$$\chi^2(x, \nu) \cdot dx = \frac{\frac{\nu}{2}}{\Gamma\left(\frac{\nu}{2}\right)} \left(\frac{\nu}{2}x\right)^{\frac{\nu}{2}-1} e^{-\frac{\nu}{2}x} \cdot dx \quad (\text{II.53})$$

avec

Γ fonction gamma et

$$x = \frac{\gamma_{\lambda c}^2}{\langle \gamma_{\lambda c}^2 \rangle} = \frac{\Gamma_{\lambda c}}{\langle \Gamma_{\lambda c} \rangle} (c \neq n) = \frac{\Gamma_{\lambda n}^\ell}{\langle \Gamma_{\lambda n}^\ell \rangle} (\text{pour } \nu = 1) \quad (\text{II.54})$$

Les grandeurs caractéristiques de cette distribution sont :

$$\langle x \rangle = 1 \quad (\text{II.55})$$

$$\text{var}(x) = \frac{2}{\nu} \quad (\text{II.56})$$

La valeur la plus probable étant :

$$x_m = 1 - \frac{2}{\nu} \quad (\text{II.57})$$

Plus le nombre ν de voies de sortie α est grand et plus la dispersion autour de la valeur moyenne sera faible.

La largeur radiative $\Gamma_{\lambda\gamma}$ est en fait la somme des largeurs $\Gamma_{\lambda\gamma f}$ associées aux transitions gamma primaires entre l'état λ et un état final f vérifiant chacune la loi de Porter et Thomas :

$$\Gamma_{\lambda\gamma} = \sum_f \Gamma_{\lambda\gamma f} \quad (\text{II.58})$$

Le nombre possible d'états finaux f étant très élevé dans le cas d'un noyau lourd tel que l'uranium, on s'attend donc à ce que :

$$\Gamma_{\lambda\gamma} \simeq \langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle \quad (\text{II.59})$$

Le nombre de niveaux d'énergie inférieure au premier niveau μ , au dessus de l'énergie de séparation du neutron est nettement supérieur à celui des niveaux compris entre μ et λ . De manière qualitative, la largeur radiative est donc attendue constante :

$$\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle \simeq \langle \Gamma_{\mu\gamma} \rangle \simeq \text{constante} \quad (\text{II.60})$$

II.6 Conclusion

Nous avons décrit brièvement les aspects théorique de la section efficace neutronique

Dans l'analyse des résonances de section efficace, le rendement est paramétrisé au moyen de théorie de réaction nucléaire. Dans les régions thermique et des résonances résolues, la théorie de matrice-R est la plus adéquatement utilisée. Les paramètres de ce modèle sont les niveaux d'énergie, spins et les largeurs partielles.

L'avantage de l'utilisation de formalisme de matrice-R pour décrire les données de section efficace réside dans le nombre réduit de paramètres requis pour décrire la section efficace sur une grande gamme d'énergie aussi bien que pour assurer l'uniformité avec les contraintes physiques [44].

Dans la suite de notre étude nous utiliserons l'approximation de Reich-Moore de cette théorie qui est parfaitement adaptée à notre cas.

Nous ferons également l'analyse statistique des paramètres des résonances au moyen des outils présentés dans ce chapitre.

Chapitre III

L'installation n_TOF du CERN

Le but de cette partie est de décrire l'installation n_TOF au CERN : commençant par le faisceau de protons, source de production des neutrons par spallation, les moniteurs et les détecteurs utilisés. Par la suite nous présenterons brièvement les performances de l'installation. Enfin, nous terminerons par une comparaison avec les centres similaires existants de par le monde.

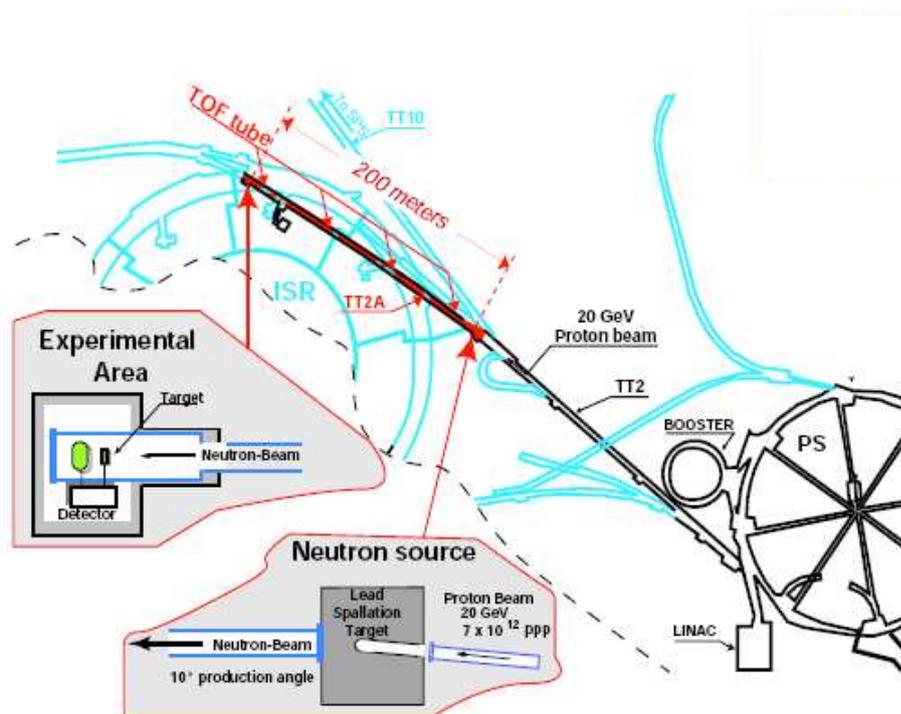


FIG. III.1 – Vue générale de l'installation n_TOF du PS à l'aire expérimentale avec un détail sur l'aire expérimentale et sur la cible de spallation [56] et [57].

III.1 Le démarrage de projet n_TOF

L'installation découle de l'idée de C. Rubbia *et al.* [58] de l'utilisation d'un faisceau de protons de haute énergie fourni par le Proton Synchrotron (PS) du CERN. n_TOF utilise une source de neutrons, qui provient de la réaction de spallation, d'énergies réparties sur une large spectre. Ce projet est inscrit dans le cadre des mesures les données manquantes relatives aux cycles du futur, à la transmutation et l'amplificateur d'énergie.

Entre avril 1996 et mai 1997 au CERN, une expérience appelé TARC "Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing" a été réalisée pour déterminer l'efficacité des ADS comme incinérateur de déchets nucléaires, en particulier les produits de fission à durée de vie longue. TARC laissa une grande quantité de plomb très pur (d'impureté dominée par 19 ppm de Bi [59, 60, 61, 62, 63]) et disponible au CERN.

L'existence d'un tunnel de 200 m pour la base de vol et d'une grande quantité de plomb pur (de l'expérience de TARC) pour la cible de spallation a rendu le projet faisable sur un programme à court terme et à un coût raisonnable. La disposition générale est montrée dans la figure III.1.



FIG. III.2 – Ligne de faisceau de protons.

Les caractéristiques prometteuses de cette nouvelle installation ont attiré une grande communauté de physiciens qui ont formé une collaboration recueillant 145 chercheurs de 40 pays, pour un programme essentiellement consacré à l'astrophysique (section efficace pour la nucléosynthèse) et aux mesures des sections efficaces liés aux cycles du

futur (thorium et uranium), aux ADS et à la transmutation des déchets nucléaires.

III.2 Le faisceau de protons

Le faisceau de protons est délivré grâce à l'association de l'accélérateur linéaire (LINAC) et l'accélérateur circulaire (voir la figure III.1), le proton synchrotron (PS) du CERN muni d'un préaccélérateur (Booster) et porté jusqu'à la cible de spallation par une ligne de transfert (TT2 voir la figure III.2). Les caractéristiques principales de ce faisceau sont :

- les protons sont accélérés jusqu'à 20 GeV/c sous forme de paquets séparés de 1,2 s au minimum.
- Chaque paquet de 7×10^{12} protons est concentré sur un temps très court de 7 ns.
- Le PS fournit jusqu'à 5 paquets contenant entre 10^{12} et 10^{13} protons par supercycle d'environ 16,8 s.

Deux modes d'opérations sont possibles [64] : le mode dédié à n-TOF et le mode parasite.

Dans le mode dédié, les paquets de protons sont envoyés vers n-TOF avec une intensité nominale de 7×10^{12} sur un temps de 7 ns (comme largeur d'impulsion). Ce mode permet le bon fonctionnement dans la qualité du faisceau à savoir l'intensité maximale de chaque paquet délivré.

Tandis que dans le mode parasite, l'intensité nominale est réduite vers 3 à 4×10^{12} protons par paquet avec la même distribution temporelle.

Pour que le système d'acquisition puisse purger les données vers les serveurs, on souhaite une période moyenne de plus de 2,4 s pour chaque paquet. Le nombre maximum de paquets acceptable par supercycle est lié également à la puissance maximale dissipée dans la cible de plomb et au niveau de radiation dans la zone de la cible. Un maximum de 5 paquets de protons par supercycle dédiés à n-TOF est ainsi imposé. En général, la période du supercycle varie au cours du temps, pour cela le nombre maximal admissible est de l'ordre de 5 paquets/(14 cycles de 1,2 s).

III.3 Cible de spallation

III.3.1 La cible de plomb

La source de neutrons de n-TOF se compose d'une cible de spallation consistant en un bloc de plomb dont la géométrie est un compromis entre plusieurs paramètres :

- intensité de flux de neutrons
- résolution en énergie
- taille, propreté (pas de halo ou de pénombre) et homogénéité du faisceau dans la zone expérimentale.

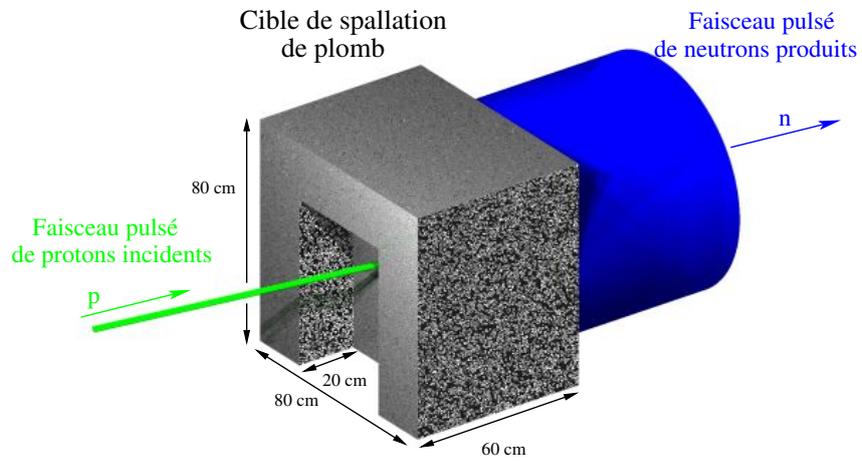


FIG. III.3 – La cible spallation de l'installation n_TOF.



FIG. III.4 – Photo de la cible de spallation avec le système de refroidissement.

Le paramétrage de la cible a été étudiée en détail par des simulations Monte-Carlo utilisant notamment les codes EAMC [65] et FLUKA [66]. Ces simulations concernaient également le modérateur entourant la cible de plomb (eau) ainsi que toutes les parties mécaniques et le coffre de la cible. Cette épaisseur d'eau modère les neutrons sortant du plomb tout en refroidissant la cible, facteur primordial d'une expérience de temps de vol. La cible de spallation est donc un bloc de plomb de volume total de $80 \times 80 \times 60$ cm³ entourée de 6 cm d'eau déminéralisée. Le faisceau de proton arrive avec un angle d'incidence de $\theta = 10^\circ$ afin d'éviter la contamination du faisceau de neutrons par les particules chargées de hautes énergies et les particules γ créés lors de la spallation (figure III.3). Une fenêtre en aluminium sépare l'eau du tube à vide (10^{-4} bar).

La cible de spallation a été montée en un assemblage de neuf blocs, chaque bloc était de dimension $30 \times 30 \times 60$ cm³ pour une masse de 600 kg, sur trois étages de trois blocs chacun. Le bloc central et celui du dessous sont creusés sur 20 cm de profondeur, 55 cm de hauteur et de 30 cm de largeur.

III.3.2 Interface entre modérateur et tube à vide

L'interface reliant le modérateur au tube à vide du temps de vol est une fenêtre en aluminium de 800 mm de diamètre et 1,6 mm d'épaisseur, renforcée par une grille également en aluminium et de 100 mm de côtés, 5,5 mm d'épaisseur et 50 mm de profondeur.

La fenêtre elle-même représente une partie critique du projet. D'une part elle doit être assez solide pour séparer l'eau du vide (différence de pression = 1,2 bar) et pour rester plate (déflexion maximale permise au centre est inférieure de 2 mm) afin de garantir une modération constante de l'eau de 6 cm, n'affectant donc pas la résolution en énergie. D'autre part elle doit être aussi légère que possible pour éviter la diffusion de neutrons et réalisée dans un matériau minimisant l'absorption des neutrons. En outre, elle devrait être résistante aux radiations puisque le taux de dose accumulé en un an pourrait atteindre 10^6 Gray dépendant de la période de mesure.

III.4 Processus de modération

La dissipation thermique dans la cible atteint un maximum de 10 kW pour un envoi de 5 paquets de protons en mode dédié sur un temps de 16,8 s. Le système de refroidissement a été conçu pour les conditions nominales définies dans la proposition, à savoir 5 paquets de 7×10^{12} protons chaque supercycle de 16,8 s.

La température à l'intérieur de la cible et la chaleur externe de la cible ont été simulées pour un écoulement d'eau de 6 l/s à une température de 30°C. Le résultat est représenté sur le schéma III.5. La cible de plomb est plongée dans une piscine avec une circulation d'eau dans une boucle fermée nécessaire à la dissipation de la chaleur, de manière à maintenir la cible à 50 °C en conditions d'utilisation et à éviter qu'elle ne dépasse pas 140°C (la température de fusion du plomb est d'environ 330°C). Au taux

maximum de protons admis, les simulations montrent qu'elle ne dépassait pas 90°C [67, 68].

Les neutrons produits par la réaction de spallation plus l'évaporation des noyaux chauds formés, ont des énergies supérieures à quelques centaines de keV. L'eau de refroidissement joue donc également le rôle de modérateur de neutrons, et permet ainsi d'étendre le spectre vers les énergies plus petites. Nous allons évoquer ce sujet dans la suite du chapitre en décrivant les performances de l'installation.

Pour éviter l'activation, le container est fabriqué à partir d'un alliage d'aluminium (ISO Al-Si1-Mg-Mn 6082). Sur la face d'entrée du faisceau de protons, une fenêtre cylindrique de 20 cm de diamètre 80 cm et épaisse de 2 mm est placée à 30 mm du plomb pour éviter toute interaction inutile entre le faisceau incident et l'eau du modérateur. Du côté de la sortie des neutrons, la distance entre la fenêtre de sortie et la cible de plomb est de 6 cm, fournissant la quantité nécessaire de l'eau pour la modération des neutrons. La référence [69] contient une description approfondie sur la cible et le système de refroidissement en tenant compte des exigences de sécurité.

Les caractéristiques de la cible et son système de modération ayant un impact sur la définition du faisceau de neutrons ont fait l'objet de simulations Monte-Carlo [57], permettant de caractériser le flux de neutrons, et d'optimiser la disposition des éléments que nous décrirons dans le paragraphe suivant.

III.5 Systèmes optiques de neutrons

Pour éviter la génération de bruit de fond dû à l'interaction des neutrons et des gammas avec les matériaux autres que l'échantillon à étudier, le faisceau de neutrons doit être collimaté avant d'entrer dans l'aire expérimentale.

III.5.1 Système de collimation

Les neutrons parcourent le tube à vide télescopique de 182,3 m de long avant d'arriver dans la zone expérimentale (voir figure III.6). Selon le diamètre, le tube est divisé en trois sections :

1. la première section de 70 m de long avec 80 cm de diamètre,
2. la seconde section de 68,4 m de long avec 60 cm de diamètre,
3. la troisième section de 61,4 m de long avec 40 cm de diamètre.

Le faisceau est de plus réduit par 2 collimateurs permettant d'obtenir un faisceau à 185 m de la cible dont le diamètre dépend du second collimateur. À noter que la collimation se règle en fonction des souhaits de diamètre de faisceau dans l'aire expérimentale qui dépend des expériences envisagées.

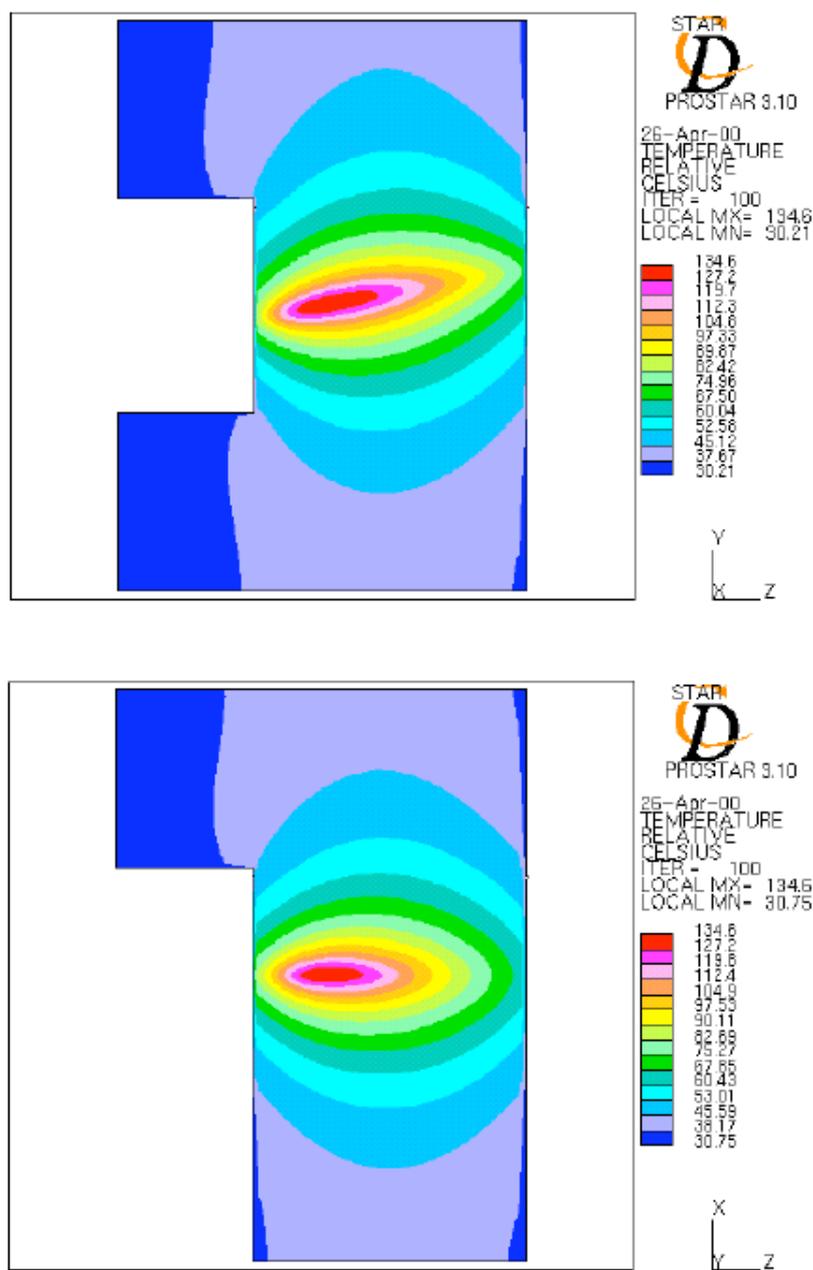


FIG. III.5 – La distribution de température dans la cible de plomb dont l'eau à pour vitesse de 6 l/s et une température de 30°C

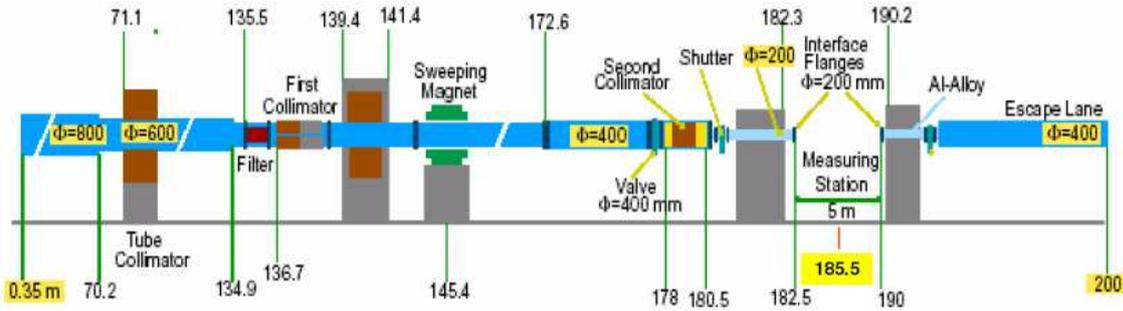


FIG. III.6 – Tube de faisceau de n_TOF après la cible de spallation (toutes les longueurs sont données à partir du centre de la cible).

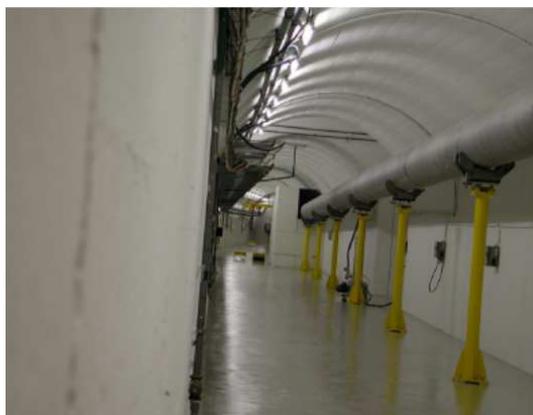
Le premier collimateur de 2 m de long et de 5,5 cm de rayon, est à 136,7 m de la cible. Ce collimateur est appelé « Source Screening Collimator » ou SSC car il joue le rôle d'écran vis à vis de la cible permettant à la fois de réduire l'extension radiale du faisceau et le nombre de neutrons heurtant le second collimateur. Il est constitué pour une moitié de métal et pour l'autre de béton permettant de diffuser efficacement tous les neutrons interceptés.

Le second collimateur est à 178 m de la cible avec une longueur de 2,5 m et un rayon de 0,9 cm pour les mesures de capture. Par contre pour les mesures de fission, il a un rayon de 4 cm, permettant ainsi de collecter plus de neutrons, l'épaisseur des dépôts de matière fissile étant faible pour permettre la sortie des produits de fission. Ce collimateur détermine plus directement la forme du faisceau et on l'appelle « Beam Shaping Collimator » ou BSC. Etant plus près de la zone expérimentale, il est une source de bruit potentielle. Pour éviter ce bruit, ce collimateur est fait des trois parties suivantes, 0,5 m de polyéthylène boré pour capturer les neutrons au dessous de 20 MeV, 2,25 m de métal pour diffuser et ralentir les neutrons de haute énergie et enfin 0,75 m de polyéthylène boré pour capturer les neutrons précédemment diffusés.

III.5.2 Les éléments de blindage

L'aimant de déviation : est situé après le premier collimateur pour éliminer toutes les particules chargées éventuelles accompagnant le faisceau de neutrons.

Blindages en fer et de béton : D'autres éléments de blindage ont aussi été rajoutés à l'extérieur du faisceau afin de réduire le bruit de fond. Chaque réduction du tube est blindée par du fer de 2 m de long tandis que des murs de 3 m de béton sont placés derrière chaque collimateur. Par la suite 3 m de fer ont également été rajoutés après l'aimant suite à la campagne de caractérisation pour s'affranchir d'un bruit de fond dû essentiellement aux muons.



(a) Premier ($\text{\O}80$ cm) et deuxième ($\text{\O}60$ cm) segment du tube à vide



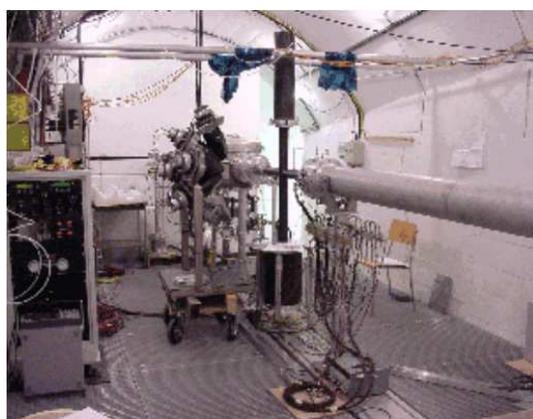
(b) Aimant de déviation



(c) Blindage en fer



(d) Deuxième collimateur



(e) L'aire expérimentale



(f) Ligne d'échappement des neutrons

FIG. III.7 – Les photos de différentes zones du tube de n_TOF.

III.6 L'aire expérimentale

L'aire expérimentale ou station de mesure est située après une chicane en béton de 3,2 m d'épaisseur située juste après le second collimateur. Elle débute à 182,5 m après la cible et s'étend jusqu'à 190 m. Dans cette partie, il y a les moniteurs et les détecteurs. Au niveau de ces derniers il y a des brides de 20 cm de diamètre associées chacune à une vanne. Ces vannes sont automatiquement fermées en cas d'accès en zone, mais leur état (ouvert/fermé) doit être contrôlée avant toute mesure. Le vide maintenu se situe entre $1,4 \cdot 10^{-1}$ et $3 \cdot 10^{-2}$ mbar.

III.7 Ligne d'échappement des neutrons

Après l'aire expérimentale et au delà de 190 m, un bloc de béton en chicane sépare la station de mesure et cette partie du tube de n_TOF, il marque ainsi le début de la ligne d'échappement. Cette zone est utilisée pour éviter la rétrodiffusion de neutrons dans l'aire expérimentale. Au delà de 190 m, les neutrons sont absorbés au bout de 10 m par un dispositif riche en polyéthylène boré. Le vide est de l'ordre du mbar.

III.8 Techniques expérimentales

III.8.1 Les moniteurs de faisceau de neutrons

Différents détecteurs et techniques pour mesurer et monitorer le flux de neutrons dans l'aire expérimentale, EAR-1, sont utilisés. De telles mesures sont basées sur des réactions dont les sections efficaces sont considérées comme standard [70]. Par exemple, $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ et $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ sont considérées comme standards du domaine thermique jusqu'à 250 keV et à 1 MeV respectivement. La réaction $^{235}\text{U}(n,f)$ est standard dès le thermique jusqu'à 20 MeV. Dans le domaine des hautes énergies, il est possible de déterminer le flux par les réactions $^{238}\text{U}(n,f)$ et $^{209}\text{Bi}(n,f)$, qui sont standards de 1-200 MeV et 35-130 MeV respectivement. Les détecteurs utilisés à n_TOF pour ce but sont :

Détecteur MicroMegas de n_TOF : [71, 72, 73] Un des paramètres importants de la détermination des sections efficaces neutroniques est la connaissance de la distribution spatiale du faisceau de neutrons dans la zone expérimentale en fonction de l'énergie. Pour ce faire un détecteur de type Micromégas a été utilisé avec un mélange de gaz constitué d'isobutane et d'argon (ou d'hélium). Les neutrons incidents interagissent avec un dépôt de ^6Li disposé sur la face d'entrée du détecteur suivant la réaction $^6\text{Li}(n,^3\text{H})\alpha$. Les tritons et les particules α créés ionisent le gaz. Les électrons ainsi produits seront, après dérive, collectés et multipliés vers la zone d'amplification. Les reculs de l'hydrogène (de l'isobutane C_4H_{10}) et de l'hélium ont permis aussi de déterminer le profil du faisceau de n_TOF jusqu'à plusieurs MeV.

Moniteurs de silicium (SiMON) : [74, 75] c'est un assemblage de quatre détecteurs silicium placés hors faisceau avec un angle de 45° . Ils détectent les particules α et les tritons créés par l'interaction des neutrons du faisceau avec un dépôt de ${}^6\text{LiF}$ de $200 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ déposé sur une feuille de Mylar de $3 \mu\text{m}$ d'épaisseur et de 6 cm de diamètre placée perpendiculairement au faisceau.

Compteurs de BF_3 : [76] Placés au bout de la ligne d'échappement, entourés de polyéthylène pour thermaliser les neutrons. Ce dispositif est constitué de 3 cylindres remplis de BF_3 enrichi à 80% de ${}^{10}\text{B}$. Ils nous permettent de vérifier l'intensité du faisceau de neutrons incidents.

III.8.2 Détection des rayons γ

Détecteurs C_6D_6 : [54, 77, 78, 79] sont des scintillateurs liquides, benzène deutéré, couplés à des photomultiplicateurs, pour les mesures de sections efficaces de capture, ils détectent donc des rayonnements γ . Ils permettent aussi d'obtenir une caractérisation du flux de neutrons à partir des réactions de référence ${}^{197}\text{Au}(n,\gamma){}^{198}\text{Au}$ et ${}^{56}\text{Fe}(n,\gamma){}^{57}\text{Fe}$.

Détecteurs au germanium : [80] sont utilisés pour la spectroscopie γ grâce à leur haute résolution en énergie. Ils se caractérisent par une grande sensibilité aux neutrons qui rendent les mesures de sections efficaces des réactions (n,xn) néanmoins possibles. Ils ont été utilisés à n_TOF dans le cadre de tests.

Détecteurs de BaF_2 : ou Total Absorption Calorimeter [81, 82], sont décrits plus en détail dans le chapitre suivant. Le TAC est utilisé pour les mesures de sections efficaces de capture. Ce sont des cristaux reliés à des photomultiplicateurs qui permettent de mesurer l'énergie totale de la cascade γ .

III.8.3 Fission

Les chambres à ionisation : [67, 83, 84] fournis par le PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) formées de deux plaques parallèles identiques utilisées avec un dépôt de matière fissile un avec ${}^{235}\text{U}$ et l'autre avec ${}^{238}\text{U}$, cibles de référence jusqu'à 20 MeV. Elles ont été utilisées pour déterminer la distribution du flux de neutrons.

Les chambres à avalanches à plaques parallèles PPAC : ou Parallel Plate Avalanche Counters [85, 86, 87], ce sont des détecteurs à gaz conçus et construits à l'IPN (Institut de Physique Nucléaire) d'Orsay. Elles permettent la localisation en plus l'estimation précises de l'instant du passage de particules chargées (α et produits de fission). Elles sont utilisées à n_TOF pour les mesures de sections efficaces de fission et également pour la mesure du flux de neutrons, grâce aux isotopes ${}^{235}\text{U}$ et ${}^{238}\text{U}$ qui ont des sections efficaces de fission considérées standards.

La chambre de fission FIC : [88, 89, 90, 91] ou Fission Ionisation Chamber, chambre à ionisation formée de 90% d'argon et de 10% de CF_4 a été installée dans le faisceau, a également été utilisé pour des mesures de fission.

III.9 Performances du dispositif

III.9.1 Méthode du temps de vol

Principe : La méthode du temps de vol est couramment utilisée, son but est de mesurer les spectres de neutrons sur une certaine gamme d'énergie. Pour extraire l'énergie cinétique du neutron, il suffit de mesurer le temps de vol ou le temps mis par le neutron pour parcourir la distance entre sa source et le lieu de son interaction.

L'énergie cinétique E du neutron se déduit grâce à sa relation entre le temps de vol T mis par ce dernier, de masse m , pour parcourir une distance L :

$$E = mc^2 \left(\frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} - 1 \right) \text{ avec } \beta = \frac{v}{c} = \frac{L}{cT} \quad (\text{III.1})$$

avec

v vitesse du neutron

c vitesse de la lumière

Pour des énergies cinétiques inférieures à quelques centaines de keV, comme dans le cas de nos mesures, les neutrons sont non-relativistes, qui se traduit par $\beta \ll 1$. L'équation III.1 se simplifie en :

$$E = \frac{1}{2} m \left(\frac{L}{T} \right)^2 \quad (\text{III.2})$$

Prenant les valeurs précises, à savoir :

– vitesse de la lumière : $c = 299,792458 \text{ m}/\mu\text{s}$

– masse du neutron : $m = 939,56563 \text{ MeV}/c^2$

on obtient, avec E en eV, L en m et T en μs :

$$E = 5227,038754 \left(\frac{L}{T} \right)^2 = \left(72,298262 \cdot \frac{L}{T} \right)^2 \quad (\text{III.3})$$

Mesure du temps de vol :

Pour chaque impulsion du faisceau de protons, un signal (le pretrigger) émis lors de l'accélération des protons réinitialise toute l'acquisition. L'acquisition se déclenche à l'instant t_{PS} (correspond à l'instant 0 pour le système d'acquisition) où lui est envoyé ce signal. Dès que l'impulsion de protons atteint la cible de plomb, les neutrons, créés peu après à l'instant t_0 , parcourent la distance de vol L et sont détectés à l'instant t_n .

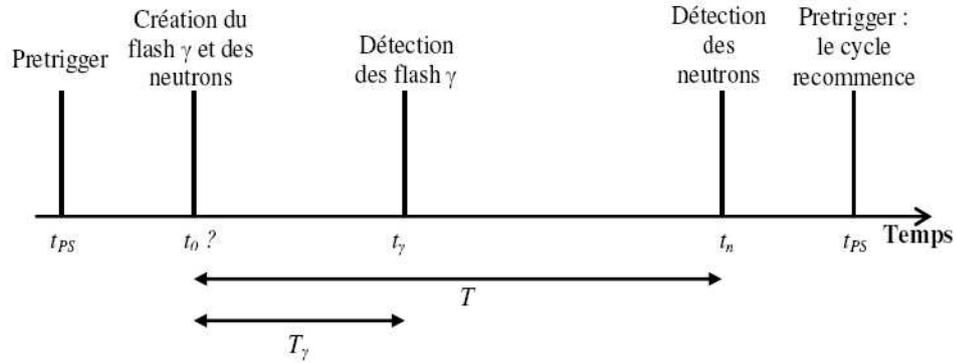


FIG. III.8 – Représentation schématique de la succession des signaux intervenant dans la mesure du temps de vol des neutrons à n-TOF, pour chaque impulsion de protons.

Donc La valeur $T = t_n - t_0$ représente le temps de vol des neutrons.

L'instant t_n est très bien connu grâce aux détecteurs placés de part et d'autre de l'échantillon dans l'aire expérimentale. Toutefois, on ne connaît pas exactement l'instant de création des neutrons, postérieur à t_{PS} .

on utilise pour cela l'intense rayonnement, appelé « flash gamma », crée lors de l'interaction du faisceau de protons avec la cible de spallation au même moment que les neutrons. Le « flash gamma » est détecté, à une distance L de la cible de plomb, par les détecteurs placés au niveau de l'aire expérimentale à l'instant t_γ . L'instant de création du flash gamma et donc des neutrons est $t_0 = t_\gamma - T_\gamma$, où T_γ est le temps mis par la lumière pour parcourir la distance L , soit $t_0 = t_\gamma - \frac{L}{c}$.

Ainsi, la valeur du temps de vol d'un neutron est :

$$T = t_n - t_\gamma + \frac{L}{c} \quad (\text{III.4})$$

La figure III.8 représente un schéma d'occurrence des différents signaux à partir desquels la mesure du temps de vol des neutrons est effectuée. En fonction de leur énergie, les neutrons arriveront à des instants t_n différents sur le détecteur : les plus rapides en premier, les plus lents en dernier. Notons qu'il n'y a pas de recouvrement possible entre les neutrons de basse énergie issus d'une impulsion de protons et les neutrons de haute énergie issus de l'impulsion de protons suivante.

III.9.2 Résolution en énergie de neutrons

Les équations (III.2,III.3) montrent que, indépendamment de l'effet Doppler, la résolution en énergie des mesures en temps de vol est affectée par toute incertitude expérimentale relative à la distance ou au temps de vol mesuré. L'incertitude relative

sur l'énergie est déduite facilement de l'équation (III.3) :

$$\frac{\Delta E}{E} = 2\sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2} \quad (\text{III.5})$$

soit, en utilisant les unités précédentes pour le temps (en μs) et l'énergie (en eV) :

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{2}{L} \cdot \sqrt{\frac{E}{5227,038754} \cdot \Delta t^2 + \Delta L^2} \quad (\text{III.6})$$

L'équation (III.5) est une approximation du fait que la résolution en longueur et en temps de vol n'est pas gaussienne (voir la figure III.9). La résolution réelle, que nous expliciterons dans le chapitre 6 dédié à l'analyse, a été calculée avec SAMMY par des convolutions des distributions des différentes composantes.

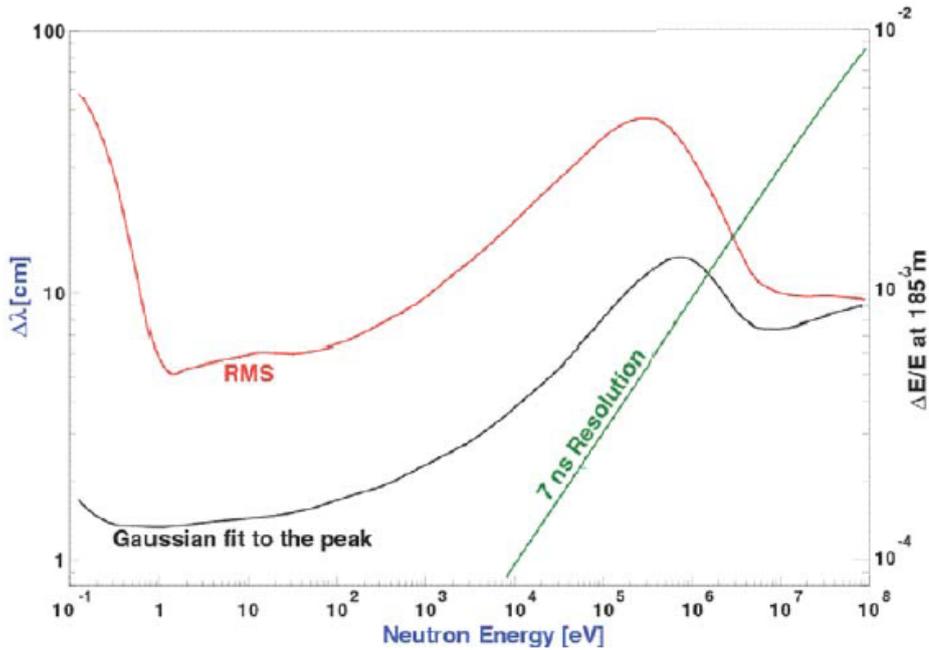


FIG. III.9 – Simulation Monte-Carlo de la résolution en énergie à 185 m.

La résolution en énergie, dans une expérience de temps de vol, dépend principalement de trois facteurs : la largeur d'impulsion du faisceau de protons qui est, pour l'installation n_TOF, une gaussienne de 7 ns de largeur à mi-hauteur, l'incertitude sur la longueur de parcours de modération des neutrons, et la précision temporelle des détecteurs utilisés. Le premier paramètre est fixé et indépendant des autres. Le troisième facteur fait référence à la contribution du système de détection à la résolution, que nous expliciterons en étudiant précisément notre calorimètre. A propos du second, un neutron d'énergie donnée en sortie de la cible avec une vitesse v a passé un certain temps dit de modération t_{mod} dans l'ensemble cible-modérateur. La longueur du

parcours de modération noté λ est égale au produit $v \times t_{mod}$ et si on suppose $\Delta\lambda$ l'incertitude sur la distance parcourue. Ce dernier permet une estimation de l'incertitude $\Delta E/E$ sur la mesure de l'énergie. En effet, La résolution en énergie associée est donnée par :

$$\frac{\Delta E}{E} = 2 \times \frac{\Delta\lambda}{\lambda + L} \quad (\text{III.7})$$

Ainsi plus la distance de vol des neutrons est grand, meilleure est la résolution en énergie. La figure III.9 représente le résultat des simulations donnant l'évolution de ces incertitudes en fonction de l'énergie. La résolution est dominée par l'incertitude sur la longueur de parcours de modération des neutrons au dessous de 1 MeV. Au dessus de cette énergie, c'est la largeur d'impulsion du faisceau de protons qui devient prépondérante.

III.9.3 Flux de neutrons

Le flux de neutrons correspond au nombre de neutrons incidents en fonction de leur énergie. Ce flux a été simulé à 185 m en utilisant les codes EAMC ($E_n < 19,6$ MeV) et FLUKA ($E_n > 19,6$ MeV), et en prenant en compte tous les éléments influençant le flux : la cible de plomb, l'eau déminéralisée, la fenêtre en aluminium, le tube à vide et les collimateurs [92, 93]. Plusieurs systèmes de détection ont été mis à disposition pour mesurer le flux de n_TOF et ont été décrits précédemment.

Une série de mesures a été réalisée afin de déterminer le flux de neutrons dans l'aire expérimentale. Les premières mesures ont été faites pendant la phase de « commissioning » avec les détecteurs de PTB. Les autres mesures sont réalisées avec le SiMON, les C_6D_6 et les PPACs. Toutes les mesures sont faites avec la configuration de mesure de capture, c'est-à-dire avec le second collimateur de 1,8 cm de diamètre. Un résumé des résultats obtenus est présenté sur la figure III.10.

La figure III.11 montre la mesure de flux de neutrons avec les chambres à fission de PTB. A basse énergie, l'effet modérateur est bien observé, représenté par le pic et qui correspond à la thermalisation des neutrons par l'eau. Entre 1 eV et 10 keV, le flux suit un comportement isoléthargique, c'est-à-dire que le flux est proportionnel à $1/E$, soit en unités logarithmiques, le flux est constant. Les résonances à 30 keV, 100 keV et 200 keV présentent les absorptions de l'aluminium de la fenêtre de sortie de cible. Les résonances autour de 500 keV et 1 MeV sont dues à l'oxygène du modérateur. Dans la région du MeV, le pic est dû à la phase d'évaporation de la réaction de spallation.

III.10 Comparaison avec les autres installations dans le monde

Nous comparerons, dans ce qui suit, les performances des quatre installations les plus connues dans le monde pour la mesure des sections efficaces différentielles d'inter-

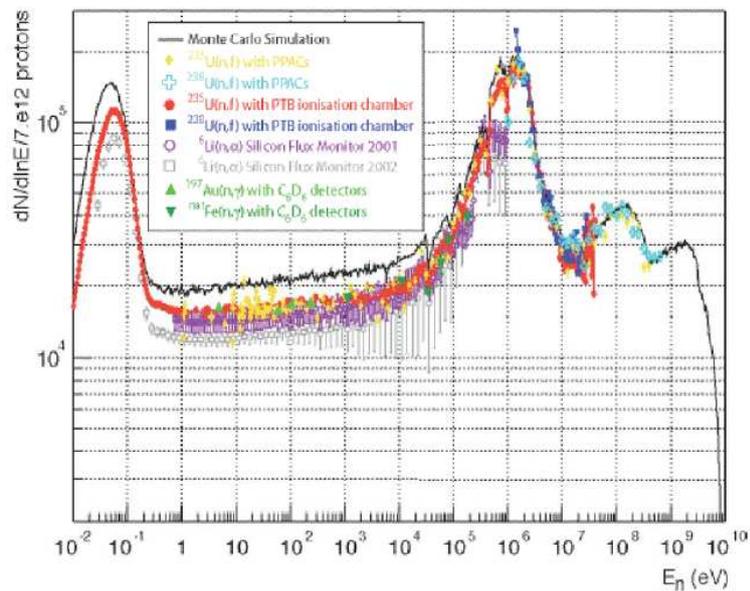


FIG. III.10 – Flux non normalisé de neutron dans (EAR-1) mesuré avec les différentes techniques expérimentales. Une comparaison est présentée avec les simulations Monte Carlo.

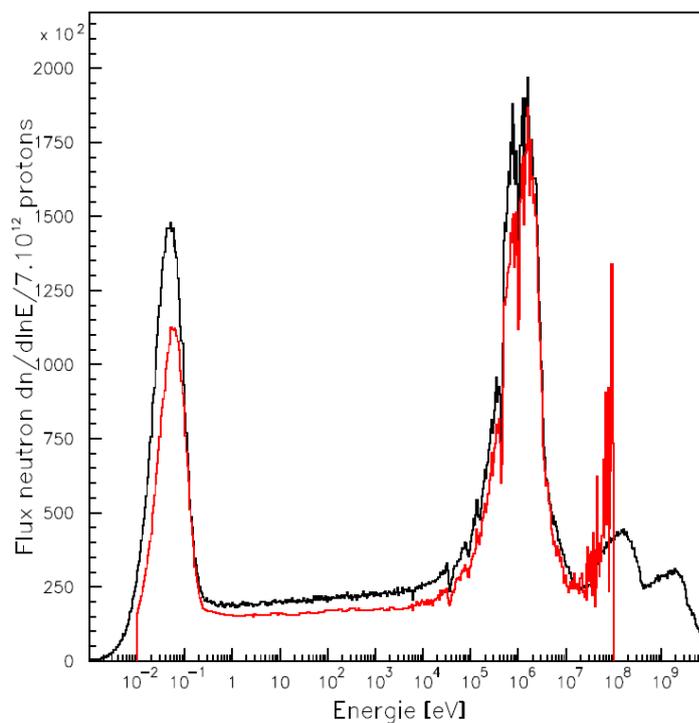


FIG. III.11 – Flux de neutron mesuré (en rouge) par les chambres à fission de PTB utilisant l' ^{235}U comparé avec celui simulé dans la zone expérimentale (en noir).

action neutron-noyau :

- GELINA : Geel Electron LINac Accelerator à l'IRMM de Geel en Belgique,
- LANSCE : Los Alamos Neutron Science Center aux États Unis,
- ORELA : Oak Ridge Electron Linear Accelerator à l'ORNL d'Oak Ridge aux États Unis,
- n_TOF : au CERN à Genève en Suisse.

Quelques critères dépendent de la distance de la mesure. Nous avons choisi les bases de vol les plus utilisés sur ces installations : GELINA : 30 m, ORELA : 40 m, LANSCE : 20 m, n_TOF : 185 m. En outre, au sujet du n_TOF, nous considérons le mode actuel correspondant à une opération continue au cours de l'année.

TAB. III.1 – Comparaison de n_TOF avec d'autres installations

Installation Paramètres	ORELA	GELINA	LANSCE	n_TOF
$\Delta t(ns)$	8	1,6	125	7
T	1,9 ms	1,25 ms	50 ms	14,4 s
$L(m)$	40	30	20	185
Domaine d'énergie	1eV-3MeV	1eV-3MeV	1eV-3MeV	1eV-250MeV
$\Phi(n/cm^2/s)$	$2,0 \cdot 10^4$	$1,7 \cdot 10^4$	$4,6 \cdot 10^6$	$0,65 \cdot 10^4$
$L^2\Phi(n/s)$	$3,2 \cdot 10^{11}$	$1,5 \cdot 10^{11}$	$1,8 \cdot 10^{13}$	$2,2 \cdot 10^{12}$
$\Phi T/\tau(n/cm^2/s)$	$4,2 \cdot 10^5$	$3,1 \cdot 10^5$	$5,0 \cdot 10^9$	$2,0 \cdot 10^8$
$L^3\Phi T/\tau(n.m/s)$	$2,7 \cdot 10^{14}$	$8,3 \cdot 10^{13}$	$3,9 \cdot 10^{17}$	$1,2 \cdot 10^{19}$
$\Delta E/E _{1keV}$	$1,0 \cdot 10^{-3}$	$1,6 \cdot 10^{-3}$	0,005	$0,46 \cdot 10^{-3}$
$\Delta E/E _{100keV}$	$2,7 \cdot 10^{-3}$	$3,0 \cdot 10^{-3}$	0,05	$1,7 \cdot 10^{-3}$

Plusieurs critères peuvent être considérés :

- Domaine d'énergie des neutrons : à ORELA et GELINA, les énergies les plus élevées atteintes sont celles produites par le processus de fission puis d'évaporation.
- Flux moyen des neutrons : cette quantité, Φ , est le nombre de neutrons moyen par cm^2 et par seconde pour une gamme d'énergie donnée. Nous avons choisi la gamme de 1 keV à 300 keV. Au-dessus de 300 keV, la comparaison serait plus en faveur de n_TOF. Le flux moyen détermine le temps requis pour atteindre une précision statistique donnée dans la mesure de section efficace. Naturellement il dépend de la longueur de vol L et décroît comme L^{-2} .
- Luminosité moyenne : cette quantité est égale à $\Phi T/\tau_n$ pour une gamme d'énergie et indépendante de L . Il correspond à la luminosité intrinsèque de la source.
- Flux par impulsion : cette quantité est égale à $\Phi L^2/\tau_n s$ avec T la période de répétition des impulsions d'électrons ou de protons et τ_n le temps de déversement de neutrons. Il est très important pour les échantillons radioactifs parce qu'il

contrôle le rapport (signal/bruit de fond). En effet, plus le τ_n est petit plus le niveau de bruit de fond est petit. Pour une gamme d'énergie donnée, τ_n est proportionnel à L , donc le flux par impulsion est en L^{-3} . Pour une installation, T peut croître par la suppression d'une impulsion mais le produit ΦT reste constant. Cela montre que le flux par impulsion est une caractéristique de l'installation et de la distance de vol.

- Luminosité par impulsion : est $L^3\Phi T/\tau_n$ qui, d'après la remarque précédente, est indépendant de L et est caractéristique de la source. C'est le nombre total de neutrons sortant de la cible de spallation par unité d'angle solide.
- Résolution en énergie : la résolution en énergie dépend de l'incertitude expérimentale relative à la longueur de vol ΔL et du temps de vol Δt (voir équation (III.6)). À haute énergies Δt domine la résolution et à basse énergie, ΔL est dominant. Pour les installations existantes utilisant des cibles denses, ΔL est approximativement constant dans la région du keV (FWHM : « Full Width at Half Maximum » ou largeur à mi-hauteur ≈ 2 cm). Dans le cas de n_TOF, due à une taille large de cible, ΔL dépend fortement de l'énergie, allant de 3 cm autour de 100 eV à 20 cm autour de 1 MeV et elle diminue au delà. De ces considérations, dû à la grande distance de vol et à l'impulsion fortement comprimée (7 ns FWHM), la résolution de n_TOF est excellente en-dessous de 10 keV et au-dessus de 1 MeV, mais moins bonne qu'ORELA et GELINA dans le domaine intermédiaire.

Le tableau III.1 récapitule la comparaison pour les quantités définies ci-dessus. Le flux pour ORELA et LANSCE est pris de P.E. Koehler [94], et de F. Gunsing [43] pour GELINA. La fonction de résolution en énergie est de P.E. Koehler [95] pour LANSCE et de C. Coceva *et al.* [96] pour ORELA.

On peut conclure que pour n_TOF la gamme d'énergie des neutrons est très étendue et permet des mesures des réactions à seuil, comme la fission. En plus les avantages les plus importants sont la bonne résolution en énergie et un flux instantané très élevé permettant des mesures de section efficace de capture sur des échantillons très radioactifs (^{241}Am par exemple) le bruit de fond induit par la radioactivité étant réduit.

Chapitre IV

Dispositif expérimental

IV.1 Introduction

Pour profiter pleinement de la performance unique de l'installation de n_TOF au CERN, le développement des détecteurs est exigé. Pour la mesure des sections efficaces de capture neutronique, ceci concerne le développement des détecteurs adaptés C_6D_6 ayant une sensibilité aux neutrons extrêmement basse aussi bien que la construction d'un calorimètre d'absorption totale (TAC). Tandis que le premier type de détecteur doit être employé pour des mesures des sections efficaces avec une grande valeur du rapport de diffusion/capture, le dernier est nécessaire pour des mesures sur des échantillons disponible en très faible quantité, ou lorsqu'il y a compétition entre fission et capture.

La conception du TAC pour n_TOF est similaire à celui de Karlsruhe [81]. D'ailleurs, nous avons utilisé 11 cristaux disponibles au FZK. Ceci a mené à la réduction substantielle du coût total et à l'avantage additionnel de se référer à un dispositif connu. Afin de limiter le bruit de fond dû aux neutrons diffusés par l'échantillon, le TAC est équipé d'un absorbeur central de neutrons constitué de ${}^6LiOOC(CH_2)_{10}COO{}^6Li$, un sel de l'acide dodécanedioïque. Cet effet d'absorption de neutrons est amélioré en employant des capsules en fibre de carbone chargées en ${}^{10}B$ entourant les cristaux de BaF_2 .

Dans ce chapitre, nous présenterons le principe de base de détection des particules en donnant les grandes familles de détecteurs, en particulier à scintillation. C'est la famille d'où provient le TAC. Ensuite, nous expliciterons les différentes méthodes de détection des gammas de capture les plus utilisées. Nous finirons par une description détaillée du TAC.

IV.2 Les grandes familles de détecteurs

Il y a trois modes de classement des détecteurs de particules. Le premier considère les différents types de particules à détecter [97] (ions, électrons, rayonnement X et γ et neutrons). Le second est selon le type de détection (directe ou indirecte). Le troisième relève de la conception même des détecteurs, et se fonde sur le mécanisme de leur

fonctionnement. Les deux premiers modes ne seront pas expliqués dans ce chapitre, on peut se reporter aux références suivantes [98], [99] qui présentent une synthèse complète des modes de détecteurs.

Ionisation seule

- **Détecteurs à ionisation** : Ionisation directe ou indirecte d'un gaz \implies courant électrique

Si une radiation pénètre dans le gaz, un certain nombre de paires électrons-ions vont se créer soit directement s'il s'agit du passage d'une particule chargée, soit indirectement par des réactions secondaires pour les particules non chargées. Sous l'effet du champ électrique, les électrons seront accélérés vers et l'anode et les ions vers la cathode, où ils seront collectés. Le signal observé, qui est en fait le courant des ions, dépendra de l'intensité du champ électrique.

- **Détecteurs semi-conducteurs** : Ionisation directe ou indirecte d'un solide \implies courant électrique

Comme leur nom l'indiquent, les détecteurs semi-conducteurs sont basés sur des matériaux cristallin semi-conducteur, la plupart du temps il s'agit de silicium ou de germanium. Le principe de fonctionnement est analogue à celui des détecteurs à ionisation. Dans le solide, on crée des paires électrons-trous par le passage d'une radiation qui seront ensuite collectée par un champ électrique.

- **Détecteurs chimiques** : Réactions chimiques \implies variations de colorimétrie d'un film
- Dans le cas de dosimètre, une émulsion photographique est montée dans un porte-film. En cas d'exposition, une variation de densité optique apparaît après le développement du film. Le noircissement et la façon dont il est distribué permettent dévaluer l'énergie des rayonnements ionisants et de convertir le noircissement en dose équivalente.

Ionisation + excitation + luminescence

- **Détecteurs à scintillation**

Lorsqu'une radiation atteint le scintillateur, elle excite les atomes et molécules de ce dernier et celui-ci émet de la lumière. On peut dire donc simplement qu'une partie de l'énergie de la radiation est transformée en lumière. La lumière est transmise par le guide de la lumière jusqu'au photomultiplicateur où celle-ci est transformée en un courant faible de photo-électrons qui est ensuite amplifié par un système de multiplication.

Activation

- **Détecteurs d'activation** : Activation neutronique \implies corps radiatifs \implies mesure de l'activité

Ces détecteurs sont utilisés pour l'analyse par activation neutronique qui est une méthode analytique très sensible, particulièrement bien adaptée pour analyser la pureté d'un échantillon subissant des réactions nucléaires qui conduisent à la formation d'isotopes instables. Ces isotopes sont alors identifiés et quantifiés par l'étude de leurs spectres des rayons γ .

Les différents types de détecteurs sont résumés sur la figure ci-dessous :

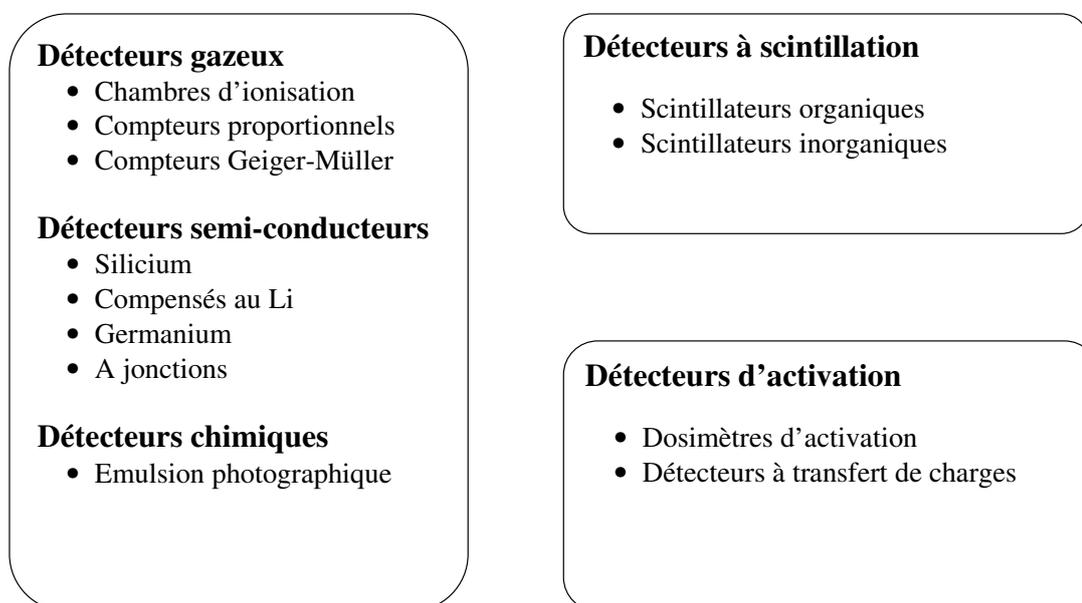


FIG. IV.1 – Les différents types de détecteurs.

IV.3 Les détecteurs à scintillation

En 1936, Zvorykin a construit le premier multiplicateur d'électrons à électrons (dynodes) successives [100]. Il fallut attendre 1944 pour que la société RCA le fasse précéder d'une photocathode, réalisant ainsi le premier photomultiplicateur (ou PM).

IV.3.1 Principe de fonctionnement

Ces détecteurs ont été les premiers à être utilisés pour détecter les rayonnements ionisants. Ils présentent l'avantage d'être facilement utilisables et de posséder une efficacité de détection élevée. Ils ne nécessitent pas de refroidissement. Ils ont l'inconvénient d'avoir une résolution assez mauvaise qui ne permet pas d'effectuer des mesures de spectroscopie fine.

Dans les détecteurs à scintillation, on n'utilise pas l'ionisation des atomes pour recueillir l'information, mais l'excitation des atomes et des molécules qui émettent des photons lumineux en retournant à leur état fondamental après ionisation.

L'association d'un scintillateur et d'un PM forme un compteur à scintillation. Un guide de lumière fait parvenir les photons sur la photocathode. Les électrons ainsi produits sont multipliés sur les dynodes (ou électrodes à émission secondaire) ; ils arrivent sur l'anode, produisant une impulsion qui est analysée par le circuit associé.

Les figures IV.2 et IV.3 montrent le principe général du détecteur à scintillation [99] :

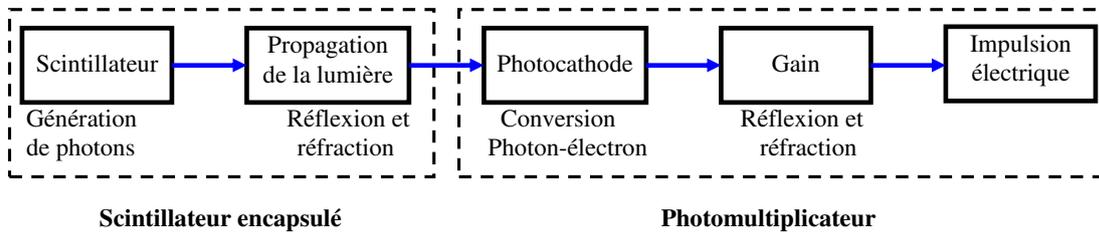


FIG. IV.2 – Principe général du détecteur à scintillation.

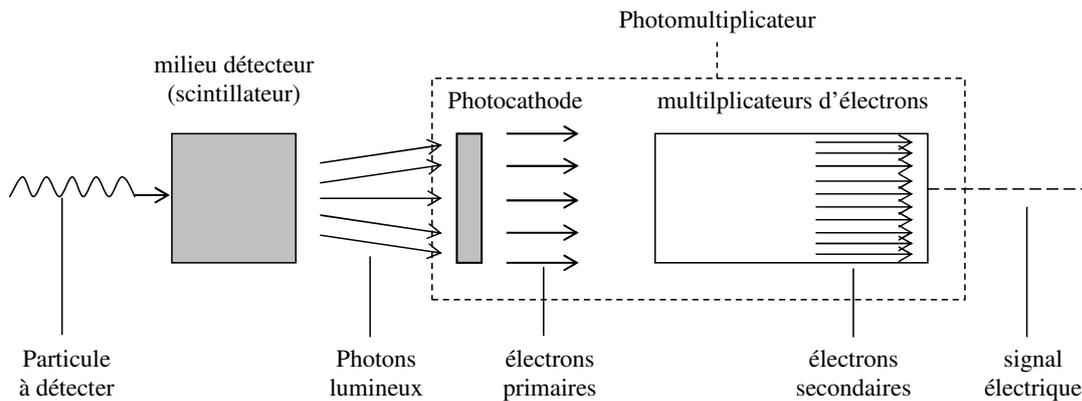


FIG. IV.3 – Schéma de principe du fonctionnement des détecteurs à scintillation.

IV.3.2 Caractéristiques

Les détecteurs à scintillation ont des caractéristiques communes qui sont les suivantes :

1. le nombre de photons émis est, en général, proportionnel à l'énergie perdue par la particule ionisante dans le milieu scintillant.
2. Ces détecteurs se prêtent bien à la spectrométrie γ .
3. Matériaux transparents aux rayonnements qu'ils émettent.
4. Grande efficacité de conversion de l'énergie déposée en lumière.
5. En général, un très court temps de vie moyen de la luminescence induite.
6. Indice de réfraction proche du verre (environ 1,5). Cela facilite le couplage optique avec le photomultiplicateur.

7. Possèdent très souvent de bonnes qualités mécaniques (usinage, mise en forme).
8. Utilisés en laboratoire pour la mesure d'énergie (spectrométrie) et sur le terrain (dans les appareils de contrôle).

IV.3.3 Les différents scintillateurs

Les scintillateurs se regroupent en deux grandes familles :

- Les scintillateurs inorganiques qui sont cristallins.
- Les scintillateurs organiques qui incluent des plastiques, liquide (le C_6D_6) et quelques cristaux et dont les processus de fluorescence reposent sur des principes physiques différents.

IV.3.3.1 Les scintillateurs inorganiques

Le mécanisme de scintillation est lié à la structure cristalline du milieu. Dans un réseau cristallin, les niveaux d'énergie sont perturbés par l'action réciproque des atomes et ils se distribuent en bandes « permises » séparées par des bandes « interdites ». La dernière bande permise est appelée bande de valence. Les scintillateurs sont normalement isolants : la largeur de la bande interdite est de l'ordre de quelques eV.

L'énergie apportée par une particule incidente aux électrons de la bande de valence leur permet d'atteindre la bande de conduction qui est normalement vide. Les irrégularités ou la présence d'impuretés dans un cristal autorise des niveaux intermédiaires à l'intérieur de la bande interdite. Si ces niveaux sont inoccupés, les électrons peuvent alors passer de la bande de conduction à ces niveaux intermédiaires encore appelés pièges. Ils retournent spontanément à leur niveau fondamental par une transition non radiatives (émission de chaleur) ou par fluorescence ou phosphorescence (voir la figure ci-dessous) [98].

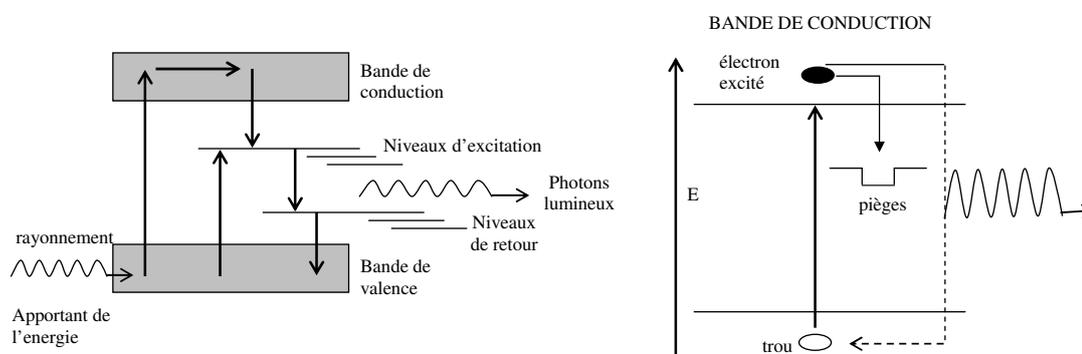


FIG. IV.4 – La première partie présente le diagramme des bandes d'énergie dans les cristaux inorganiques. La deuxième partie montre la création de niveaux discrets dans la bande interdite par l'incorporation d'impuretés dans le cristal.

On rappelle que la fluorescence est le retour au fondamental par une transition directe entre niveaux singulets du cristal ou de la molécule. La phosphorescence est le retour au fondamental par une transition indirecte passant par des niveaux intermédiaires (triplets) du cristal ou de la molécule. Cette luminescence (fluorescence et phosphorescence) émet des rayonnements électromagnétiques dans le domaine visible, infrarouge et ultraviolet.

Les scintillateurs inorganiques se présentent sous la forme de monocristaux ou de poudres polycristallines.

- **Les scintillateurs monocristallins** comprennent essentiellement les halogénures de métaux alcalins activés, en général, avec des métaux lourds tels que le thallium ou l'euporium et les tungstates. Parmi les plus utilisés, citons : NaI (Tl), CsI (Tl), KI (Tl), CaI_2 (Eu), CaF_2 (Eu), BaF_2 ,...
- **Les poudres polycristallines** Les matériaux principalement utilisés sous cette forme sont le sulfure de zinc et le sulfure de cadmium activés au cuivre ou à l'argent, ZnS (Cu), ZnS (Ag), ZnO, le BGO (germanate de bismuth), ...

IV.3.3.2 Les scintillateurs organiques

On peut trouver des scintillateurs organiques dans trois phases : cristal, amorphe et liquide.

Dans une molécule organique, les électrons assurent la cohésion des atomes et ne peuvent être considérés séparément. Le milieu est un oscillateur muni d'états vibrationnels quantifiés et susceptibles d'atteindre des niveaux d'excitation déterminés.

L'émission de photons se fait par transition de l'état excité vers l'état fondamental avec une durée de vie moyenne de l'ordre de 10^{-8} s. Les scintillateurs organiques solides sont constitués soit de monocristaux d'anthracène, de stilbène ou de naphthalène généralement utilisés pour la détection des neutrons rapides, soit de composés organiques fluorescents incorporés dans une matière plastique telle que le polystyrène ou le polyvinyltoluène permettant la détection des rayonnements β et γ . Il n'y a pas ou peu de phosphorescence.

Les scintillateurs liquides sont généralement constitués d'une solution d'un ou de plusieurs composants fluorescents organiques diluée dans un solvant approprié (xylène, benzène, dioxone ou naphthalène). L'échantillon étant dissous dans le liquide scintillant, ils permettent la détection des rayonnements β de faible énergie (tritium, carbone 14).

IV.3.4 Photomultiplicateur

Un photomultiplicateur est un tube électrique qui convertit par effet photoélectrique un rayonnement incident situé dans le domaine de longueurs d'onde s'étendant de l'ultraviolet à l'infrarouge en un signal électrique, puis amplifie, par émission d'électrons secondaires.

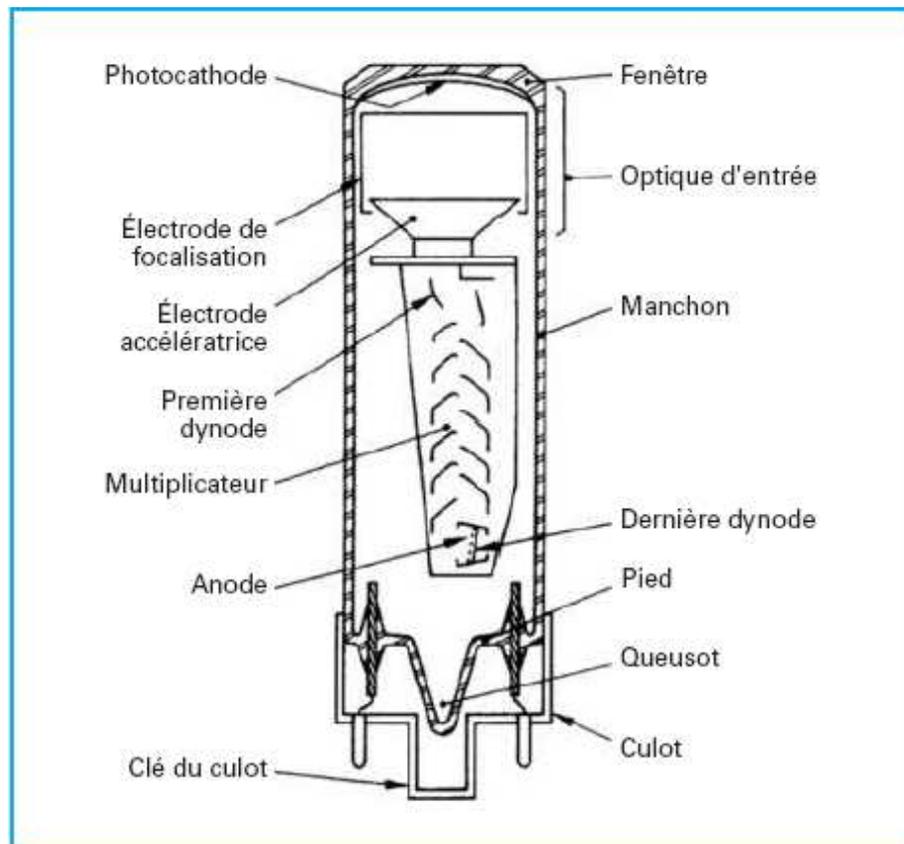


FIG. IV.5 – Coupe d'un tube photomultiplicateur, source Photonis [100]

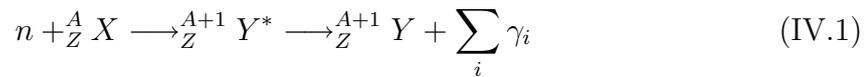
La figure IV.5 montre la constitution générale d'un photomultiplicateur. Celui-ci se compose :

- d'une photocathode qui effectue la conversion du flux de photons incidents en un flux d'électrons,
- d'une optique d'entrée constituée d'une ou de plusieurs électrodes de focalisation et d'une électrode accélératrice. L'optique d'entrée est destinée à concentrer tous les électrons issus de la photocathode sur la première électrode du multiplicateur,
- d'un multiplicateur d'électrons formé d'une succession d'électrodes appelées dynodes, lesquelles multiplient en cascade le nombre des électrons pénétrant dans le multiplicateur.
- enfin, d'une anode chargée de recueillir le flux d'électrons issu de la dernière dynode du multiplicateur et sur laquelle est prélevé le signal de sortie.

IV.4 Mesure de capture neutronique

IV.4.1 Principe de la mesure

La réaction de capture radiative neutronique est décrite dans le chapitre II . Le neutron est absorbé par le noyau cible . Le noyau composé ainsi formé est dans un état excité et peut regagner son état fondamental en émettant un ou, plus généralement, plusieurs rayons gamma qu'on appelle cascade gamma de désexcitation. La réaction de capture radiative s'écrit :



avec :

n , neutron incident,

${}_Z^A X$, noyau cible,

${}_Z^{A+1} Y^*$, noyau composé dans un état excité,

${}_Z^{A+1} Y$, noyau dans son état fondamental,

$\sum_i \gamma_i$, cascade gamma de désexcitation du noyau composé.

La section efficace de capture du noyau cible est proportionnelle à la probabilité que le neutron incident subisse la réaction décrite précédemment et se trouve donc directement liée à la probabilité d'émission d'une cascade de rayonnements gamma.

Une expérience de capture permet de mesurer des rayonnements gamma provenant de l'échantillon pour remonter au nombre de cascades gamma, c'est à dire au nombre de réactions de capture radiative.

D'une manière très simplifiée, le taux de capture (qui est le rapport du nombre de captures radiatives sur le nombre de neutrons incidents) permet d'obtenir la section efficace de capture radiative macroscopique de l'échantillon. Les résonances apparaissent ici sous forme de pics, puisque plus la section efficace de capture est importante plus le nombre de cascades gamma est élevé.

IV.4.2 Taux de capture

Les mesures de capture sont liées à la section efficace de capture neutronique $\sigma_{(n,\gamma)}(E)$ par l'intermédiaire du taux de capture $Y(E)$ qui est le rapport du nombre des événements de capture, $N_c(E)$, sur le nombre de neutrons incidents, $\phi_n(E)$, dans un échantillon d'épaisseur n_e exprimée en atome/barn. Le taux de capture peut être donc défini sous une forme simplifiée par : d'une part le taux expérimental,

$$Y(E) = N_Y \cdot \frac{N_c(E)}{\phi_n(E)} \quad (\text{IV.2})$$

et d'autre part, on trouve le taux théorique,

$$Y(E) = \mu(E) \cdot \frac{\sigma_{(n,\gamma)}(E)}{\sigma_t(E)} \cdot (1 - e^{-n_e \sigma_t(E)}) \quad (\text{IV.3})$$

N_Y représente le facteur de normalisation qui sera explicité dans les chapitres suivants et $\mu(E)$ est un facteur correctif dû à la diffusion multiple dépendant de l'épaisseur n_e de l'échantillon et de l'énergie cinétique des neutrons. Dans le cas d'un échantillon très mince, les diffusions multiples peuvent être négligées ($\mu(E) = 1$) et $n_e \cdot \sigma_t(E) \ll 1$. Si on effectue un développement limité de premier ordre de l'exponentielle. Le taux de capture devient alors :

$$Y(E) \approx n_e \cdot \sigma_{(n,\gamma)}(E) \quad (\text{IV.4})$$

IV.5 Méthodes de détection des réactions de capture

La détermination du nombre de cascades gamma émises, autrement dit le nombre d'événements de capture radiative représente le défi majeur des mesures de capture. En effet, à un même niveau d'excitation du noyau excité, une cascade est réalisée par l'émission d'un nombre variable de rayonnements gamma de différentes énergies. La question qui se pose est comment peut-on détecter tous les événements de capture radiative avec la même efficacité ? Pour cela, il existe quatre méthodes de détection :

- 1) Activation
- 2) Spectroscopie de population de niveaux
- 3) Détection à énergie totale
- 4) Détection à absorption totale

Les deux dernières méthodes sont les plus utilisées pour la mesure de la section efficace de capture neutronique. C'est pour cela qu'on va se limiter seulement à décrire le principe de ces deux méthodes.

IV.5.1 Détection à énergie totale

Dans cette méthode un seul γ de la cascade est détecté. Il est possible d'obtenir une efficacité globale constante de détection à partir de la détection d'un rayonnement gamma γ d'énergie E_γ et quelle que soit l'allure de la cascade. La procédure est la suivante : il suffit que l'efficacité $\epsilon(E_{\gamma_i})$ de détection d'un rayonnement γ_i autrement dit la probabilité de détecter un γ_i provenant d'une cascade d'un nombre n de γ soit proportionnelle à E_γ , quelque soit cette énergie.

$$\epsilon(E_\gamma) = k \cdot E_\gamma \quad (\text{IV.5})$$

avec k , une constante.

Si on considère que l'efficacité $\epsilon(E_{\gamma_i})$ de détection est faible, ce qui se traduit par $\epsilon(E_{\gamma_i}) \ll 1$, on aura donc :

$$\epsilon \simeq \sum_i^n \epsilon(E_{\gamma_i}) \quad (\text{IV.6})$$

D'où l'efficacité de détection ϵ d'une cascade, est la somme des efficacités de détection de chaque gamma composant la cascade en question, soit proportionnelle à l'énergie d'excitation du noyau composé.

$$\epsilon \simeq \sum_i^n \epsilon(E_{\gamma_i}) = k \cdot \sum_i^n E_{\gamma_i} = k \cdot E^* \quad (\text{IV.7})$$

L'efficacité de détection de la réaction de capture pour un détecteur remplissant la condition donnée par l'équation (IV.7) est donc indépendante de la cascade effectuée. Pour avoir la proportionnalité indiquée dans l'équation (IV.5), il y a deux solutions :

- 1) soit avoir un détecteur qui vérifie cette condition tels que les détecteurs de types Moxon-Rae [101] dont l'efficacité est très faible (de l'ordre de 2%).
- 2) soit assurer cette condition par une méthode mathématique, appelée fonction de pondération de l'amplitude du signal, qui est appliquée aux scintillateurs liquides non hydrogénés tels que C_6D_6 (benzène deutéré) qui sont peu sensibles aux neutrons [102].

IV.5.2 Détection à absorption totale

La deuxième possibilité, qui est le but de ce travail de thèse, est de mesurer la totalité des rayonnements γ de la cascade. Pour un noyau composé donné, l'énergie d'excitation E^* est, pour notre gamme d'énergie d'étude, très proche de E_s , l'énergie de séparation de neutron en quelques MeV.

$$E^* = \sum_i^n E_{\gamma_i} = E_n + E_s \approx E_s \quad (\text{IV.8})$$

avec E_n , énergie cinétique du neutron capturé.

Si tous les γ de la cascade sont détectés, la somme de leurs énergies sera donc proche de E_s , permettant alors l'identification d'une telle cascade et de discriminer ainsi capture et fission. De tels détecteurs nécessitent une couverture sur un angle solide proche de 4π autour de l'échantillon qui ont plusieurs caractéristiques qui seront explicitées dans les paragraphes suivants. Mais, le principal défaut de tels détecteurs est leur grande sensibilité aux neutrons diffusés (c'est le cas pour BaF_2 , c'est moins vrai pour CeF_3) par rapport aux détecteurs à énergie totale.

IV.6 Le calorimètre à absorption totale de n_TOF

La meilleure identification des événements de capture neutronique est par l'énergie totale de la cascade γ de capture. Ceci exige un détecteur de grand angle solide qui fonctionne en mode calorimètre. Avec une efficacité de détection de rayons gamma supérieure à 90% dans la gamme d'énergie en-dessous de 10 MeV, les réactions de capture peuvent être détectées avec une probabilité proche de 100%.

Une efficacité élevée ainsi que la bonne résolution dans les rayons γ et l'énergie de neutron (TOF) est essentielle pour une précision de l'ordre de 3%, qui est typiquement visée dans des mesures de section efficace avec de tels détecteurs.

Quand une réaction (n,γ) se produit, une cascade de rayons γ est émise de manière prompte. Selon la masse atomique du noyau, il peut y avoir de $\sim 10^2$ à $\sim 10^4$ niveaux possibles de désexcitation avec des multiplicités γ moyenne autour de 3 ou 4. La section efficace du processus peut être déterminée en comptant le nombre d'événements dans l'échantillon irradié avec un flux de neutron connu et une efficacité de détecteur également connue. L'efficacité est déterminée par la simulation et validé par des mesures de référence avec ^{197}Au comme cible. Le point le plus important de telles mesures est que les événements de capture doivent être détectés indépendamment de la multiplicité des cascades de rayon γ . Les caractéristiques souhaitables d'un type de calorimètre de détecteur des rayons γ pour l'usage des mesures de section efficace de capture neutronique sont :

- efficacité de détection d'un événement de capture, qui est indépendant d'une cascade de rayon γ particulière émise,
- haute granularité,
- faible sensibilité aux neutrons diffusés,
- réponse rapide,
- bruit de fond faible et facile à soustraire.

Ces exigences seraient bien satisfaites avec un calorimètre à base de CeF_3 . Malheureusement à l'heure actuelle il est quasiment impossible d'obtenir des cristaux de tailles suffisantes pour fabriquer un calorimètre. Bien que plus sensible aux neutrons diffusés un ensemble constitué de BaF_2 est également relativement satisfaisant.

Pour des raisons de compatibilité, on a décidé de suivre la conception du calorimètre 4π précédemment construit au FZK. Le calorimètre de n_TOF est constitué de 40 cristaux dont 12 pentagonaux et 28 hexagonaux de BaF_2 comme présenté sur la figure IV.6. Cependant au FZK les neutrons étant mono-énergétiques, la majeure partie du bruit de fond dû aux neutrons diffusés peut être éliminé par temps de vol. À n_TOF, ce bruit de fond doit être réduit par d'autres moyens. Pour ce faire un absorbeur de neutrons constitué de ^6Li est utilisé. Des simulations ont également montrées que ce bruit pouvait être encore réduit par une capsule dopée au ^{10}B entourant chaque cristal de BaF_2 .

Un détecteur similaire a été récemment construit à Los Alamos. Ce détecteur DANCE de Los Alamos consiste également en une sphère 4π de BaF_2 de 15 cm

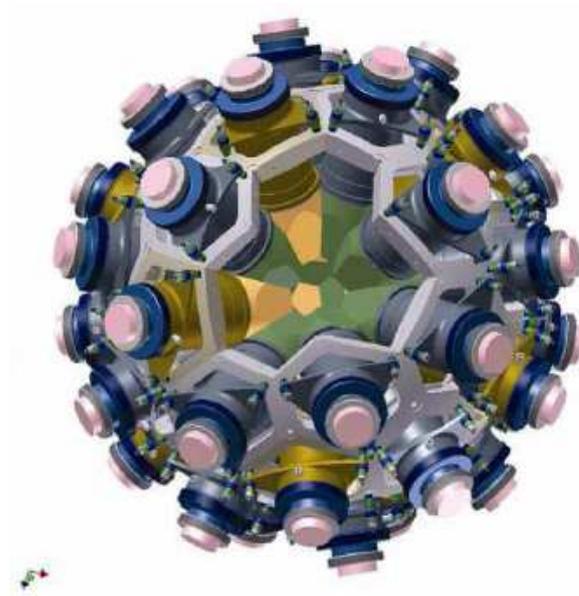


FIG. IV.6 – Le calorimètre d’absorption totale dessiné avec AutoCAD. Il se compose de 40 modules de BaF_2 formant une coquille sphérique de diamètre intérieur de 20 cm et de 15 cm d’épaisseur.

d’épaisseur, mais avec un diamètre intérieur de 37 cm et une segmentation plus élevée de 162 modules de détecteur.

IV.6.1 La structure

La structure de support du détecteur se compose d’une armature externe, qui tient une sphère en nids d’abeilles pour le support des différents modules de détecteur.

IV.6.1.1 L’armature

L’armature a été construite à partir des éléments profilés en aluminium Kanya [103]. Elle est subdivisée en deux moitiés, qui peuvent être déplacées relativement l’une par rapport à l’autre par un moteur électrique intégré, entraîné par crémaillère, avec des plaques glissières à galets. Puisque chaque côté porte la moitié des modules, l’armature peut être ouverte pour permettre l’accès aux échantillons et à l’absorbeur de neutron. La figure IV.7 présente l’armature externe après une installation préliminaire au Van de Graaff de Karlsruhe. La taille de l’armature et de l’arrangement de la partie coulissante a été rendue aussi compacte que possible en raison de l’espace limité dans l’aire expérimentale de n_TOF.



FIG. IV.7 – L’armature après une installation préliminaire au Van de Graaff de Karlsruhe.

IV.6.1.2 Sphère en nids d’abeilles

Les différents modules du détecteur sont montés dans la sphère en nids d’abeilles, qui se compose de cellules en aluminium. Ces pièces sont moulées, usinées, et vissées ensemble comme montré sur la figure IV.8. La sphère est divisée en deux moitiés, afin de fixer chaque moitié dans celle de l’armature.

IV.6.2 Les modules de détecteur

IV.6.2.1 La forme des cristaux

Les deux types de cristaux (pentagonal et hexagonal), dont le TAC se compose, sont montrés dans la figure IV.9. Les cristaux sont conçus par le manufacturier Karl Korth [104] à partir des cylindres de 14 cm de diamètre et de 15 cm d’épaisseur. Les cristaux rugueux ont un poids environ de 12-13 kg tandis que les pyramides tronquées finales ont un volume d’environ 1,5 l pour un poids de 7,5 kg.

Afin d’obtenir une résolution optimale en énergie et en temps, les surfaces de chaque cristal ont été soigneusement polies avant d’assembler le détecteur.

Une photographie de plusieurs cristaux est montrée sur la figure IV.10. Quelques irrégularités ou des inclusions très petites de graphite sont parfois évidentes.

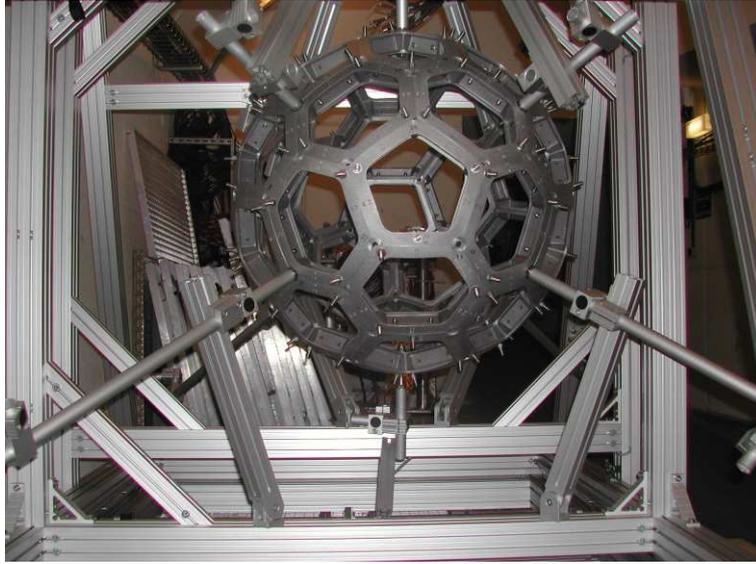


FIG. IV.8 – La structure en nids d’abeilles est montée dans le support externe. Chaque cellule comporte trois boulons pour tenir les modules du détecteur. Noter que chaque cellule de forme pentagonale est au centre entouré par cinq hexagones.

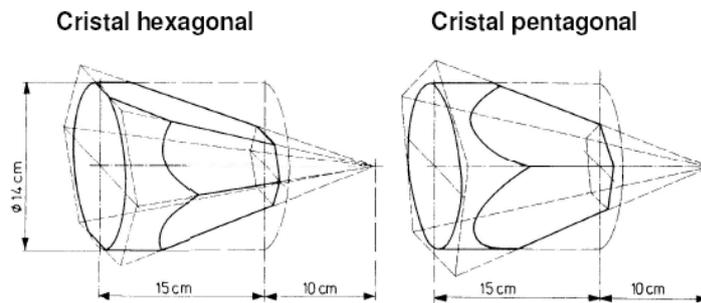


FIG. IV.9 – Forme des deux types de cristaux de BaF_2 pour le détecteur 4π de n_TOF.

IV.6.2.2 Conception mécanique

La conception globale des modules du détecteur est esquissée sur la figure IV.11. Le support du tube de PM se compose d’une seule pièce d’alliage d’aluminium avec une incision dans la partie avant. Le cristal de BaF_2 est inséré dans la capsule de fibre de carbone et fixé par un collier de serrage en acier mince, qui est serrée avec un moment de torsion de 10 Nm.

La collerette triangulaire dans la partie arrière du support de PM sert à monter le module entier dans un nid d’abeilles. Les boulons correspondants portent deux ensembles de ressorts plats pour permettre le positionnement exact du module dans la sphère.

Un aspect important de la conception était de réduire la masse autant que possible



FIG. IV.10 – Prototype des cristaux de BaF₂ pour le détecteur 4 π de n_TOF.

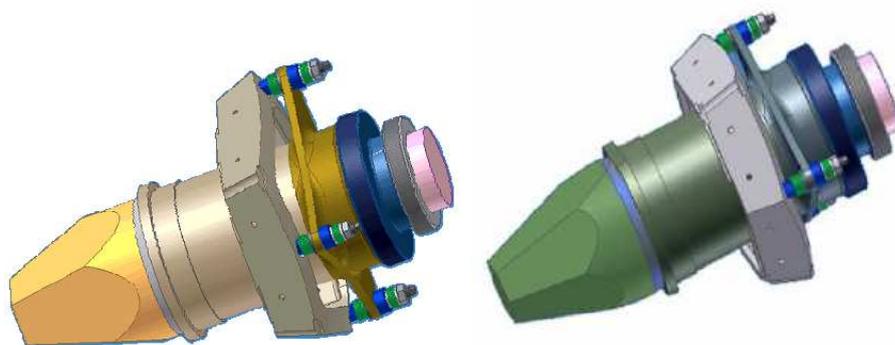


FIG. IV.11 – (gauche) Aperçu d'un module pentagonal. Le cristal à l'intérieur de la capsule en fibre de carbone (jaune) est fixé au support cylindrique du tube de PM. La collerette au fond du support sert à fixer le module dans la sphère en nids d'abeilles (grise). La position du module peut être ajustée par l'intermédiaire de ressorts plats colorés en vert. Le module se termine par le pont diviseur de tension (rose). (Droite) le module hexagonal.

afin de limiter le bruit de fond dû aux neutrons diffusés. Comparé à la version de Karlsruhe, le poids total du module a pu être réduit de 12,5 kg à 10,7 kg. Puisque la majeure partie de cette valeur est due au 7,5 kg du cristal de BaF₂, une réduction de 40% a été réalisée au niveau des matériaux de structure. De même, la masse des cellules en nids d'abeilles a été réduite de 30%.

Un bouclier magnétique se composant de deux couches de 0,1 mm d'épaisseur en μ -métal a été inséré dans l'espace entre le photomultiplicateur et le support de PM. Ce bouclier a été mis au potentiel électrique de la photocathode pour assurer le blindage électromagnétique des détecteurs.

IV.6.2.3 Les constituants de chaque module

Capsules Les capsules couvrant les cristaux BaF₂ ont été produites par l'INFN. Selon des simulations GEANT4, l'utilisation des capsules de fibre de carbone dopées au ¹⁰B réduit la sensibilité aux neutrons dans la région importante du keV par typiquement un facteur trois. La solution adoptée consiste en une couche qui a exactement la même forme que le cristal hexagonal et pentagonal avec 1 mm d'épaisseur et un poids total de 90 g. La masse est presque entièrement due à la résine chargée au ¹⁰B (14 g de ¹⁰B supplémentaire à 76 g de résine). Les capsules sont fabriquées avec une tolérance de 0,1 mm. Un espace de 0,5 mm a été laissé entre l'intérieur de la capsule et le cristal afin de pouvoir insérer les réflecteurs.

À partir de la base, une incision de 5 cm de long a été réalisée des deux côtés des capsules pour laisser l'espace nécessaire pour la fixation au support du PM.

Réflecteurs La partie intérieure du réflecteur se compose de deux couches de 0,1 mm de téflon blanc enroulé autour du cristal pour refléter les rayons Ultra-Violets. La partie externe est faite de 0,1 mm d'une feuille d'aluminium poli. Le découpage a été fait tel que les divers côtés des feuilles se recouvrent légèrement, quand la feuille enveloppe le cristal.

Photomultiplicateurs La lumière de scintillation de BaF₂ est émise dans l'UV à 220 nm et à 315 nm correspondant aux composantes rapide et lente, respectivement. Par conséquent, les PM avec une fenêtre en quartz sont exigés pour être transparents aux UV. Le meilleur compromis entre résolution acceptable et le prix accessible a été trouvé pour le PM de XP4508B de Photonis, un tube de 5 pouces de diamètre avec une cathode de 110 mm de diamètre et de sensibilité spectrale (voir la figure IV.12), qui montre un seuil assez plat entre 180 nm et 550 nm.

IV.6.2.4 Assemblage des modules

Les modules de détecteur montrés dans la figure IV.11 ont été assemblés par une procédure standard illustrée dans la figure IV.13. Commencant de haut à gauche les différentes étapes sont suivant l'ordre des images.

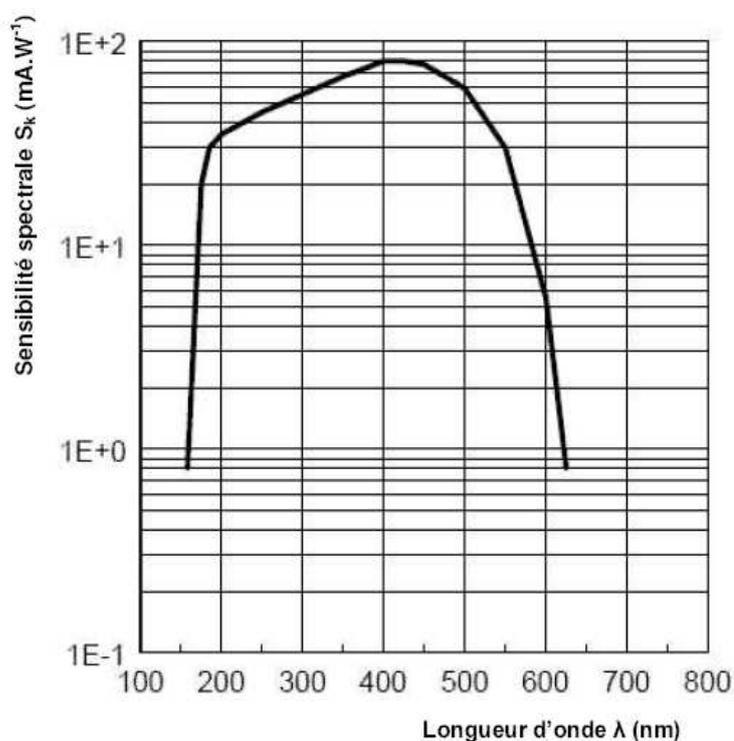


FIG. IV.12 – Courbe de sensibilité spectrale de la photocathode utilisée dans le PM de type XP4508B [105].

- 1) Les cristaux ont été nettoyés avec de l'alcool et puis couverts de deux couches de 0,1 mm d'épaisseur d'une feuille de téflon. La feuille, qui est suffisamment grande pour couvrir tout le cristal, a été étroitement étirée pour éviter des plis.
- 2) Une couverture en aluminium de 0,1 mm d'épaisseur a été coupée au moyen d'un gabarit en laiton. La couverture a une partie centrale correspondante à la pointe pentagonale ou hexagonale des cristaux. La coupe a été faite de telle façon que chaque côté se recouvre d'environ 1 cm.
- 3) Ensuite, les capsules de fibre de carbone étaient doucement insérées en s'assurant que le réflecteur ne soit pas endommagé. À l'extrémité, les capsules ont été étroitement serrées sur les cristaux pour obtenir un contact ajusté avec le réflecteur. Les morceaux en excès du réflecteur sur la base du cristal ont été alors coupés avec un couteau pointu.
- 4) Le cristal préparé est mis à l'envers afin de fixer le support de PM. Ce dernier est maintenant attaché au cristal par l'intermédiaire d'un joint plastique mis à l'avance dans le cylindre de positionnement à l'intérieur du support.
- 5) Dans cette étape il est important d'aligner le support et le cristal correctement avant la fixation du collier de serrage. Après une goutte de graisse optique est déposée au centre du cristal. Avant le montage du PM il est important d'attendre



(a) Etape 1



(b) Etape 2



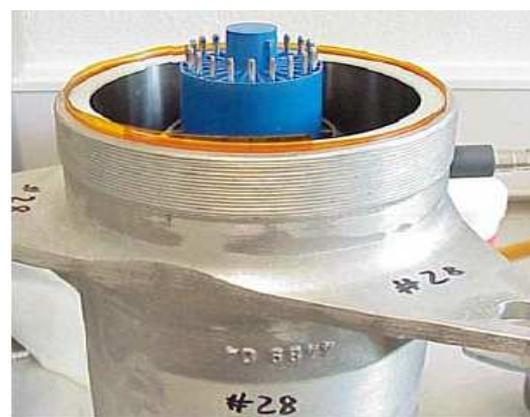
(c) Etape 3



(d) Etape 4



(e) Etape 5



(f) Etape 6

FIG. IV.13 – L'assemblage des modules de détecteur. Application de deux couches de réflecteur de teflon de 0,1 mm, de papier d'aluminium formé, et de couverture finale avec la capsule de fibre de carbone chargée par ^{10}B , de montage du support de PM, de PM, et d'un complément avec les feuilles de μ -métal et l'isolateur de Kapton.

1 à 2 heures jusqu'à ce que l'huile soit exempte de bulles d'air. Le PM doit être doucement serré sur le cristal et être lentement tourné afin de réaliser un bon contact optique avec le cristal.

- 6) Une feuille isolante de Kapton, qui permet d'isoler électriquement le μ -métal du support, est insérée. Enfin, les colliers de serrage tenant le μ -métal sont ajoutés. Le connecteur de HT (bleu), fournit la tension de polarisation à toute la partie de μ -métal. Les modules sont par la suite fermés par un couvercle qui est vissé sur le support pour fixer le PM à sa position centrale et qui porte également le pont diviseur de tension.

IV.6.3 Le pont diviseur de tension

Des essais avec le faisceau de neutrons de n_TOF ont été réalisés afin de comparer la performance du pont diviseur de tension (DT) actif fourni par l'INFN Bari « Istituto Nazionale di Fisica Nucleare » et le DT original de Photonis en ce qui concerne le flash intense au temps zéro, qui provient de l'impact du faisceau de proton sur la cible de plomb de n_TOF. Ces essais ont été effectués avec un petit et grand cristal de BaF₂. Tandis que le dernier était employé pour étudier la réponse des modules de la version finale, le petit détecteur était plus adapté pour l'étude de la réponse au flash.

Il s'est avéré que l'original DT de Photonis récupérait plus rapidement du flash que l'actif, mais a montré des effets de saturation dès que le détecteur était à moins de 15 cm du centre du faisceau. Ce problème a été réduit plus tard par l'amélioration de la protection de la région centrale, qui a été réalisée en prolongeant la section de fer du dernier collimateur. Cependant, on a également constaté que la période de rétablissement de la réponse de BaF₂ au flash était considérablement plus longue que la constante du temps de la lumière de scintillation. De ce fait on a remarqué un problème intrinsèque au DT.

Par conséquent, un diviseur de tension a été spécialement développé par l'ITN Lisbonne « Instituto Tecnológico e Nuclear », apportant deux améliorations importantes :

- L'étendu pour ajuster la gamme de réglage de potentiomètre de la première électrode focalisante (G1) a été significativement augmenté pour s'assurer que le vrai optimum pourrait être trouvé pour optimiser le gain et, par conséquent, la résolution. Il a été vérifié que le diviseur de tension lui-même n'affecte plus la résolution en énergie, qui est complètement déterminée par le PM et par le cristal de BaF₂.
- La bosse sur la queue des impulsions, qui est évidente pour le flash de n_TOF comme pour des signaux produits par des rayons de muons cosmique a été comprise comme étant due à la rétroaction entre la 6^{ème} dynode, qui est électriquement reliée à la deuxième électrode focalisante (G2) pour obtenir le potentiel désiré. Cet effet a été éliminé par une modification du circuit de câblage.

Le diagramme de câblage du DT final est montré dans la figure IV.14. Il est conçu pour des tensions de polarisation entre -1200 et -1600 V. Trois potentiels, pour les

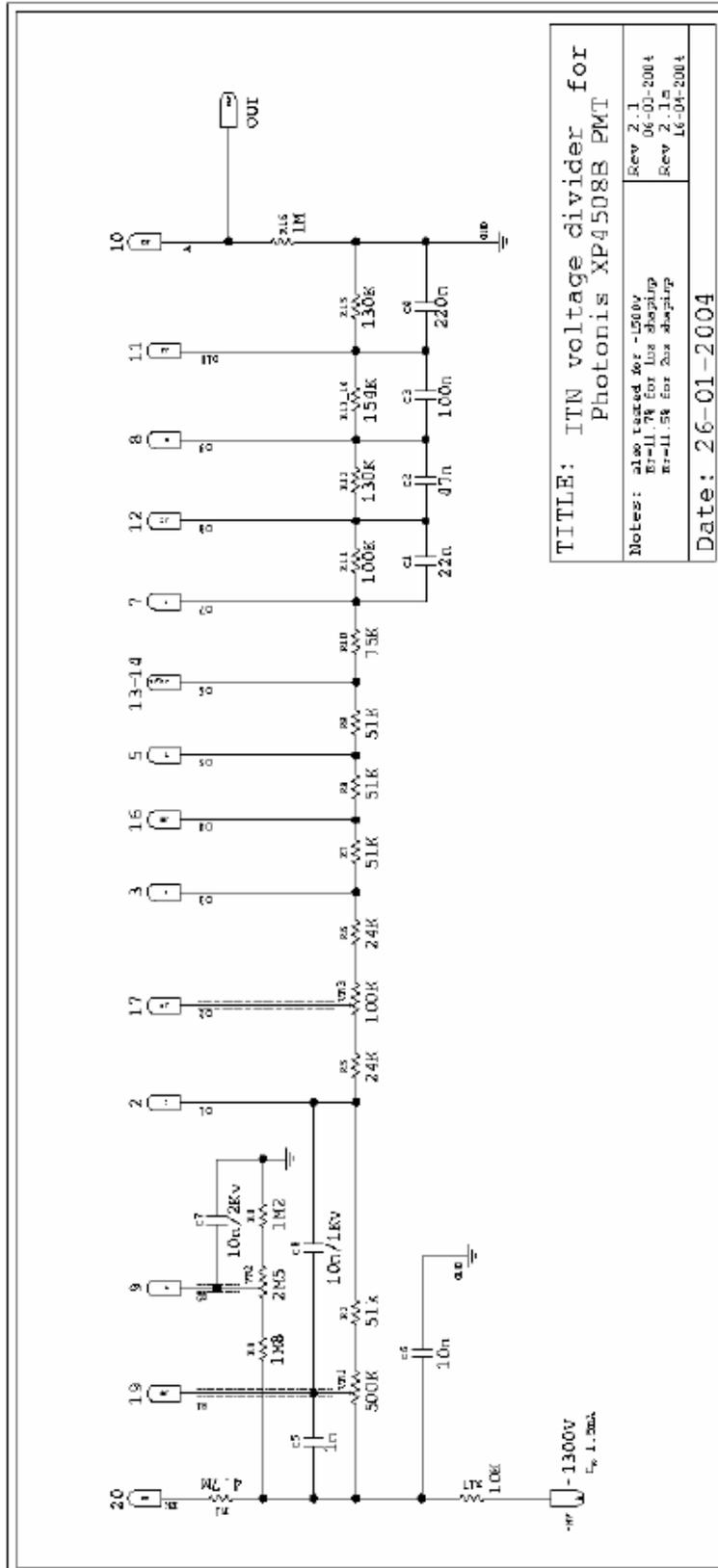


FIG. IV.14 – Le diagramme de câblage du nouveau diviseur de tension adopté.

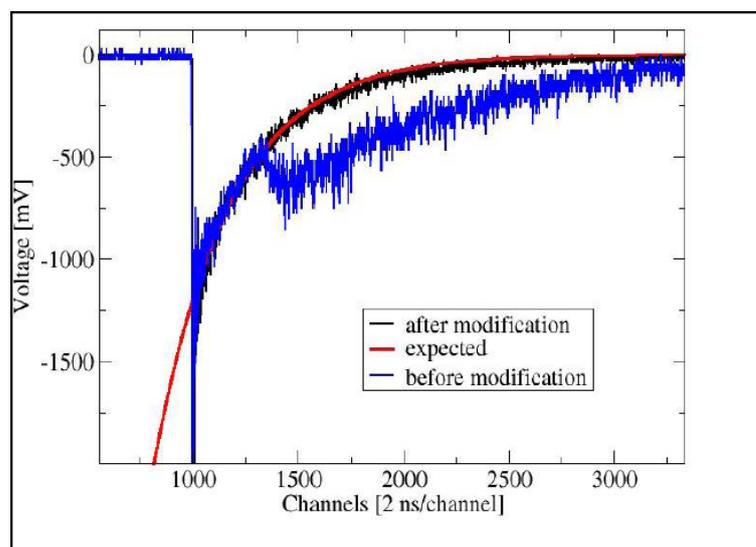


FIG. IV.15 – Le signal bleu et noir montrent la réponse du détecteur pour un événement de muon cosmique avant et après les modifications, respectivement. Avec la nouvelle conception nous ne voyons aucune bosse sur la queue du signal. La ligne rouge montre une courbe exponentielle avec la décroissance en temps du scintillateur.

électrodes G1 et G2 aussi bien que pour la première dynode D2, peuvent être ajustés par des potentiomètres mis à l'extérieur du DT. Un couvercle interne empêche les fuites légères par le DT vers le PM.

IV.6.4 L'absorbeur de neutrons

TAB. IV.1 – Propriétés physique et chimique de l'absorbeur de neutron.

Propriétés	Valeur
Densité	1,1 g.cm ⁻³
Masse molaire	240 g.mol ⁻¹
Point de fusion	150 °C
Inodore, inerte, non inflammable, non toxique, Stockage illimité	

Dans les mesures de n_TOF avec le calorimètre 4 π de BaF₂, les neutrons diffusés par l'échantillon à étudier sont la source principale de bruit de fond. Cela est spécialement vrai pour des mesures avec une source blanche de neutrons, où de tels événements ne peuvent pas être distingués par l'intermédiaire du temps de vol. Comme montré par des simulations détaillées de Monte-Carlo, des neutrons diffusés sont capturés avec une

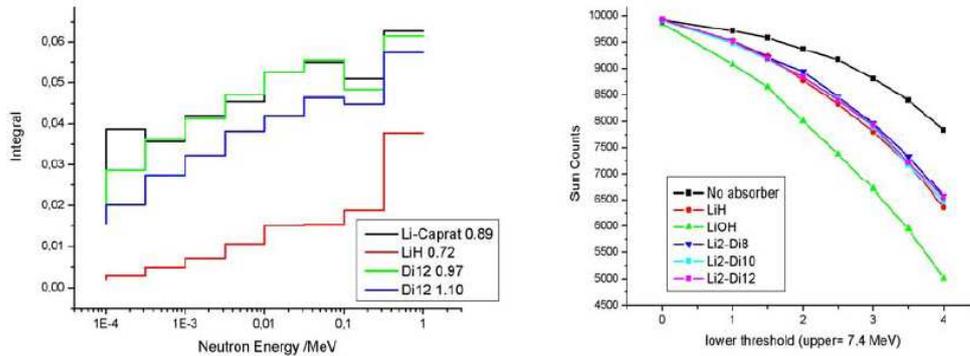


FIG. IV.16 – Comparaison de la transmission de neutron par une couche épaisse de 5 cm de différents matériaux absorbeurs de neutrons. Comparé à ${}^6\text{LiH}$, l'efficacité des sels étudiés de Li (acide caprique et acide dodecanedioïque) sont moins efficaces (figure gauche) mais montrent une transmission aux rayons γ similaire (figure droite).

probabilité de 10% par les noyaux de baryum du scintillateur. Ce bruit de fond est difficile à distinguer des événements de capture dans l'échantillon lui-même et doit, donc, être réduit au moyen d'absorbeurs de neutrons efficaces.

Dans le cas du TAC, cette réduction est réalisée en deux étapes, par l'absorbeur de neutron contenant du ${}^6\text{Li}$ placé au centre et autour de l'échantillon et par l'effet des capsules chargées en ${}^{10}\text{B}$ couvrant les cristaux de BaF_2 . Ce dernier effet est dû à l'absorption des neutrons diffusés dans le scintillateur. L'hydrogène sert également à modérer les neutrons.

Le meilleur matériel pour l'absorbeur est le ${}^6\text{LiH}$ par l'effet combiné de l'hydrogène, qui agit en tant que modérateur, et le ${}^6\text{Li}$ qui absorbe des neutrons par l'intermédiaire de la réaction de ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ sans produire aucun γ . De plus le LiH a un impact minimal sur le spectre des rayons γ des événements de capture dans l'échantillon en raison de son petit nombre atomique. L'utilisation du ${}^6\text{LiH}$ a été cependant exclue en raison d'arguments de sécurité. Une alternative a été adoptée basé sur des simulations GEANT4 avec les critères que l'absorbeur ne devrait pas produire des rayons γ et ne devrait pas contenir des éléments plus lourds que l'oxygène (qui dérangerait les spectres γ émis par des événements de capture dans l'échantillon). Un mélange de 80% de paraffine et de 20% ${}^6\text{LiCO}_3$ s'est avéré un choix acceptable, mais la paraffine étant inflammable cela n'a pu être mis en œuvre.

Au lieu de cela, nous avons utilisé le sel de Li produit dans la réaction chimique entre le carbonate de ${}^6\text{Li}$ avec l'acide dodecanedioïque :



ce qui présente les mêmes propriétés en ce qui concerne les neutrons et les rayons γ que le mélange de $\text{CH}_2{}^6\text{LiCO}_3$ (voir la figure IV.16). Chimiquement, le composé est inerte, ininflammable, et adapté au stockage illimité. Les caractéristiques énumérées dans le tableau IV.1 ont été vérifiées avec un échantillon de test produit avec du



FIG. IV.17 – Les cannings en aluminium de 0,5 mm d'épaisseur forment une coquille sphérique autour de l'échantillon. Après avoir été rempli d'absorbeur, les deux modules ont été fermés par un couvercle plat.



FIG. IV.18 – Gauche : Le canning d'Al ouvert avec le matériel d'absorbeur à l'intérieur. Droite : Les modules combinés d'absorbeur avec la place de tube de faisceau de neutron. Toutes les pièces sont soudées.

carbonate de lithium naturel.

Pour une meilleure stabilité mécanique, l'absorbeur est encapsulé dans une boîte soudée d'aluminium de 0,5 mm d'épaisseur adaptée à la géométrie interne du TAC. L'absorbeur se compose de deux modules symétriques, un pour chacun des deux hémisphères du TAC (voir les figures IV.17 et IV.18).

IV.7 Système d'acquisition

Le faible cycle utile du faisceau de proton de PS utilisé pour la production des neutrons à n_TOF, a permis la conception et l'implémentation d'un système d'acquisition, le DAQ, sans temps mort. Un organigramme de tous les processus d'acquisition est présenté sur la figure IV.19.

Le DAQ est basé sur l'utilisation de modules FADC « Flash Analog to Digital Converter », sous forme de cartes d'acquisition de la marque Acqiris [106] qui enre-

gistrent les signaux digitalisés du détecteur pour chaque événement. La difficulté principale de la procédure d'acquisition est la très grande quantité de données accumulées, qui nécessite des capacités de mémoire importantes et un taux de transfert élevé.

La majeure partie de l'électronique d'entrée (préamplificateurs, amplificateurs rapides et spectroscopiques, ADCs, etc.) n'est plus nécessaire et les quantités appropriées comme l'amplitude de signal, le temps du vol, etc, sont extraites au moyen d'une analyse de reconstruction de forme d'impulsion. L'enregistrement de tous les signaux des détecteurs nous aidant également de retraiter par la suite l'expérience entière avec un minimum de perte d'informations, nous permettant de vérifier les incertitudes systématiques reliées avec les performances des détecteurs pour chaque run. Les effets expérimentaux comme l'empilement, les fluctuations de la ligne de base et le bruit peuvent être effectivement traités pendant l'analyse de forme que nous détaillerons dans le paragraphe suivant.

Les modules FADC disponibles pour ces expériences ont une profondeur de 8 bits par canal, soit 256 valeurs possibles pour transcrire l'amplitude du signal, une mémoire tampon de 8 MegaOctets et des possibilités de taux d'échantillonnage entre 100 MHz et 1 GHz. Chaque module de FADC à 4 ou 8 canaux et correspond à une piste de données. Un châssis avec 4 modules constitue un « data stream ».

Le signal d'anode de chaque module de BaF₂ a été directement branché à un canal d'un module de FADC. Dans le cas du moniteur de flux, la charge produite dans chaque détecteur de silicium est collectée par un préamplificateur et mise en forme par un amplificateur rapide de type « Fast Timing Amplifier ». Le signal sortant a été après branché à un canal FADC pour chaque détecteur de silicium.

À chaque impulsion de protons heurtant la cible de spallation, le signal de « pickup » induit dans le « Wall Current Monitor », WCM, avec un petit retard approprié, est employé pour déclencher tous les modules FADC. Nous avons opté pour un taux d'échantillonnage de 500 MHz soit 2 ns de période pour les signaux issus du TAC. Les données sont acquises à travers les canaux de FADC pendant une période de 16 ms, correspondant à une énergie de neutron de 0,7 eV. L'objectif de notre mesure n'étant pas seulement de caractériser convenablement les signaux donc de les échantillonner le plus finement possible, mais ainsi d'avoir des données à la plus basse énergie dans le dispositif, un compromis a dû être trouvé. De plus une série de données à 100 MHz pour avoir accès au domaine thermique a été acquise.

Les mesures à basse énergie de neutrons peuvent être étudiées soit en abaissant le taux d'échantillonnage soit en retardant le déclenchement. Les canaux du détecteur FADC de silicium sont opérationnels à un taux de 100 MHz .

Les pistes de données sont couplées à un PC de lecture (« Readout PC » sur la figure IV.19), où un programme de suppression de zéros élimine les informations inutiles correspondant aux intervalles de temps où aucun signal n'a franchi le seuil de détection.

Sur la période d'enregistrement de 16 ms, chaque signal est sauvegardé en mémoire avec un temps prédéfini de pré-échantillonnage et de post-échantillonnage. C'est une information utile pour l'analyse de forme du signal afin de le reconstruire et extraire

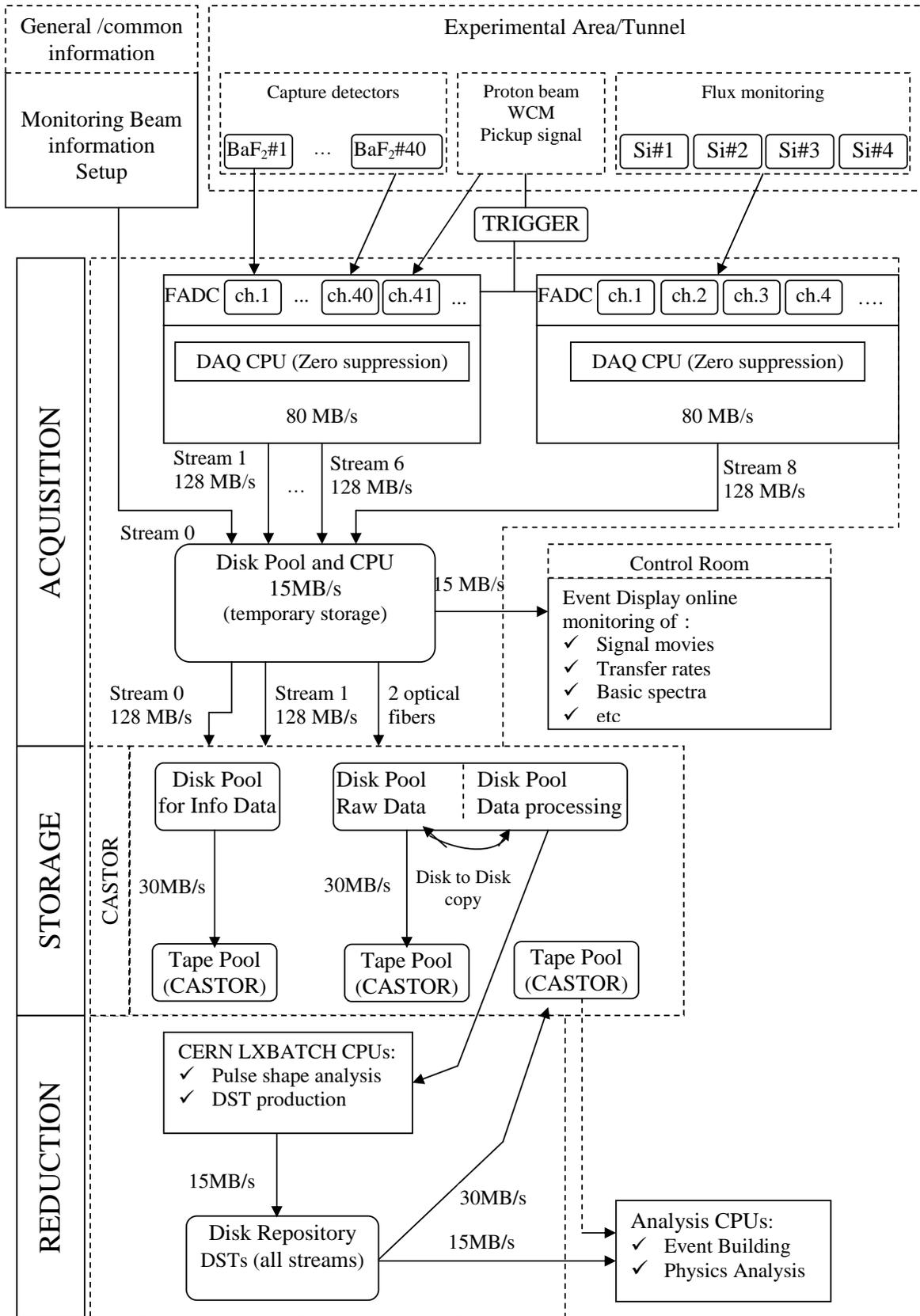


FIG. IV.19 – Diagramme schématique présentant le déroulement de l'acquisition des données jusqu'à leur réduction.

les paramètres appropriés comme le niveau de ligne de base, l'amplitude, l'aire, etc. Ceci sera expliqué en plus de détail dans le paragraphe suivant.

Les données restantes sont alors transférées par l'intermédiaire d'un lien « GigaBit Ethernet » à un disque (voir la figure IV.19). Cette mémoire temporaire est employée pour deux raisons différentes.

- i) Le contrôle en ligne de l'expérience. En utilisant un logiciel dédié la piste des signaux de chaque canal FADC ou détecteur peut être visualisée via un PC. C'est un outil très utile, qui nous permet de vérifier en ligne le fonctionnement de chaque détecteur pendant toute l'expérience et de détecter des erreurs systématiques, comme le déclenchement incorrect ou des artéfacts dans la structure du faisceau de protons. En outre, des histogrammes de base peuvent être également réalisés en même temps, aidant à un contrôle permanent du taux de comptage en cours ou des statistiques de la mesure et d'autres effets significatifs comme le bruit de fond, les décalages de ligne de base et du gain dans les détecteurs, etc.
- ii) Ces données sont également envoyées de ce deuxième disque au système de stockage massif CASTOR [107] pour un stockage permanent (voir la figure IV.19), en utilisant le système central d'enregistrement de données (Central Data Recording : CDR) du CERN. CASTOR accepte que les fichiers dont la taille maximum est 2 GO, donc cette taille a été également adoptée pour le DAQ de n-TOF comme la taille maximale de fichier de données.

IV.8 Analyse de forme des signaux

Pour être plus efficace, il est important d'extraire les informations utiles pour l'analyse, à partir des données brutes supprimées de zéro. Les données brutes supprimées de zéro sont les films de signaux pour chaque détecteur et pour tous les événements ou les paquets accumulés pour une expérience, qui ont été sauvegardés sur bande. Les informations utiles pour l'analyse sont une liste de paramètres prédéfinis pour chaque type de détecteur, qui doivent être déterminés pour chaque signal enregistré, comme l'amplitude, le temps de vol, l'aire, etc. Cette liste constitue les données réduites encore appelées « Data Summary Tape » (DST).

Les fichiers DST sont enregistrés sur bande, mais ils sont également sauvegardés dans un répertoire de disque "Disk repository" (voir la figure IV.19), qui nous permet un accès plus rapide à cette information pendant l'analyse de données. Ces fichiers peuvent être ensuite convertis par l'utilisateur dans le format de son choix. Nous avons choisi une structure sous forme d'arbre au format ROOT [108].

Pour le TAC et le moniteur de silicium, deux programmes d'analyse différents des formes des signaux ont été développés. Ils sont décrits dans les deux sous-paragraphe suivants.

Le premier programme est basé sur une procédure de dérivée afin de trouver le temps de début de chaque signal. Pour faire ceci, les fluctuations statistiques sont

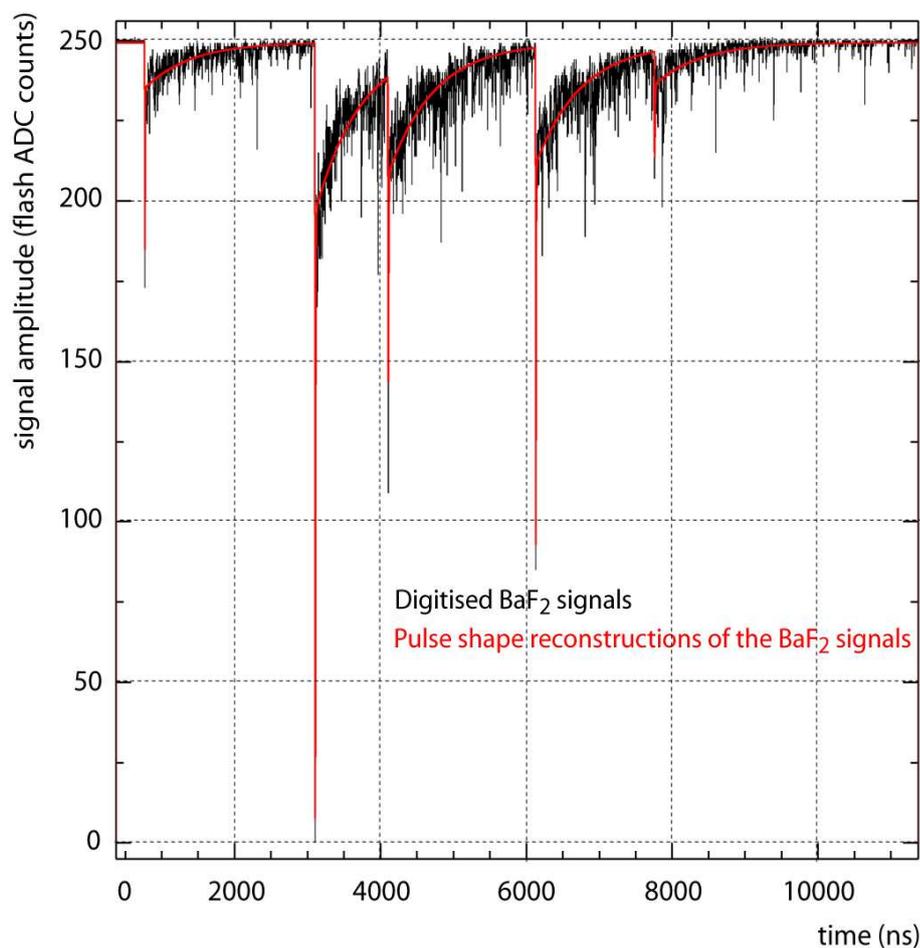


FIG. IV.20 – Signaux numérisés de BaF₂ mesurés (noir) et la reconstruction correspondante après l'analyse de forme du signal.

lissées par une moyenne mobile du signal. La dérivée est alors calculée et le temps de début est déterminé par le temps, là où cette dérivée est de valeur négative et à sa valeur absolue est plus grande qu'une valeur constante donnée.

Une fois le temps de vol correspondant au début du signal déterminé, le niveau de la ligne de base est calculée comme la moyenne des valeurs de temps de pré-échantillonnage. En même temps, la fluctuation de ligne de base (RMS) est calculée.

L'amplitude du signal est la différence entre la ligne de base calculée avant et la valeur de signal au temps de pic.

Le temps de fin de signal est donné correspond à la valeur de retour du signal à la ligne de base en plus de sa fluctuation RMS. En plus de ces paramètres, des contrôles spécifiques sont faits pour i) détecter un empilement, ou ii) détecter si le signal a une extension plus longue qu'attendue, en l'étiquetant comme long pic correspondant généralement au "γ flash".

Une fois que la ligne de base du signal et les points d'inflexion ont été déterminés, la surface des premiers 20 ns et la surface totale du signal peuvent être calculées en intégrant le signal.

Avec le second programme, une détermination plus précise des caractéristiques du signal (temps, amplitude, etc.) est maintenant réalisée grâce à une procédure de reconstruction. Le processus de scintillation dans le BaF₂ comporte deux constantes de décroissance, une composante rapide avec un temps autour de 0,7 ns et une lente de 630 ns de temps de décroissance, ajustées respectivement par une distribution maxwellienne, et une distribution exponentielle (figure IV.20). Cette partie est très détaillée dans les références suivantes [78, 109, 110, 111, 112].

Le deuxième algorithme [109] est basé sur la reconstruction de chaque signal. Le modèle a été obtenu en faisant la moyenne d'un grand nombre de signaux.

La figure IV.20 présente une forme typique du signal pour l'or au niveau de la résonance saturée à 5 eV. En noir c'est le signal mesuré et en rouge correspond à sa reconstruction.

IV.9 Les échantillons

IV.9.1 Sources d'étalonnage

TAB. IV.2 – Les sources radioactives utilisées pour l'étalonnage.

Source	Energie γ en MeV
¹³⁷ Cs	0,662
⁶⁰ Co	1,173 et 1,332
²² Na	1,2745
²⁴ Na	1,368 et 2,754
⁸⁸ Y	0,898 et 1,836
²³⁸ Pu/ ¹³ C	6,13

L'étalonnage consiste en la détermination de la relation entre la tension mesurée et l'énergie des gammas détectés. Afin de l'effectuer, on utilise des sources radioactives (voir le tableau IV.2) connues et on calibre de telle sorte que les différents pics en énergie couvrent la gamme d'énergie désirée de l'expérience.

Pour que les mesures se déroulent dans de bonnes conditions, nous avons procédé à la calibration chaque semaine tout au long de la période d'expérience et avant chaque changement d'échantillon à mesurer.

Les expériences de calibration sont réalisées avec et sans absorbeur de neutrons aux différents taux d'échantillonnage 100, 250 et 500 MHz.

Compte tenu d'une part des énergies de séparation d'un neutron, S_n , des noyaux que nous avons ici étudiés soient 5,298 MeV pour l'uranium-234 et 6,51 MeV pour l'or-197 et d'autre part les énergies des rayonnements γ des sources radioactives nous considérons que le domaine en énergie est couvert. Les sources multigammas nous permettent de déterminer à la fois la résolution en énergie et l'efficacité du TAC.

IV.9.2 Les échantillons pour les mesures de capture

IV.9.2.1 Les échantillons pour les mesures de capture

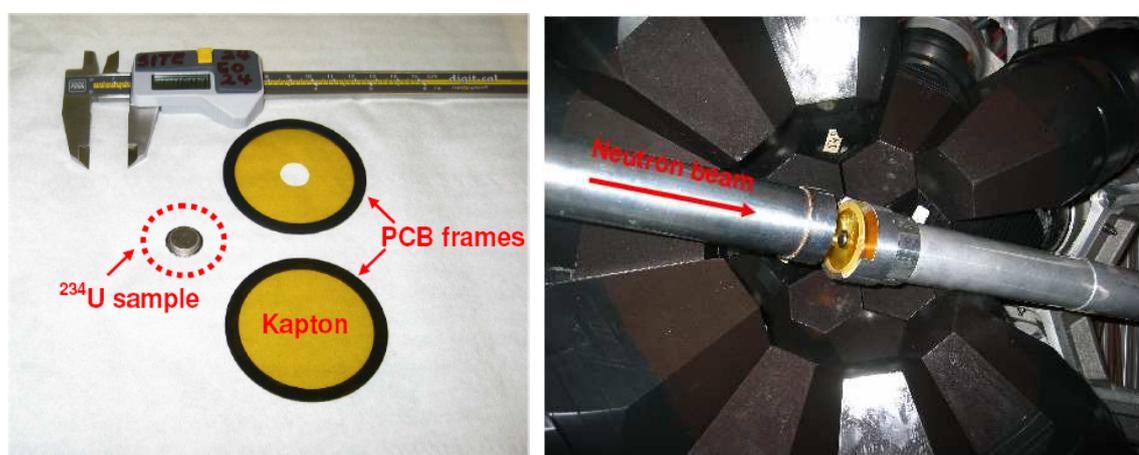


FIG. IV.21 – (Gauche) Une photo de l'échantillon de ^{234}U et de son support. (droite) Emplacement de l'échantillon au centre du TAC.

Les échantillons ^{233}U et ^{234}U pour les mesures de capture neutronique sont fournis par IPPE Obninsk [113] dans le cadre d'un contrat signé entre la collaboration n_TOF et cet institut.

Tous les échantillons, de 10 mm de diamètre, sont insérés entre deux feuilles minces d'aluminium (0,15 mm) et encapsulés dans 0,2 mm de titane (voir figure IV.22) suivant la norme ISO 2919 (exigée par les autorités de radioprotection au CERN) pour l'utilisation des sources radioactives. La purification isotopique de ^{234}U est déterminée par la technique de spectroscopie γ . Elle est supérieure à 99%.

La description des échantillons utilisés pendant nos expériences est présentée dans le tableau IV.3 et pour la capsule de titane au tableau IV.4.

Les capsules de titane ont été fixés entre deux disques formés par une feuille de 25 μm d'épaisseur de kapton avec une monture en fibre de verre. Ce porte-échantillon est placé dans un anneau en aluminium appelé anneau support-échantillon qui est à son tour fixé au tube du faisceau à l'aide d'un anneau de serrage. L'anneau support-échantillon est fixé de telle façon que l'échantillon se trouve au centre du TAC (figure IV.21) et au milieu du faisceau de neutrons.

TAB. IV.3 – Description des caractéristiques physiques des cibles.

Isotope	^{233}U	^{234}U
Pramètres et unités		
Activité α (MBq)	32,93	7,548
Activité (MBq/mg)	0,3565	0,231
Demi-vie (an)	$1,59 \times 10^5$	$2,44 \times 10^5$
Masse totale (U_3O_8) (mg)	108	387
Masse de l'isotope (mg)	91	32,7
Purité isotopique % en masse atomique	^{233}U (99,01) ; ^{235}U (0,23) ; ^{238}U (0,04) ; ^{234}U (0,74)	> 99
Epaisseur (mm)	10	10
Canning de cible		
Masse de Ti (mg)	277,1	326,2
Masse d'Al (mg)	70	71

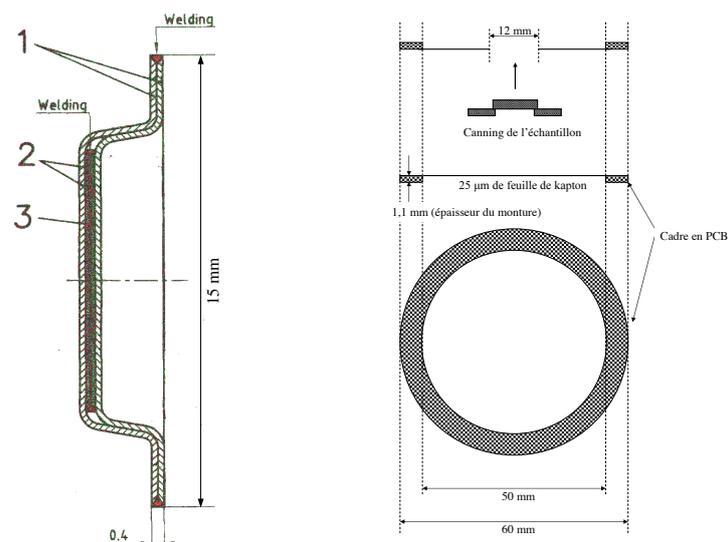


FIG. IV.22 – (Gauche) L'échantillon : 1) Titane, 2) Aluminium, 3) $^{234}\text{U}_3\text{O}_8$. (Droite) Cadre en PCB (fibre de verre : « Printed circuit Board »).

TAB. IV.4 – Les caractéristiques des capsules.

Matière du capsule	titane GOST 19807
Dimensions de source (mm) :	
Diamètre	15
Epaisseur total	2,7
Epaisseur (Ti) au-dessous et au-dessus de la cible	0,17-0,18
Canning vide 1	
Masse d'Al (mg)	69
Masse de Ti (mg)	386,4
Canning vide 2	
Masse d'Al (mg)	133
Masse de Ti (mg)	435,0

IV.9.2.2 Les échantillons pour les mesures de référence et de bruit de fond

Nous avons utilisé l'échantillon d'or pour une mesure de référence, En effet, la section efficace de capture de l' ^{197}Au est standard à partir de 5 keV et comporte également une résonance standard à basse énergie qui est saturée dans notre cas.

La détermination du bruit de fond dû aux neutrons diffusés dans les détecteurs est estimée par la mesure de l'échantillon naturel de carbone. La section efficace de capture de ce noyau est négligeable. Ce bruit sera normalisé par sa section efficace de diffusion élastique.

Le bruit de fond dû aux photons du faisceau, qui interagissent dans l'échantillon, est caractérisé par la mesure d'un échantillon naturel de plomb. Sa section efficace de capture neutronique est également très faible.

Le tableau IV.5 détaille les caractéristiques des différents échantillons de référence et de ceux utilisés pour la détermination du bruit de fond.

IV.10 Les expériences de capture

Le panorama des différentes mesures est résumé dans le tableau IV.6. Nous avons effectué plusieurs mesures qui se différencient selon le taux d'échantillonnage utilisé (100 ou 250 ou 500 MHz), avec ou sans absorbeur de neutrons et enfin avec ou sans faisceau de neutrons. Les mesures qui se sont déroulées sans faisceau ont généralement pour but de déterminer la radioactivité ambiante de l'aire expérimentale ou l'activité de l'échantillon à étudier.

TAB. IV.5 – Les caractéristiques des cibles pour les mesures de référence et de bruit de fond.

Echantillons \ Paramètres	Masse (mg)	Diamètre (mm)
^{197}Au	185,4	9.9±0.1
^{nat}C	70	10
^{208}Pb (1)	85,3	10
^{208}Pb (2)	85,8	10

TAB. IV.6 – Liste des différentes expériences de capture avec les caractéristiques de chaque mesure.

Echantillons \ Conditions	Faisceau	Absorbeur N	Echantillonnage (MHz)
Aucun	sans et avec	avec	500, 250 et 100
Porte-échantillon	avec	avec	500, 250 et 100
Canning vide 1 (455,4 mg)	avec	avec	500, 250 et 100
Canning vide 2 (568,0 mg)	avec	avec	500, 250 et 100
^{197}Au	avec	sans et avec	500, 250 et 100
^{nat}C	avec	avec	500, 250 et 100
Pb(1)/Pb(2)	avec	avec	500, 250 et 100
^{233}U	sans et avec	avec	500 et 100
^{234}U	sans et avec	avec	500 et 100

Chapitre V

Caractéristiques du TAC

V.1 Introduction

Puisque le TAC est utilisé pour la première fois à n_TOF, nous allons consacrer ce chapitre à décrire ses différentes performances expérimentales. Cette description est accompagnée par une explication détaillée afin d'éclaircir les démarches qui sont faites et montrer les problèmes et les difficultés rencontrés.

V.2 Reconstruction des événements

Un programme a été écrit afin d'accéder aux fichiers DST, traiter l'information, sélectionner les événements «valides» en appliquant des coupures spécifiques, sauvegarder l'information sous forme d'histogrammes pour la détermination de taux de capture et éventuellement la section efficace dans une étape postérieure.

ROOT [114], un outil d'analyse de données développé au CERN, écrit en C++, a été choisie pour cette fin.

V.3 Les performances expérimentales du TAC

V.3.1 Discrimination α - γ

La Figure V.1 est un graphe bidimensionnel. L'axe des abscisses représente le rapport entre l'amplitude rapide et l'intégrale du signal ajusté divisé par le temps décroissance de composante lente (630 ns). Pour des particules α , provenant des impuretés de radium (^{226}Ra) existantes dans le BaF₂, le signal de composante rapide est fortement réduit, ainsi on s'attend à ce que ce rapport soit de l'ordre de 1. Pour des rayons γ le rapport peut changer d'un détecteur à un autre. Dans ce cas il est de l'ordre de 5, et varie typiquement entre 5 et 10. L'axe des ordonnées représente le rapport entre la durée du signal mesuré avec celle attendue. Pour de bons signaux ce rapport devrait

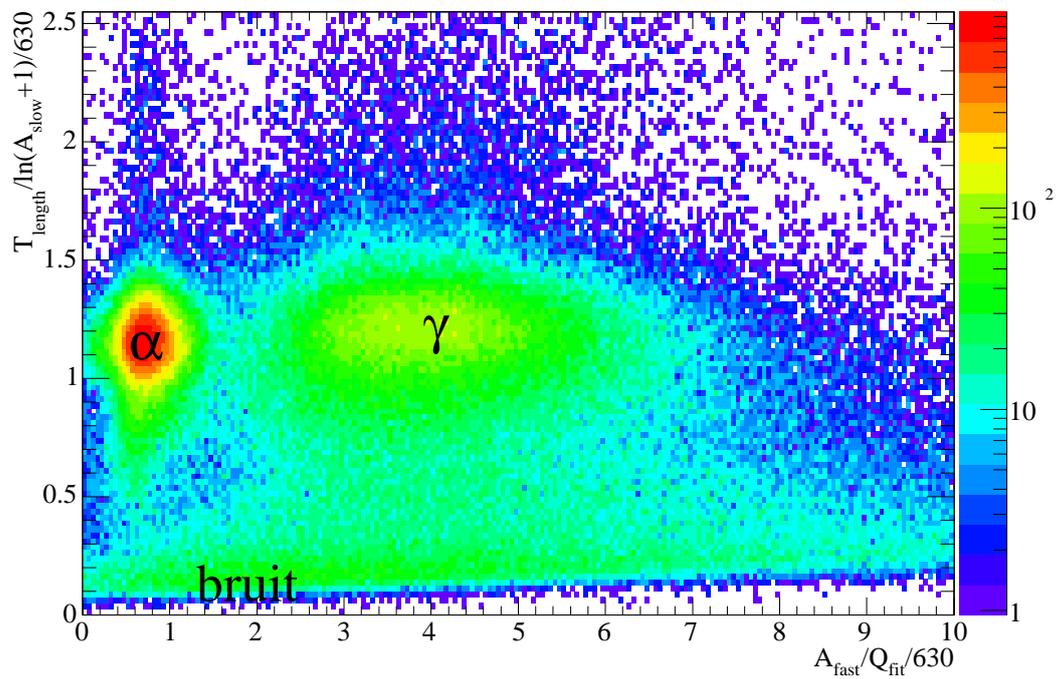
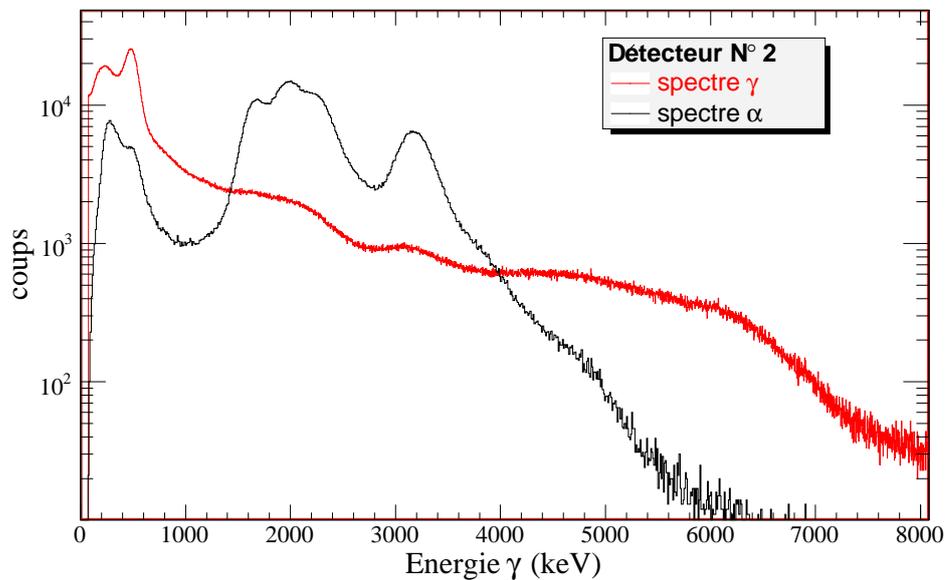


FIG. V.1 – La discrimination de forme des signaux

FIG. V.2 – Spectre en énergie γ (rouge) et α (noir)

être autour de 1. Une valeur plus basse que 1 montre que les pics reviennent à la ligne de base trop vite. Ces signaux sont probablement dus au bruit.

Sur la figure V.1, les trois régions sont clairement séparées. Les particules α sont associés au rapport des amplitudes en-dessous de 1,6 et au rapport des durées au-dessus de 0,3. Les rayons γ sont associés au rapport des amplitudes au-dessus de 1,6 et au rapport des durées au-dessus de 0,3. Enfin les signaux avec le rapport des durées en-dessous de 0,3 sont rejetés. Des résultats de ce choix peuvent être vus sur des spectres d'énergies montrés sur la figure V.2. Le spectre en énergie des γ est montré en rouge et celui des α est en noir.

L'étalonnage en énergie a été effectuée pour des rayons γ . La Figure V.2 montre clairement qu'il n'y a pas contamination α au niveau du spectre γ .

V.3.2 L'étalonnage en énergie

La première étape du travail consiste à calibrer la réponse des BaF_2 , c'est à dire convertir l'amplitude des signaux, décrite par des canaux, en énergie. Pour ce faire, nous avons mesuré plusieurs sources radioactives standards.

V.3.2.1 Problème de saturation

À n_TOF, les signaux numérisés sont sauvegardés à l'aide du système de « Flash ADC » avec une profondeur de 8 bits comme déjà signalé dans le chapitre précédent. À basse énergie des γ , le système peut récupérer toute l'information émise par le système de détection. Mais la gamme dynamique d'intérêt étant typiquement entre 10 keV et 10 MeV, l'amplitude du signal rapide peut dépasser 256 et ne sera donc enregistrée que l'information qui existait au dessus de zéro. C'est le problème de saturation du signal. À cause de cette saturation, l'intégrale de ce dernier diminue puisque nous ne pouvons pas récupérer la valeur exacte de l'amplitude de la composante rapide de tout le signal comme montré sur la figure V.3.

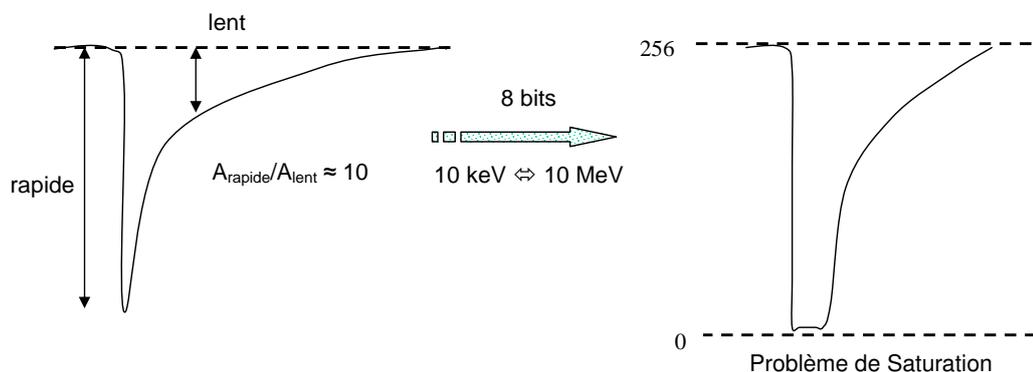


FIG. V.3 – Problème de saturation du signal entre 10 keV et 10 MeV.

Nous sommes donc invités à choisir entre deux cas pour procéder à l'étalonnage : soit par la composante lente seule soit par l'intégrale du signal. Après une étude de

comparaison que nous allons présenter ci-dessous, nous avons finalement décidé de calibrer uniquement avec la composante lente pour la suite de l'analyse.

V.3.2.2 Méthodologie

Afin d'avoir un bon étalonnage en énergie de tous les détecteurs, nous avons procédé sur plusieurs étapes qui sont les suivantes :

- 1) Le choix opté pour l'étalonnage : composante lente ou intégrale du signal.
- 2) L'ajustement Gaussien du pic comme montré sur la figure V.4.
- 3) Récupérer les paramètres suivants : position du pic, amplitude et résolution (ou largeur à mi-hauteur : FWHM) pour chaque détecteur (tableau V.1).
- 4) Régression linéaire sur ces pics afin de déterminer les paramètres d'étalonnage.
- 5) Pour vérifier que l'étalonnage est bon, on regarde les positions des pics de chaque spectre en énergie γ de chaque détecteur si elles ont bien les énergies correspondantes pour les sources radioactives indiquées dans le chapitre IV.

La figure V.5 illustre les spectres en énergie γ de chaque détecteur. On peut constater la bonne superposition de tous les spectres.

TAB. V.1 – Les paramètres d'ajustement Gaussien pris d'un run du détecteur 1

Paramètres	Valeur	Erreur
Amplitude1	455,78	5,54587
Position au pic1	19,60	0,02
Résolution1 (%)	18,52	0,30
Amplitude2	319,88	4,07
Position au pic2	26,80	0,02
Résolution2 (%)	14,90	0,20

V.3.2.3 Linéarité

Le modèle reliant l'énergie au canal est linéaire. La fonction d'étalonnage est donc linéaire, donnant un meilleur ajustement. Elle s'écrit telle que :

$$E_{\gamma} = p_0 + p_1 c \quad (\text{V.1})$$

avec E_{γ} l'énergie du γ incident, c le canal et enfin p_0 et p_1 les coefficients d'étalonnage.

Nous avons quarante détecteurs, donc déterminé quarante fonctions d'étalonnage. Nous avons fait un étalonnage chaque semaine durant la période de mesure. Les valeurs

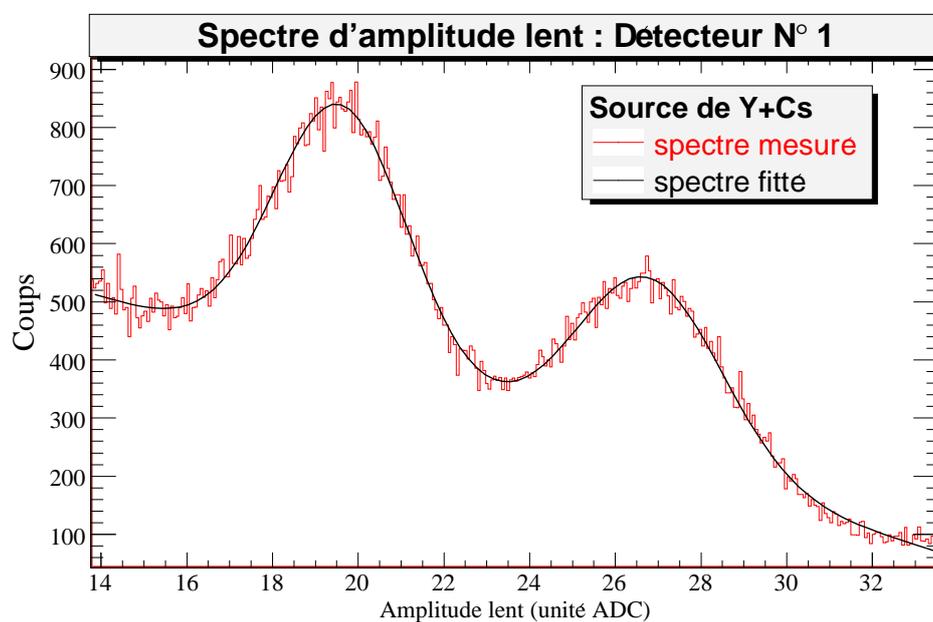


FIG. V.4 – Spectre d'amplitude du signal lent (rouge) ajusté par un ajustement Gaussien (noir) pour les énergies γ 662 et 898 keV.

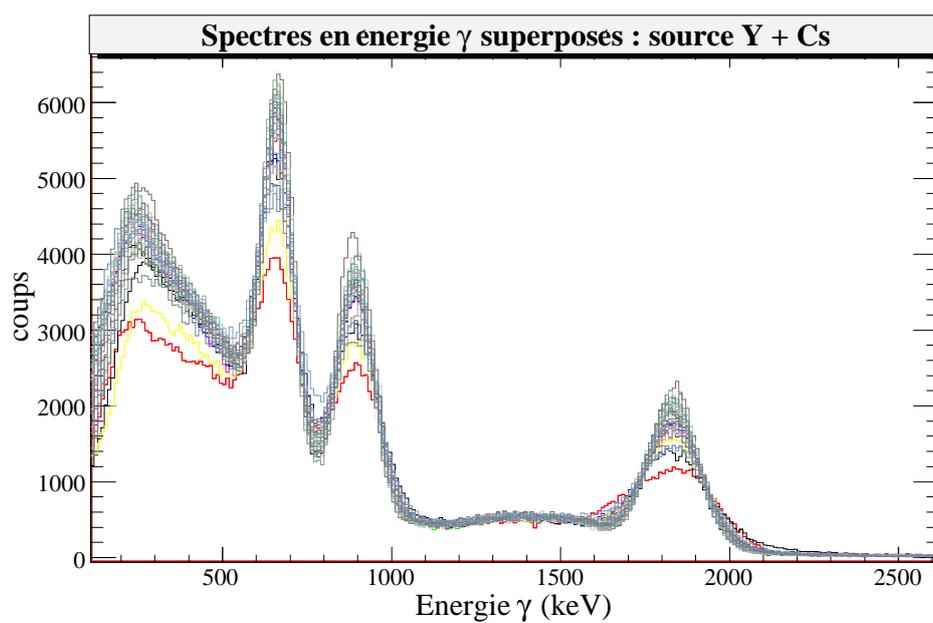


FIG. V.5 – Spectres en énergie γ des 40 BaF₂ superposés

des coefficients obtenus pour la mesure de l' ^{234}U sont données en annexe dans le tableau A.1 pour une unité d'énergie E_γ en keV.

La figure V.6 montre la différence entre l'étalonnage en énergie effectuée par l'utilisation de la composante lente (en noir) et l'intégrale du signal (en rouge) pour le détecteur 17. Les points de graphe sont pris des paramètres d'ajustement. Les sources radioactives utilisées ici pour l'étalonnage sont seulement l' ^{88}Y et le ^{24}Na . Les deux lignes sont extrapolées jusqu'aux les deux points de $^{238}\text{Pu}+^{13}\text{C}$ (à 6,13 MeV et au pic d'échappement à (6,13-0,511) MeV). Nous pouvons facilement remarquer que la linéarité est très bonne par l'utilisation seulement de la composante lente. A haute énergie, l'étalonnage en énergie utilisant l'intégrale du signal est non linéaire. La cause de cette non-linéarité vient du fait de la saturation de la composante rapide.

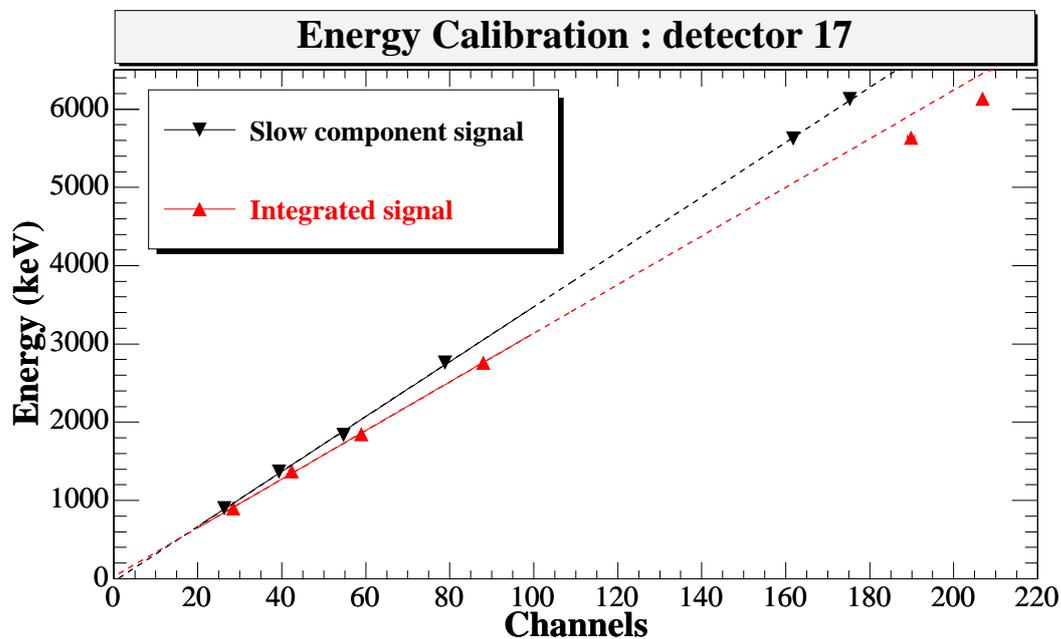


FIG. V.6 – Linéarité de l'étalonnage en énergie en utilisant la composante lente du signal (noir) et l'intégrale du signal (rouge).

V.3.2.4 La dépendance à la fréquence d'échantillonnage

La figure V.7 représente les spectres d'amplitude de la composante lente et d'intégrale du signal pour une source radioactive mixte ($^{88}\text{Y} + ^{137}\text{Cs}$) et pour le détecteur N° 16. La figure nous montre ses évolutions en variant la fréquence d'échantillonnage du 250 MHz (un échantillon toutes les 4 ns) à 500 MHz (un échantillon toutes les 2 ns). Avec la composante lente, l'étalonnage en énergie ne change presque pas. Par contre, avec l'intégrale du signal, l'effet de la fréquence d'échantillonnage est remarquable. C'est dû au fait que à 250 MHz la composante rapide varie plus vite que la fréquence d'échantillonnage et par conséquent la détermination du signal rapide est biaisée à cette fréquence.

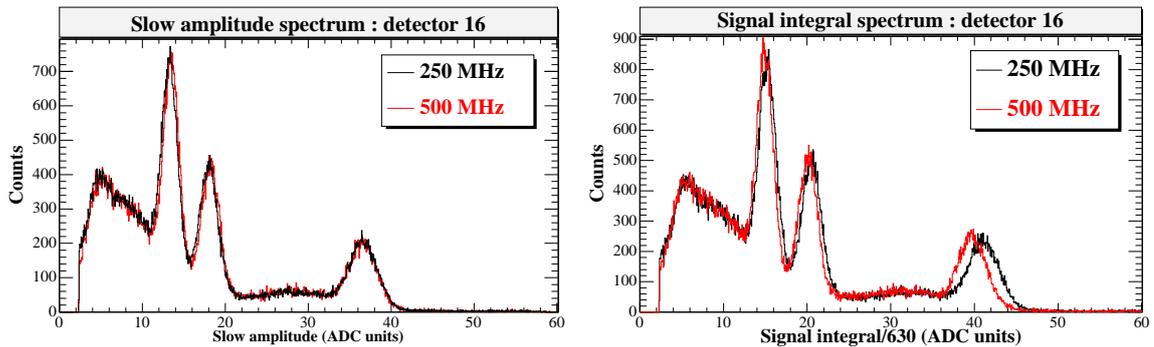


FIG. V.7 – Spectres d’amplitude lent et de l’intégral du signal pour 250 MHz (noir) et 500 MHz (rouge) comme fréquences d’échantillonnages pour le détecteur 16 avec une source radioactive mixte ($^{88}\text{Y} + ^{137}\text{Cs}$).

V.3.3 Contrôle de la dérive en énergie

Les variations à long terme du gain de PM ainsi que celles de température induisant celle de la lumière émise ($\Delta T = 1$ K change la taille du signal par $\sim 2\%$) doivent être monitorées. En plus l’efficacité du BaF_2 est également dépendante de température. En effet, si la température baisse l’émission de BaF_2 de la lumière de la composante lente devient plus forte. Cette variation exige un procédé de stabilisation à une échelle du temps de l’ordre de l’heure. À cette fin, les lignes α des impuretés de radium, présents dans les cristaux de BaF_2 , sont utilisées en tant que références internes. La ligne de 7,83 MeV de la décroissance de ^{214}Po est bien isolée et est utilisée pour la stabilisation du TAC (voir la figure V.8).

Pendant la période des mesures de sections efficaces de capture neutronique, le spectre α des 40 modules du détecteur est examiné séquentiellement.

La résolution en énergie dans le spectre somme est dégradée légèrement par ce procédé de stabilisation de gain.

La stabilité en énergie a été vérifiée en utilisant la ligne α de 7,83 MeV de la décroissance de ^{214}Po . La résolution d’énergie (FWHM) à cette énergie est environ 12%. Notre but est de détecter une variation en énergie de 0,25%. L’erreur sur la valeur de l’énergie moyenne, σ_E est donnée par :

$$\sigma_E = \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \quad (\text{V.2})$$

Avec σ correspond l’écart type lié au pic α de 7,83 MeV ($\simeq 12/2,35\%$) et N est le nombre de coups à l’intérieur de pic.

Le nombre de coups qu’ils nous faut pour obtenir la précision désirée est alors :

$$N = \left(\frac{\sigma}{\sigma_E} \right)^2 = \left(\frac{12/2,35}{0,25} \right)^2 \simeq 420 \quad \text{coups} \quad (\text{V.3})$$

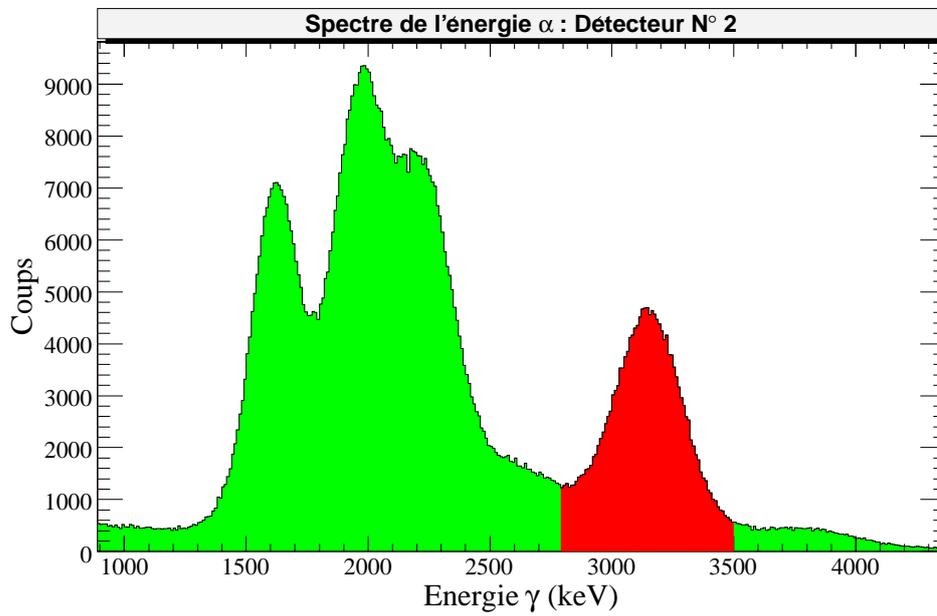


FIG. V.8 – Spectre d'énergie α (rouge) utilisé pour contrôler la stabilité en énergie.

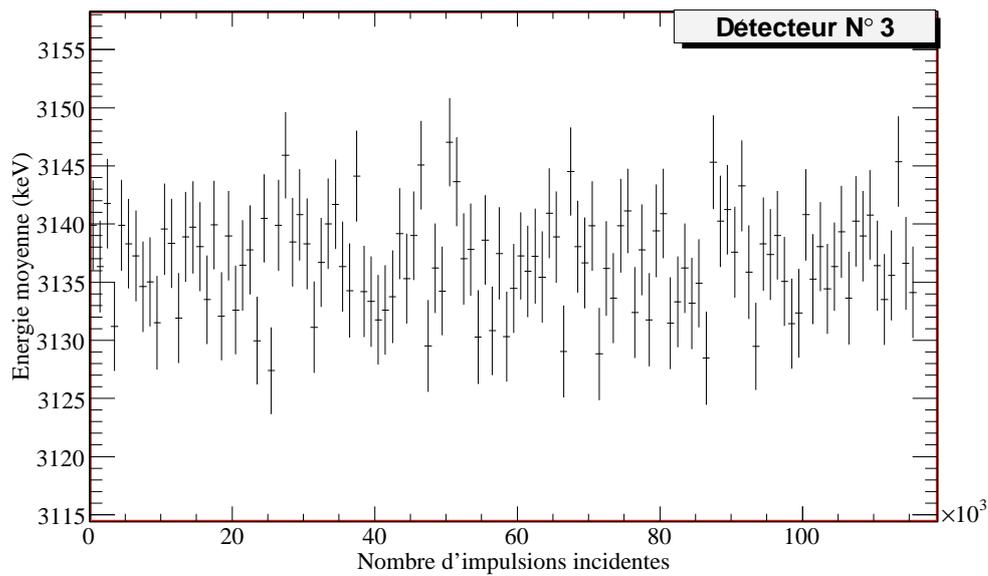


FIG. V.9 – L'énergie moyenne du pic α à 7,83 MeV calculée chaque 1000 impulsions.

Puisque le comptage α pour chaque détecteur est environ 200 coups/s [81] et environ un quart sont associés au pic α de 7,83 MeV, le temps, T , requis pour atteindre ce nombre de coups est :

$$T = \frac{N}{200/4} = 8,4 \text{ s} \quad (\text{V.4})$$

Puisqu'à 500 MHz, le signal est enregistré pendant 16 ms, le nombre d'impulsions, N_p , requis est :

$$N_p T = \frac{T}{16 \cdot 10^{-3}} = 525 \text{ impulsions} \quad (\text{V.5})$$

Suite à cette étude grossière, nous avons enregistré l'énergie moyenne associée avec le pic α de 7,83 MeV de la décroissance de ^{214}Po toute les 1000 impulsions du faisceau de protons. Les particules α ayant des énergies, pris sur l'étalonnage γ , de 2,8 à 3,5 MeV ont été considérées (la surface rouge dans la figure V.8). Si on suppose une valeur moyenne de 2 impulsions par supercycle (16,8 s), 1000 impulsions est environ une heure de mesure.

Nous pouvons voir sur la figure V.9, l'incertitude sur l'énergie moyenne de pic α à 7,83 MeV est environ 8 keV, pour une valeur moyenne d'environ 3135 keV (relative à l'étalonnage γ). Ceci nous montre que nous pouvons détecter une modification de gain en-dessous de 0,25%.

V.3.3.1 Anomalie des détecteurs 1 et 6

Après des contrôles qui ont été faits pour chaque détecteur à la réponse au pic α , nous avons remarqué des anomalies au niveau de détecteurs 1 et 6, là où le pic α de 7,83 MeV de la décroissance de ^{214}Po est inexistant.

Pour surmonter ce problème, nous avons fait une étude dans le but de voir l'évolution dans le temps du rapport des pentes de la régression linéaire déterminées pour chaque run d'étalonnage entre d'une part les détecteurs 1 ou 6 et d'autre part le reste des détecteurs. Nous avons trouvé que l'évolution la plus proche au cours du temps des détecteurs 1 et 6 sont respectivement les détecteurs 39 et 20. Nous avons donc pris les positions du pic α des détecteurs 1 et 6 données par celle de ces 2 détecteurs.

V.3.3.2 Correction de la dérive en énergie

Afin de tenir compte de la dérive de stabilité en énergie, nous avons procédé à une correction sur toutes les mesures qui ont été faites que ce soit les mesures d'étalonnages ou de mesures de sections efficaces. La procédure de la correction est la suivante :

- 1) Prendre les paramètres d'étalonnage en énergie déterminées précédemment.
- 2) Déterminer la position des pics α pour les mesures de capture qui sont proches de celles d'étalonnage

- 3) La correction d'énergie de chaque détecteur, id , et pour chaque groupe de 1000 événements, ie , est : $E_{ie,id} = \frac{Position_{ccalib}}{Position_{aie,id}} \times (p_{0,id} + p_{1,id} \times Canal)$

V.3.4 La fenêtre de coïncidence et ajustement de la fréquence d'échantillonnage

Nous avons abordé, dans le chapitre précédent, le problème du décalage en temps entre les modules d'acquisition. Bien que la précision de la fréquence d'échantillonnage soit de l'ordre du ppm, la dispersion entre les différents modules peut engendrer un décalage en temps d'autant plus important que le temps est grand. Ainsi aux temps de l'ordre de 16 ms, la déviation peut atteindre une vingtaine de ns. Un étalonnage en temps nous paraît donc nécessaire.

V.3.4.1 Méthodologie

Nous avons pris les événements, dont la multiplicité supérieure à un, de runs d'étalonnage pour les sources radioactives multi-gammas, car ces runs présentent moins de coïncidences fortuites que ceux de mesures de sections efficaces.

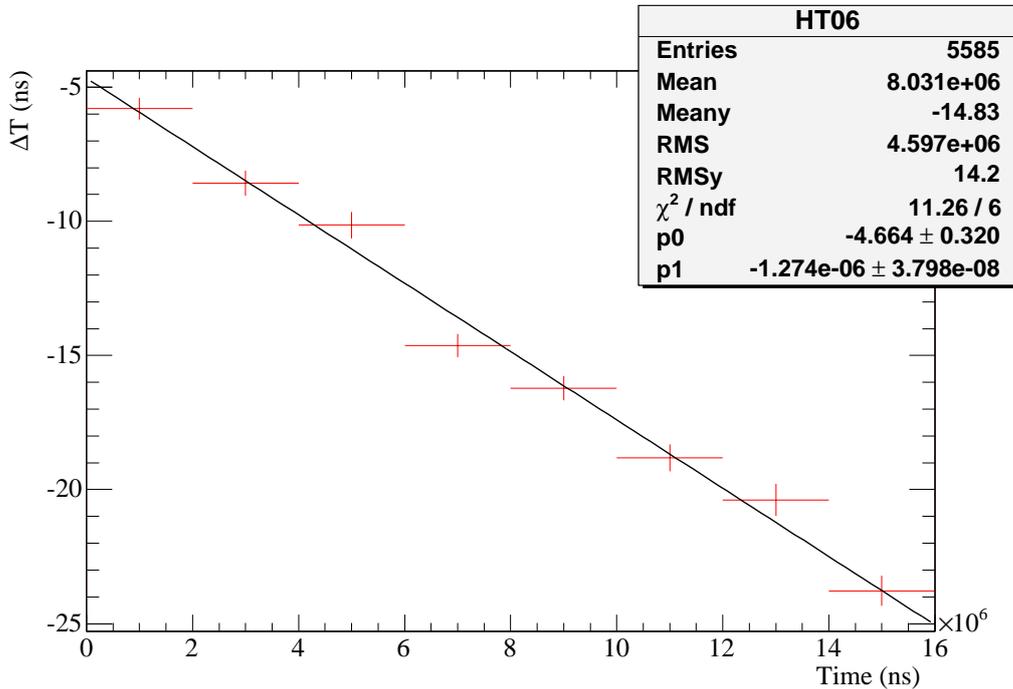


FIG. V.10 – La dérive ou décalage de temps de coïncidence en temps au cours du temps d'acquisition (16 ms) dont le détecteur de référence est N° 14.

L'étalonnage doit être fait à l'aide d'une référence, dont le critère de choix est un détecteur qui représente le maximum du nombre de coups de tous les détecteurs. Nous avons trouvé que le détecteur N° 14 est le plus adéquat.

Pendant la durée d'acquisition de données (16 ms), nous avons tracé l'histogramme (voir la figure V.10) présentant la différence en temps de coïncidence Δt entre chaque détecteur et celui de référence. Au début du temps d'acquisition, la différence en temps entre les détecteurs représente le décalage qui est due aux différences de temps de déclenchement des différents flashes ADC. Par contre la pente représente la différence de taux d'échantillonnage des flashes ADC. Cet histogramme est utile pour vérifier la dérive de temps. Les paramètres de la régression linéaire en fonction du temps, pour chaque détecteur, sont extraits et utilisés pour la correction des données. Le tableau A.2 en annexe donne les résultats des paramètres de la régression dont p_1 est la pente sans unité et p_0 l'ordonnée à l'origine exprimée en ns.

Notons que la dérive de temps n'évolue pas au cours de la période de mesure. c'est pour cela, cet étalonnage n'a pas besoin d'être répété.

V.3.4.2 Ajustement de la fréquence d'échantillonnage

Afin de tenir compte de la dérive du temps de coïncidence, nous avons procédé à un ajustement de la fréquence d'échantillonnage sur toutes les données mesurées que ce soient d'étalonnage ou de mesures de sections efficaces. La procédure de la correction est la suivante :

- 1) Prendre les paramètres p_1 et p_0 déterminés précédemment dans l'étalonnage
- 2) La correction du temps de chaque détecteur, id , et pour chaque événements, ie , est : $t_{ie,id} = t_{ie,id} \times (1 + p_{1,id}) - p_{0,id}$

Cette procédure nous permet aussi de synchroniser tous les temps des modules à une seule référence.

V.3.4.3 La fenêtre de coïncidence

Nous avons étudié Δt , la différence en temps de coïncidence de chaque événement qui représente le temps entre 2 événements successifs. Nous avons construit le spectre en intervalle de temps du TAC montrée sur la figure V.11. En analysant cette figure, nous remarquons que avant la correction, le temps de coïncidence s'étend jusqu'à environ 50 ns.

Par contre, après la correction de la fréquence d'échantillonnage, la fenêtre de coïncidence correspond au nombre de coups pour une durée de coïncidence entre tous les modules du TAC. Il est clair, qu'après la correction il y a une différenciation entre deux régions à un temps de coïncidence de 10 ns qui nous sera utile pour la correction du temps mort. La première région pour $\Delta t < 10$ ns correspond aux vraies coïncidences tandis que pour les temps supérieurs on ne voit que des coïncidences fortuites. Du rapport entre les deux régions, on peut déduire que le taux de fortuite est très inférieur au pourcent.

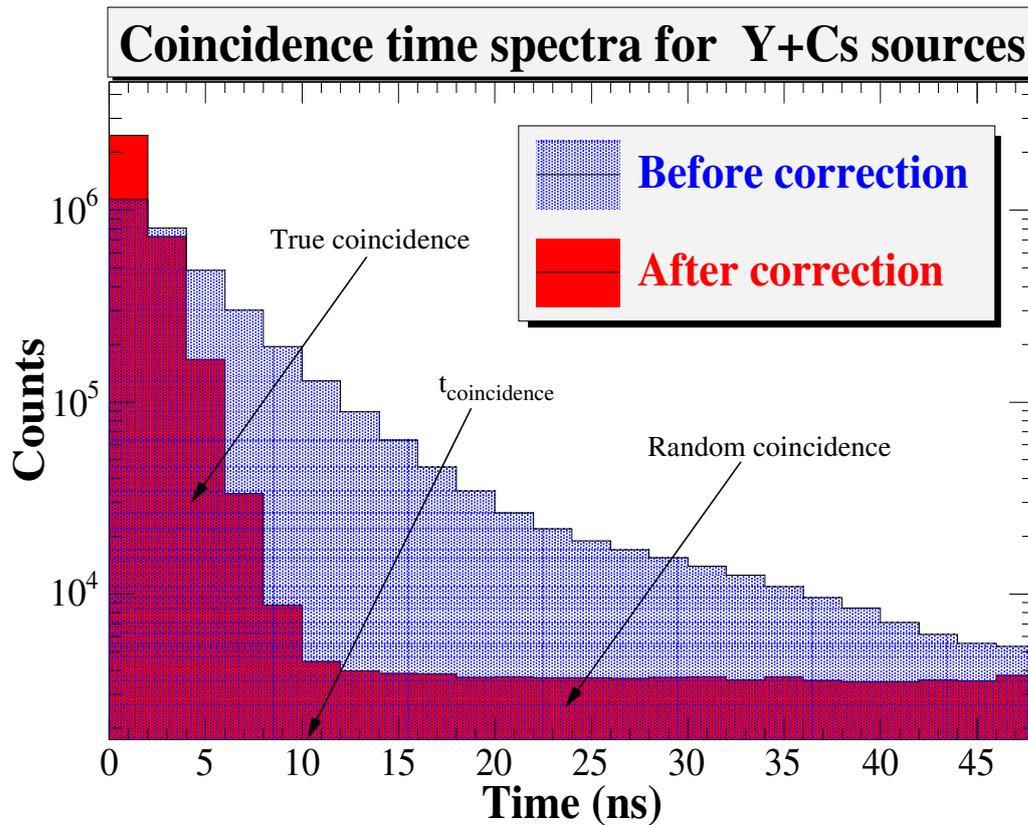


FIG. V.11 – La coincidence en temps entre les modules du TAC.

V.3.5 La résolution en énergie

V.3.5.1 Définition

Beaucoup d'expériences demandent qu'un détecteur mesure la distribution en énergie des radiations. Une propriété importante d'un détecteur dans ces conditions est la résolution en énergie qui peut être étudiée lorsque l'on a une source mono-énergétique. Cette distribution est appelée la fonction de réponse du détecteur pour une énergie donnée.

La capacité d'un détecteur à avoir une réponse la plus étroite possible est un avantage. On parle ainsi de la résolution en énergie du détecteur. La définition est donnée souvent au moyen de la largeur à mi-hauteur, FWHM et de la position du pic.

Il y a de nombreuses sources potentielles susceptibles de détériorer la résolution d'un détecteur. Il peut y avoir du bruit aléatoire sur les câbles qui relient le détecteur aux instruments de lecture et aussi des bruits provenant de l'expérience elle-même. Le jeu consiste à obtenir la meilleure résolution possible, en diminuant au mieux toutes ces variations.

V.3.5.2 La résolution en énergie

La résolution en énergie est obtenue des spectres des énergies somme de tous les modules du TAC, des sources de rayons gamma de ^{137}Cs , de ^{60}Co , de ^{88}Y , de ^{24}Na et (Pu/C) qui ont été décrites précédemment. La valeur de la résolution est déterminée lors l'étape d'étalonnage (voir tableau V.1).

Les spectres ont été obtenus par la somme des signaux de tous les modules du TAC.

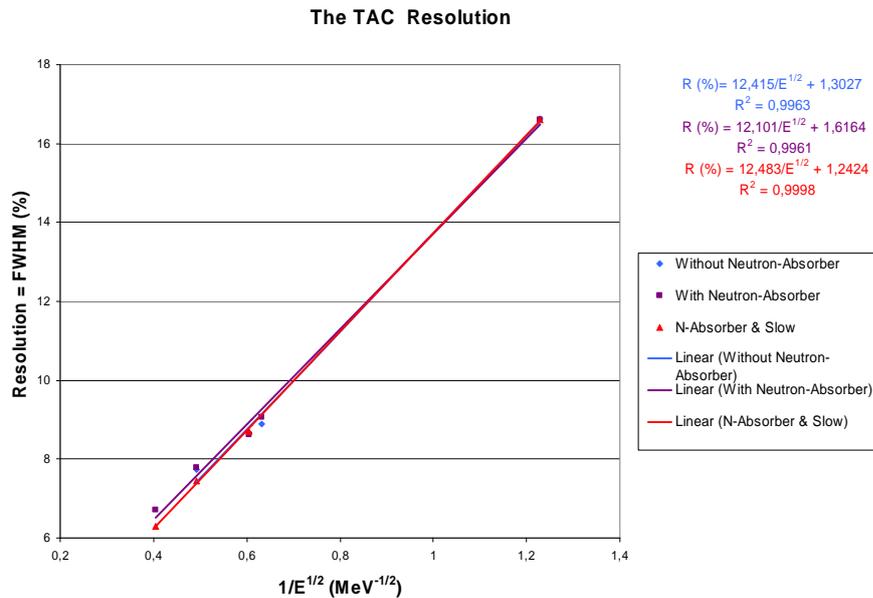


FIG. V.12 – La résolution globale du TAC.

Pour notre cas la résolution est essentiellement gouvernée par le nombre de photons collectés par le PM. Nous savons que ce nombre d'une part suit une fluctuation de Poisson et d'autre part est proportionnel à l'énergie déposée. C'est pour cela nous trouvons une résolution R proportionnelle à $1/\sqrt{E}$.

La résolution en énergie est présentée sur la figure (V.12), varie en $1/\sqrt{E}$ avec une petite déviation à 6,1 MeV. Généralement la résolution est plus mauvaise comparée à la moyenne des différents modules du TAC. Cette différence est due à la raison suivante : La résolution en énergie aux hautes énergies de rayons gamma souffre également des non-linéarités dans l'étalonnage en énergie, qui peut être différente pour différents modules du TAC.

La figure V.12 représente la résolution globale en énergie du TAC. Le premier et le deuxième cas sont respectivement la résolution sans et avec l'absorbeur de neutrons utilisant l'intégrale du signal. Le troisième cas est la résolution avec absorbeur en utilisant la composante lente seulement. Les lignes ont pratiquement les mêmes tendances

sauf à haute énergie il y a une petite déviation. Le troisième cas présente une linéarité meilleure que celle de deuxième cas, ce qui conforte notre choix d'analyse en utilisant la composante lente.

V.3.6 Efficacité aux sources multigammas

Dans ce paragraphe nous allons déterminer l'efficacité au pic d'absorption totale des sources radioactives multigammas. Nous présenterons la méthode de calcul et enfin nous montrerons les résultats.

L'efficacité au pic reflète le nombre d'événements détectés dans le pic d'absorption totale parmi le nombre total d'événements arrivant sur le détecteur. Elle dépend de plusieurs variables comme l'énergie γ , les caractéristiques de détecteur (dimensions, forme, matériel, etc.) et l'emplacement relatif de la source. L'efficacité au pic d'un système se composant d'une source placée à l'intérieur d'un détecteur infini serait l'unité, parce que toute l'énergie serait absorbée par le détecteur. Les systèmes réels ne répondent presque jamais à ces exigences, mais des efficacités au pic élevées peuvent être obtenues. L'effet de l'emplacement de source par rapport au détecteur sera de moins en moins important lorsqu'il est plus loin.

V.3.6.1 Méthode d'extraction

Basé sur les spectres d'énergies, l'efficacité au pic peut être calculée comme le rapport entre le nombre d'événements tombant dans la zone de pic (voir figure V.13), N_{pic} , et le nombre total d'événements produits touchant le détecteur, N_{tot} .

$$\epsilon_{pic} = \frac{N_{pic}}{N_{tot}} \quad (V.6)$$

Le nombre total de γ , N_{tot} , est plus grand que le nombre de γ agissant dans le détecteur, puisque certains d'entre ne sont pas vus par ce dernier.

Après une soustraction appropriée du bruit de fond ambiant, la détermination de l'efficacité on doit faire des ajustements sur des intervalles en énergie γ bien définis en utilisant des combinaisons convenables de fonctions, comme les fonctions Gaussiennes.

Dans notre cas nous avons procédé par une alternative approximative, qui est la suivante :

un certain soin doit être pris en choisissant les limites de pic puisque ceci affectera sa zone surfacique finale, et il n'est pas toujours clair où fixer les limites quand les pics se recouvrent. Comme prescription générale, des pics gaussiennes supposant d'écart type σ , les limites peuvent être placées à $\pm 3\sigma$ autour de la position du pic, qui correspond à 99,7% de toute sa zone.

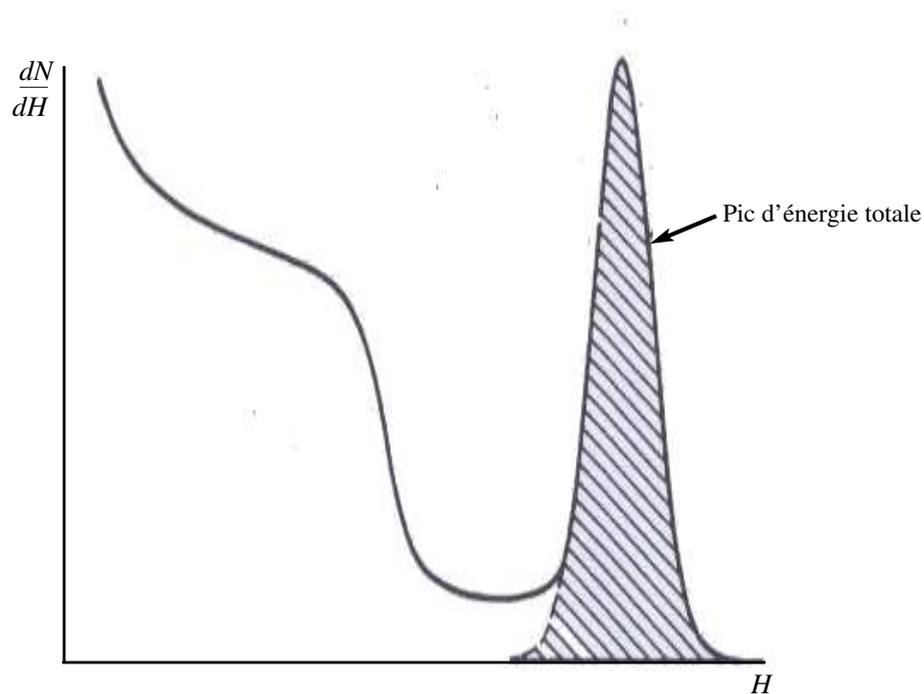


FIG. V.13 – Une représentation schématique d'un pic d'énergie totale.

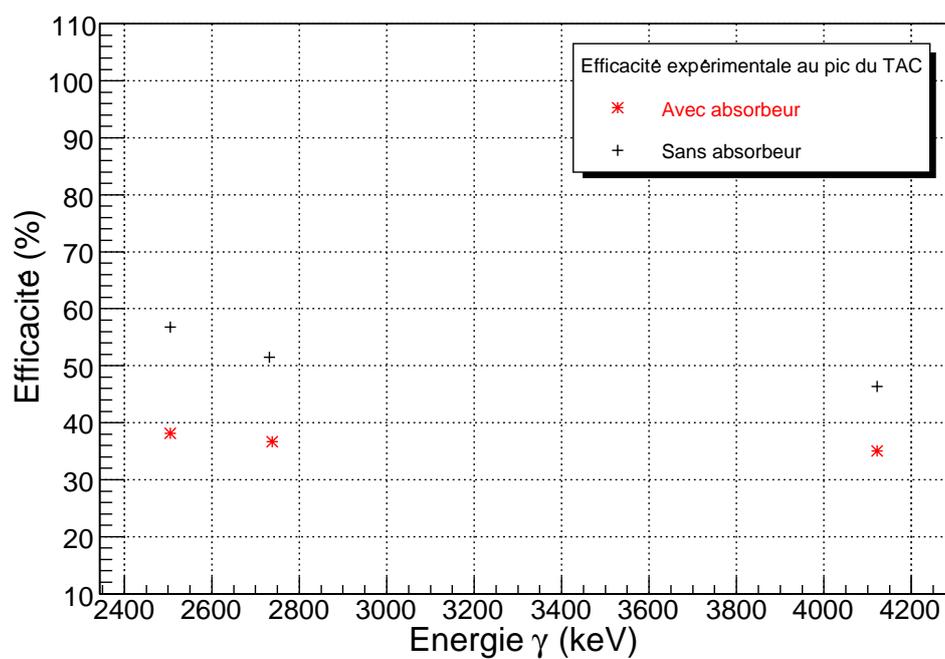


FIG. V.14 – L'efficacité expérimentale au pic avec et sans absorbeur de neutrons.

V.3.6.2 Résultats

La figure V.14 illustre l'évolution de l'efficacité d'absorption totale en fonction de l'énergie γ . Au delà de $\sim 2,5$ MeV, l'efficacité est quasiment constante. Il est clair que l'absorbeur de neutrons diminue l'efficacité.

Généralement, à très basse énergie l'effet photoélectrique est très grand mais il rend l'efficacité faible parce que cet effet ne concerne que le matériel autour du TAC. On observe également [115] une augmentation notable autour de 511 keV avec ensuite une baisse significative. Au delà de 1 MeV, la création des paires devient rapidement dominante ce qui nous permet d'avoir une efficacité presque constante.

La meilleure manière d'évaluer l'efficacité au pic est par le moyen d'un code de Monte Carlo qui effectue le transport des particules à travers le matériel de détecteur. Plusieurs codes peuvent être employés à cette fin mais cela sera l'objet du chapitre suivant.

V.4 Efficacité de détection pour les résonances isolées

L'efficacité du TAC est définie comme étant le rapport du nombre de réactions détectées sur le nombre de réactions ayant réellement eu lieu dans l'échantillon. On sait que l'efficacité de détection d'une capture peut dépendre fortement de la cascade γ qui suit la capture des neutrons.

Enfin, l'efficacité pourrait varier avec l'énergie des neutrons. En effet, l'énergie totale de la cascade varie légèrement avec celle des neutrons et on peut donc penser que la variation d'énergie d'excitation du noyau $A + 1$ peut entraîner une variation de la cascade γ d'une résonance à l'autre.

Nous avons étudié la variation de l'efficacité du TAC en fonction de l'énergie de neutrons. Pour cela nous avons déterminé l'efficacité pour les premières résonances isolées que ce soit pour ^{197}Au et ^{234}U .

V.4.1 Méthode de soustraction de bruit de fond

Pour obtenir la réponse de ^{197}Au ou de ^{234}U seule (sans bruit de fond) voir la figure V.15, nous avons construit le spectre en énergie totale correspondant au signal, au bruit juste avant (designé par l'indice l) et après (designé par l'indice r) la résonance. Pour avoir le spectre sans bruit on construit le spectre suivant :

$$\text{signal} - \frac{1}{2}(\text{bgd}_l \times \frac{dt}{dt_l} + \text{bgd}_r \times \frac{dt}{dt_r}) \quad (\text{V.7})$$

c'est-à-dire une moyenne en temps du bruit avant et après le signal.

Cette méthode d'extraction de bruit est très efficace pour déduire la composante de bruit de fond indépendante, ou variant peu, avec le temps. Nous avons pris les réponses du TAC à partir de 1 MeV en énergie γ pour s'affranchir du bruit de fond

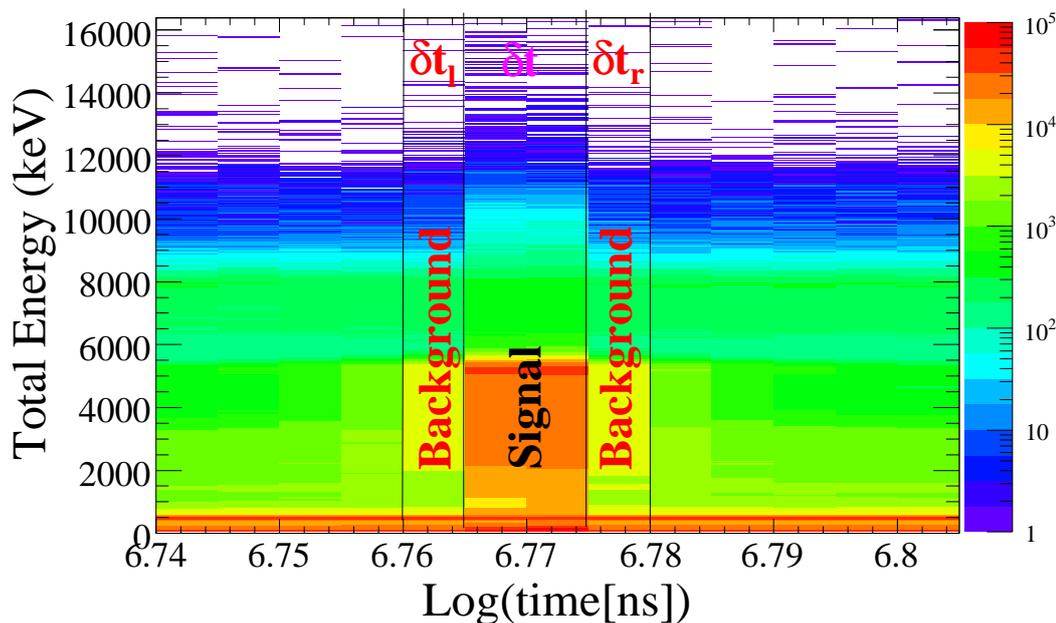


FIG. V.15 – Matrice de l'énergie totale en fonction temps à partir de laquelle nous avons extrait le bruit de fond.

de basse énergie. En plus, ces réponses n'ont pas subi de correction que ce soit en temps mort ou d'empilement. Afin de déterminer l'efficacité du TAC, nous avons comparé la réponse de ce dernier sans aucune condition de sélection d'événements et en réclamant un nombre de clusters, où un cluster est formé de cristaux adjacents touchés simultanément, supérieur ou égale à deux.

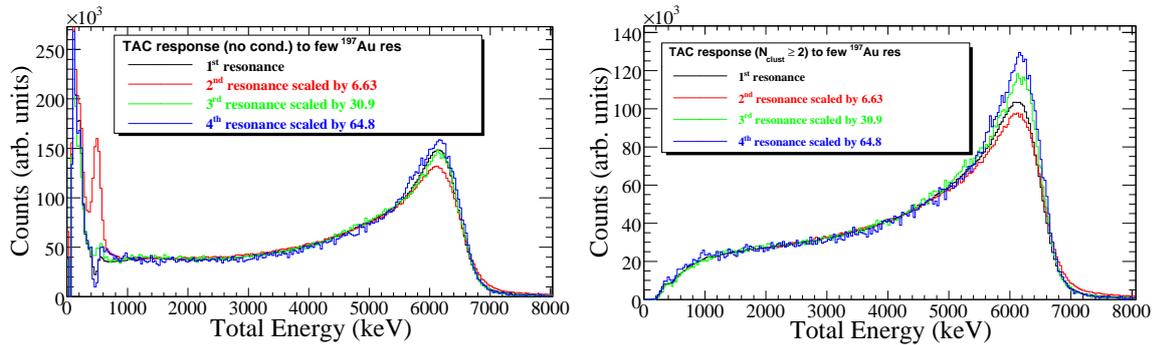
V.4.2 Efficacité de détection pour les résonances isolées pour ^{197}Au

La figure V.16 illustre la réponse du TAC à quelques résonances isolées de ^{197}Au sans condition de sélection d'événements (à gauche) et en réclamant que plus d'un cluster soit touché (à droite).

Pour la réponse sans condition, à basse énergie γ , la forme varie d'une résonance à l'autre. Cette variation est due à l'extraction de bruit de fond ambiant qui n'est pas parfaite. Ce résultat influe sur le calcul de l'efficacité donnée dans le tableau V.2. Dans ce tableau est reporté l'efficacité relative pour :

- une énergie totale déposée supérieure à 1 MeV par rapport à la réponse sans aucune condition,
- plus d'un cluster touché par rapport à une énergie totale déposée supérieure à 1 MeV.

Ces valeurs sont obtenues en comparant les valeurs données par l'intégration des spectres montrés sur la figure V.16. Nous trouvons l'efficacité relative de détection

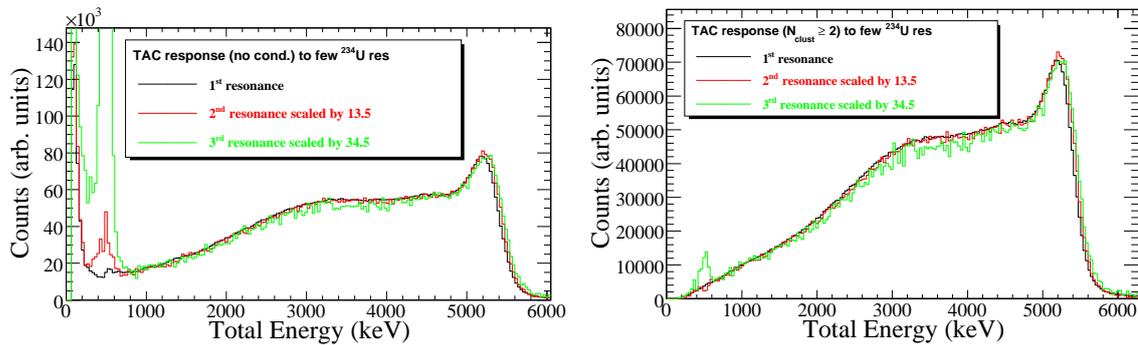
FIG. V.16 – Réponse du TAC aux résonances isolées de l' ^{197}Au .TAB. V.2 – Résonances isolées de la réponse du TAC pour l' ^{197}Au .

N° Résonance	Efficacité (Sans condition) (%)	Efficacité ($N_{\text{clust}} > 1$) (%)
	($E > 1 \text{ MeV}$)/ E	Clust/($E > 1 \text{ MeV}$)
1	84,6	78,1
2	78,8	78,0
3	84,5	81,1
4	84,3	82,3

pour une énergie totale supérieure à 1 MeV est aux alentours de 84% sauf pour la 2^{ème} résonance qui est de l'ordre de 79%. Cet écart est probablement dû à la méthode d'extraction du bruit de fond employée qui ne marche pas correctement avec cette résonance du fait que la section efficace de diffusion neutronique importante pour cette résonance. L'efficacité relative pour la condition de sélection d'événements $N_{\text{Clust}} \geq 1$ est de $80 \pm 2\%$. La variation d'efficacité est en partie due à la variation de l'efficacité du critère de sélection en fonction du taux de comptage qui sera explicitée dans les chapitres suivants.

V.4.3 Efficacité de détection pour les résonances isolées pour ^{234}U

Les remarques évoquées pour l' ^{197}Au sont toujours valables pour l' ^{234}U . La forme de la réponse du TAC pour le ^{234}U est montré sur la figure V.17 et les efficacités qui en découlent dans le tableau V.3. L'extraction de bruit de fond a influé de manière significative sur les résultats obtenus. Seule la réponse pour la première résonance ne semble pas affectée de pic parasite aux alentours de 500 keV et donc c'est son efficacité qui a été considérée dans la suite de l'analyse. Le taux de comptage pour cette étant plus faible on peut constater une remarquable stabilité de l'efficacité relative de détection associée à plus d'un cluster touché.

FIG. V.17 – Réponse du TAC aux résonances isolées de l' ^{234}U .TAB. V.3 – Résonances isolées de la réponse du TAC pour l' ^{234}U .

	Efficacité (Sans condition) (%)	Efficacité ($N_{\text{clust}} > 1$) (%)
N° Résonance	($E > 1 \text{ MeV}$)/ E	Clust/($E > 1 \text{ MeV}$)
1	89,7	86,3
2	87,6	86,4
3	71,0	86,3
4	67,2	86,7

V.5 Réponse du TAC en fonction du taux de comptage

La figure V.18 montre la réponse de l' ^{197}Au à deux taux de comptage différents. Un ajustement bin par bin de la réponse a été fait dont le pic est ajusté par une Gaussienne et la queue par un produit d'un polynôme de 3^{ème} degré et d'une fonction d'erreur complémentaire. La variation du taux de comptage modifie plusieurs paramètres tels que la largeur à mi-hauteur, l'énergie moyenne et finalement l'amplitude qui devraient être pris en compte lors d'ajustement.

En conclusion, la réponse du TAC dépend du taux de comptage pris en compte. En augmentant ce dernier, nous remarquons un élargissement de la réponse d'où dégradation de la résolution en énergie, la position du pic d'absorption totale est plus élevée et une diminution de l'efficacité de détection du TAC.

V.6 Sensibilité aux neutrons

La figure V.19 montre le nombre de coups ayant une énergie totale déposée entre 1 et 7,5 MeV par 7×10^{12} protons, en fonction de l'énergie des neutrons incidents, pour la mesure de l' ^{197}Au sans (en rouge) et avec (en noir) absorbeur de neutrons. La bosse à

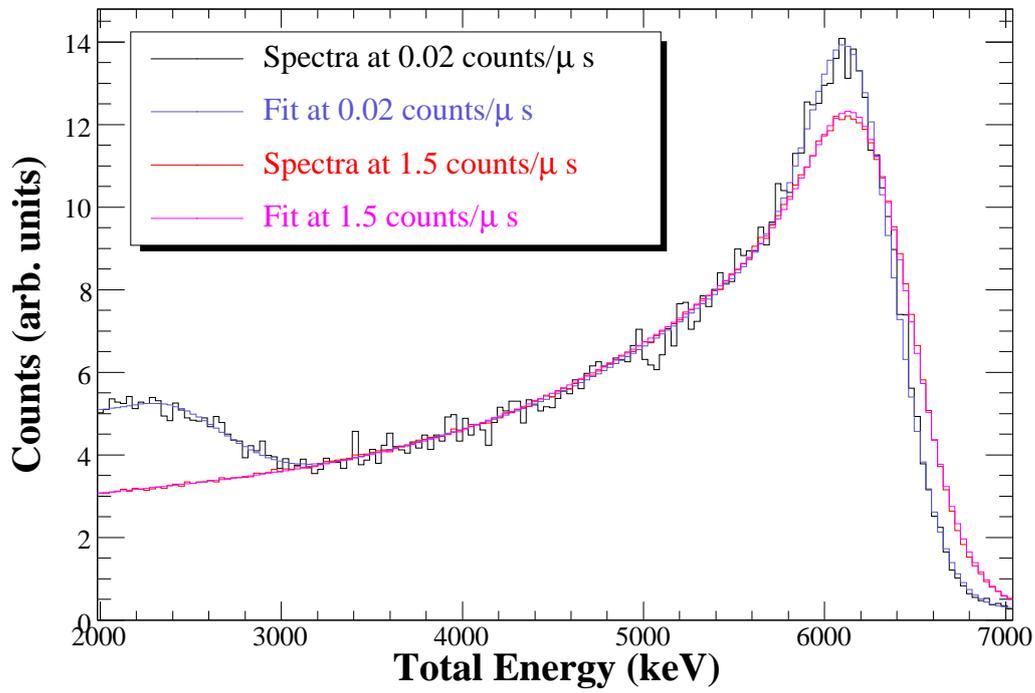


FIG. V.18 – Réponse du TAC pour $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$ en fonction du taux de comptage.

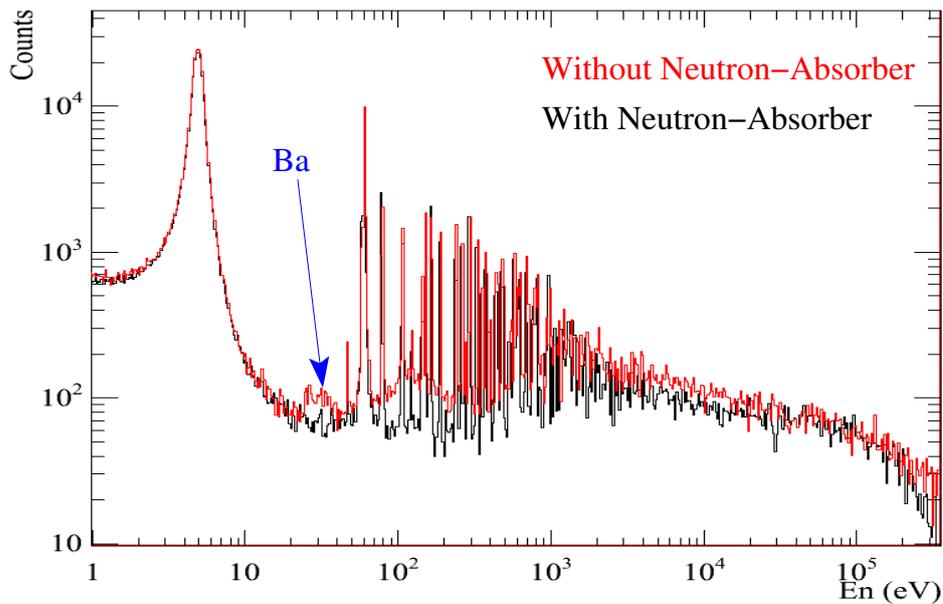


FIG. V.19 – Données brutes de la mesure $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$ dans la gamme en énergie totale γ [1 MeV, 7,5 MeV].

l'énergie de neutrons autour de 24,4 eV présente la capture neutronique dans l'isotope ^{135}Ba qui a une section efficace de capture de pics 2142,7 barns et une largeur radiative de 110 meV, qui est situé entre les deux premières résonances de l' ^{197}Au .

L'ensemble des figures de V.20, présentent la réponse en énergie du TAC à la capture neutronique de l'or sans (en rouge) et avec (en noir) absorbeur de neutrons aux différentes gammes d'énergies de neutrons.

Les signaux à basse énergie des γ inférieure à 2,5 MeV, représentent généralement le bruit de fond ambiant. La capture de neutrons dans l' ^{197}Au est présentée par le signal à 6,5 MeV. La capture neutronique dans le BaF_2 est dominée par ^{137}Ba et ^{135}Ba avec les énergies de séparation 8,6 et 9,1 MeV respectivement. Cela est due aux grandes sections efficaces de capture pour les deux isotopes.

Nous pouvons voir dans ces figures V.20, la perte d'efficacité au niveau du pic d'absorption totale. Les sous-figures (c et d) montrent l'influence de la sensibilité du baryum aux neutrons : la sensibilité a été considérablement réduite avec l'absorbeur. Pour des neutrons incidents d'énergie inférieure à 10 eV, nous notons que la capture dans le baryum est négligeable. Entre 10 eV et 10 keV l'absorbeur rempli pleinement sa fonction. Au delà de 10 keV, l'effet de l'absorbeur est presque négligeable. Ceci qui est due bien évidemment à la décroissance en $\frac{1}{v}$ de la section efficace de capture neutronique du ^6Li .

V.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons décrit les caractéristiques expérimentales du TAC. Nous avons commencé notre analyse de zéro, puisque c'est la première fois que n_TOF procède la mesure de capture neutronique avec le TAC. Nous avons expliqué les procédures d'étalonnage en énergie et en temps. Nous avons trouvé une résolution acceptable variant en $1/\sqrt{E}$. Nous avons estimé l'efficacité au pic d'absorption avec les difficultés rencontrées. L'efficacité de détection globale du TAC selon divers critères de sélections d'événements doit être déterminé avec précision. Ceci ne peut pas se faire expérimentalement. C'est pour cela nous avons eu recours à la simulation Monte Carlo qui fera l'objet du prochain chapitre.

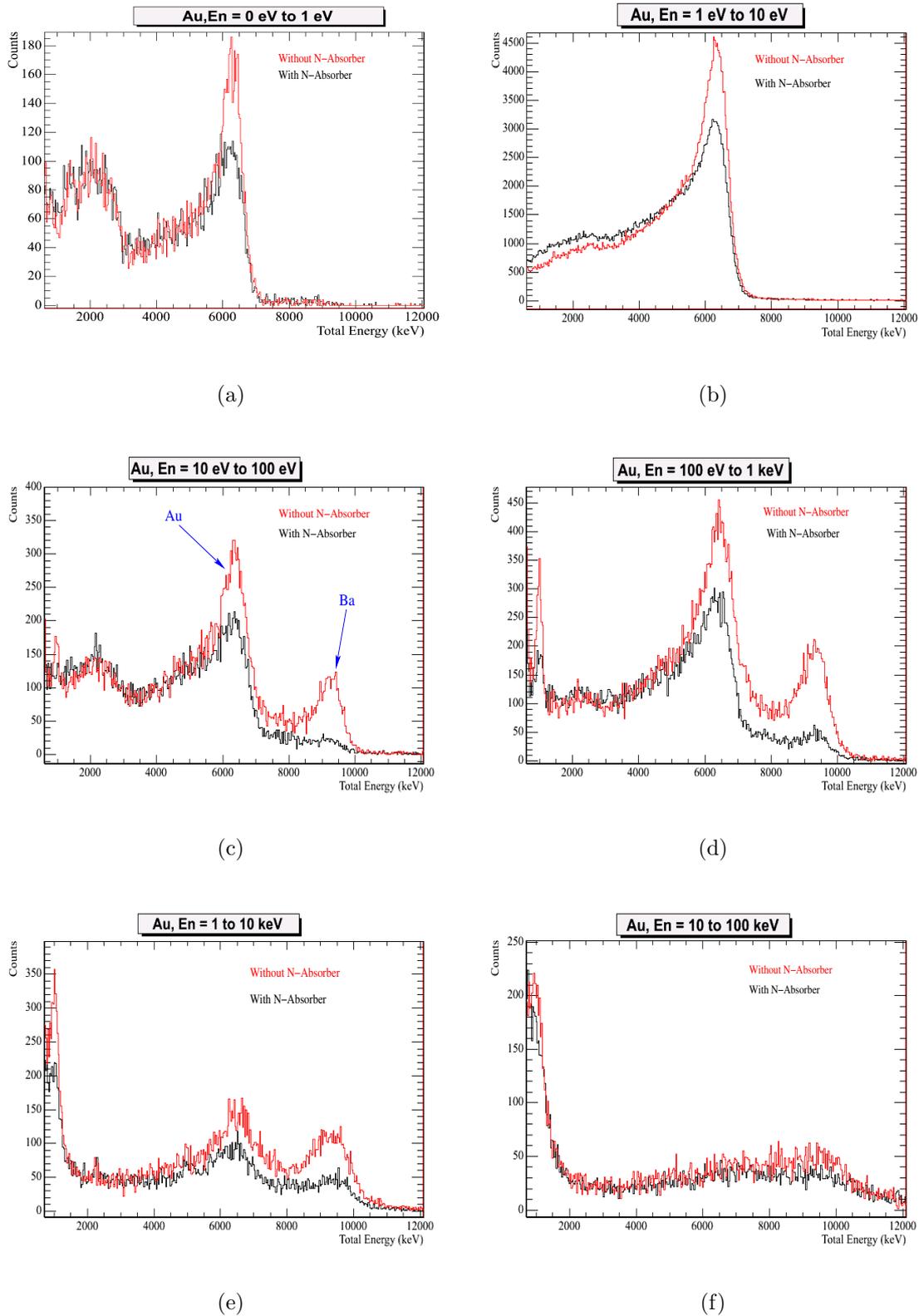


FIG. V.20 – L'influence de l'absorber de neutrons sur la réponse du TAC aux neutrons. Les spectres sans (en rouge) et avec (en noir) absorber sont présentés.

Chapitre VI

Simulations Monte-Carlo du TAC

VI.1 Introduction

Du point de vue de l'analyse, la technique de Monte-Carlo, MC, nous a permis non seulement de déterminer l'efficacité précise, mais c'est devenu également un outil prolifique et efficace pour corriger la réponse du TAC du temps mort et expliquer plusieurs sources d'incertitudes systématiques.

VI.2 Pourquoi la simulation ?

La détermination expérimentale de l'efficacité de détection avec une précision acceptable est difficile sans recourir à la simulation. En plus l'étude de plusieurs autres aspects, comme par exemple la correction du temps mort, nous a mis dans une situation peu claire pour poursuivre notre analyse avec une incertitude acceptable. Au cours de nos simulations, nous avons réexaminé la question de la précision de la simulation MC, en particulier si les différences entre simulations et mesures étaient dues aux détails insuffisants dans la description du calorimètre ou plutôt de l'implémentation, dans le code de MC, des processus physiques appropriés à la génération des événements.

En outre, comme on le montrera dans les sections suivantes, la technique de Monte Carlo devient un outil essentiel d'analyse dans ce type de mesures de capture neutronique afin d'expliquer plusieurs sources expérimentales de déviation systématique et afin de déduire des rendements expérimentaux fiables.

Nous avons commencé la modélisation avec MCNP (voir annexe B) pour plusieurs raisons, la principale étant que ce dernier est dédié au transport des neutrons.

En commençant les études préliminaires par la comparaison aux sources multi-gamma comme le cobalt, nous avons constaté que MCNP ne prend pas en compte la coïncidence des γ émis simultanément. Or pour déterminer l'efficacité de détection des gammas on a besoin de cette coïncidence. C'est pour cela nous avons choisi GEANT4, mais aussi pour des raisons que l'on précisera dans le paragraphe suivant.

VI.3 Le code GEANT4 en quelques mots

GEANT4 est une boîte à outils fournissant les fonctionnalités nécessaires pour simuler l'interaction des particules avec la matière. Ces fonctionnalités comprennent la trajectoire des particules, la géométrie du détecteur, les modèles physiques et le taux de comptage. Les processus physiques possibles comprennent les processus électromagnétiques, hadroniques et optiques, un grand ensemble de particules (neutrons, photons, électrons, hadrons et ions), matériaux et éléments, sur un grand choix d'énergie commençant, dans certains cas, à partir du domaine thermique jusqu'au TeV. Elle est développée à l'aide de la technologie orientée objet avec le langage de programmation C++ qui lui permet d'être flexible en matière de paramétrisation de la géométrie et des processus physiques. Elle a été employée pour des applications telles que la physique des particules, la physique nucléaire, la conception d'accélérateurs, la technologie de l'espace et la médecine nucléaire.

Dans notre étude, GEANT4 a été choisi à cause des raisons suivantes :

- 1) traitement détaillé des interactions électromagnétiques.
- 2) Le paquet de physique hadronique contient une base de données de sections efficaces pour les réactions induites par les neutrons jusqu'à 20 MeV en énergie de neutrons.
- 3) Capacités détaillées de reconstruction des traces pour la génération des événements.

VI.4 Modélisation de la géométrie du TAC

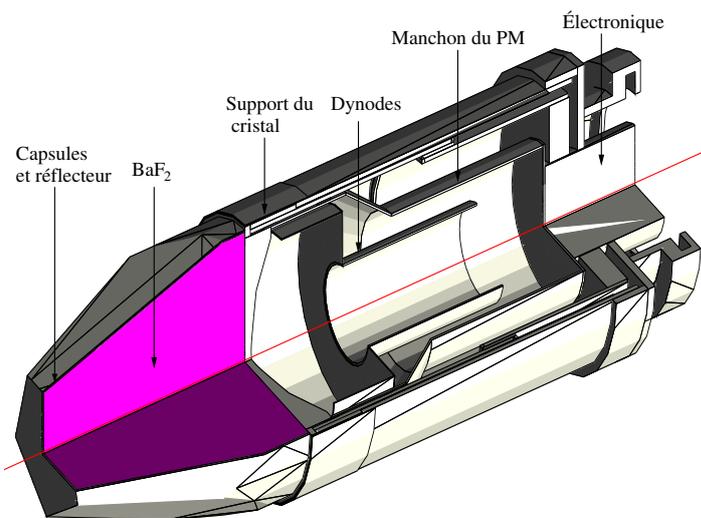


FIG. VI.1 – Vue 3D d'une coupe longitudinale d'un seul module du TAC montrant les différents constituants inclus dans la simulation GEANT4.

La géométrie du TAC est modélisée avec GEANT4 selon la description détaillée au chapitre IV. La figure VI.1 correspond à une représentation 3D d'un module avec une coupe montrant le niveau de détail implémenté dans la simulation.

La figure VI.2 correspond à la totalité du calorimètre en montant chaque module à sa place. Le tableau C.2, donnée en annexe, nous renseigne sur les caractéristiques des matériaux qui constituent le cristal et sa capsule, le PM et son support, l'absorbeur de neutrons et son réflecteur et enfin le tube faisceau de neutrons.

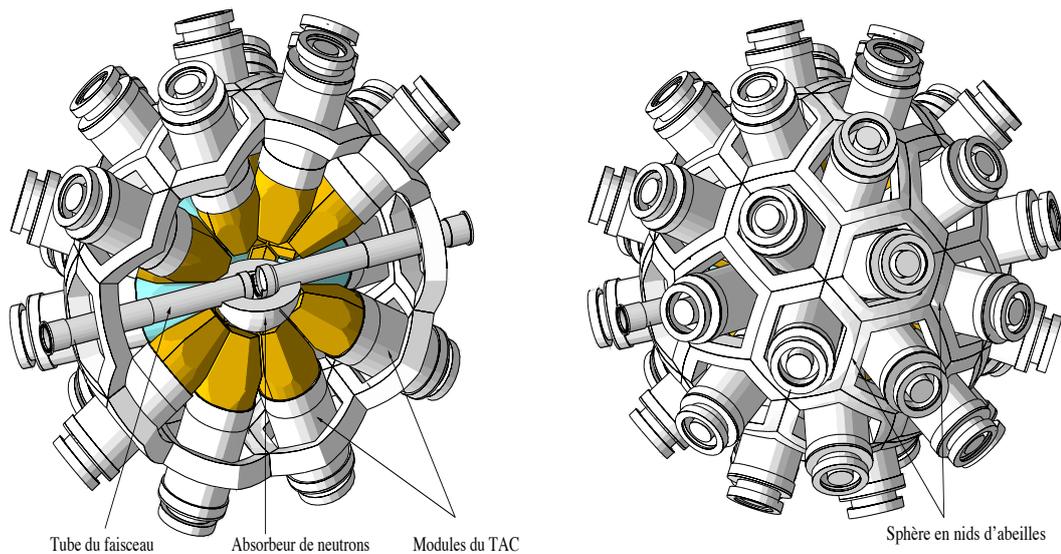


FIG. VI.2 – Gauche : un hémisphère du TAC. Cette figure montre le tube de faisceau de neutrons et l'absorbeur de neutrons. Droite : Le TAC comme il est implémenté avec GEANT4 afin de simuler sa réponse.

VI.5 Caractéristiques adoptées dans la simulation

Afin d'avoir des résultats simulés proches de la réalité, nous avons inclus, dans GEANT4, plusieurs caractéristiques appropriées et qui sont propres à l'expérience effectuée à n_TOF. Ces caractéristiques sont :

- 1) les spectres d'énergie déposées sont tracés avec un largeur de canal de $\Delta E = 5$ keV,
- 2) la résolution instrumentale des détecteurs a été incluse dans les réponses simulées en effectuant une convolution avec une fonction gaussienne d'une largeur σ appropriée. Des détails sur la résolution instrumentale sont donnés dans le chapitre V
- 3) prise en compte de l'énergie seuil dans la simulation (75 keV par défaut : celle de l'expérience),

- 4) prise en compte du taux de comptage : une modélisation MC a été utilisée pour simuler les effets de temps morts du TAC que nous expliquerons dans le chapitre suivant lors de la correction de temps mort dans la réduction de données,
- 5) Un événement est défini comme un ensemble de coups dans les cristaux ayant une énergie déposée au-dessus du seuil considéré.
- 6) Calcul de la multiplicité de chaque événement, qui représente le nombre de cristaux touchés par des gammas.
- 7) Calcul du nombre de « cluster » de chaque événement, où un « cluster » est formé de cristaux adjacents touchés en même temps par des gammas.

VI.6 Etudes préliminaires

Comme déjà dit au §VI.3, plusieurs modèles sont inclus dans GEANT4. Parmi eux, on trouve le modèle électromagnétique, qui concerne notre étude. En effet, ce modèle fournit une variété d'implémentations d'interactions d'électron, de positron, de photon et d'interactions chargées de hadron. Les processus de photon incluent la diffusion de Compton, la conversion gamma en paires d'électron et de muon, et l'effet photoélectrique. En sus de ce modèle standard, il y a une extension à basse énergie qui peut aller en dessous de 250 eV.

Pour les simulations menées avec GEANT4, la comparaison entre le modèle physique électromagnétique à basse énergie et le modèle standard présenté dans la figure VI.3 ne nous montre aucune amélioration ou variation des résultats lors de changement du modèle des interactions électromagnétiques implémenté dans GEANT4.

Nous avons effectué plusieurs études préliminaires sur les paramètres qui influencent la modélisation électromagnétique de GEANT4 [116]. Ceux qui nous intéressent sont :

- 1) « Cut-off » exprimé en unité de longueur : une trajectoire de particule est supprimée lorsque son parcours va au-dessous de la coupure « Cut-off », qui représente la précision de la position d'arrêt. La figure VI.4 nous montre qu'en variant ce paramètre entre 0,001 mm et 10 mm, aucun changement n'apparaît sur les résultats. Pour la suite des simulations nous avons fixé « Cut-off » à 0,1 mm.
- 2) Le même test réalisé avec « StepMax », exprimé en unité de longueur, qui est la longueur maximale d'un pas de génération d'événements. La figure VI.5 montre aucune variation de résultats en variant ce paramètre. Pour la suite du travail, « StepMax » est fixé à sa valeur par défaut qui est 0,01 mm.

Plusieurs autres tests ont été effectués, comme ; une comparaison des réponses du TAC pour une émission de gammas monoénergétiques isotropiques et anisotropiques et une autre pour une source ponctuelle et source volumique (un disque 5×5mm). Ceux ci ne nous révèlent aucune variation notable dans les résultats.

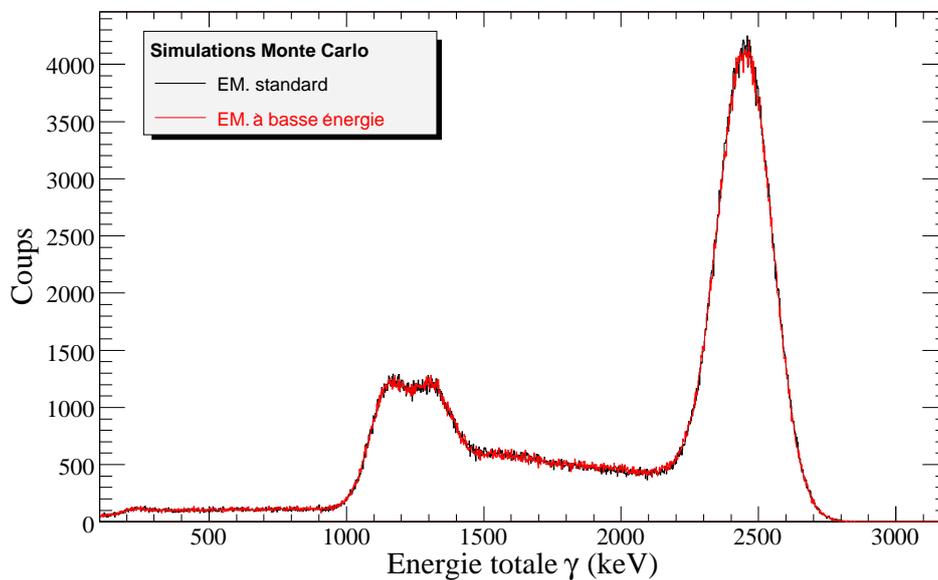


FIG. VI.3 – Comparaison entre modèle physique EM standard et EM à basse énergie avec le rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons avec une source ^{60}Co .

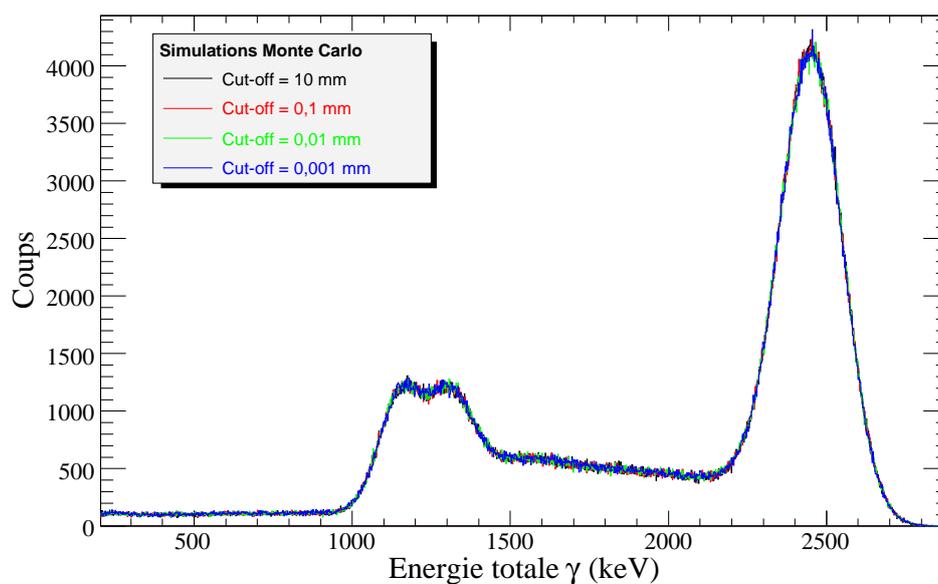


FIG. VI.4 – Comparaison entre les différentes valeurs de « Cut-off » avec le rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons avec une source ^{60}Co .

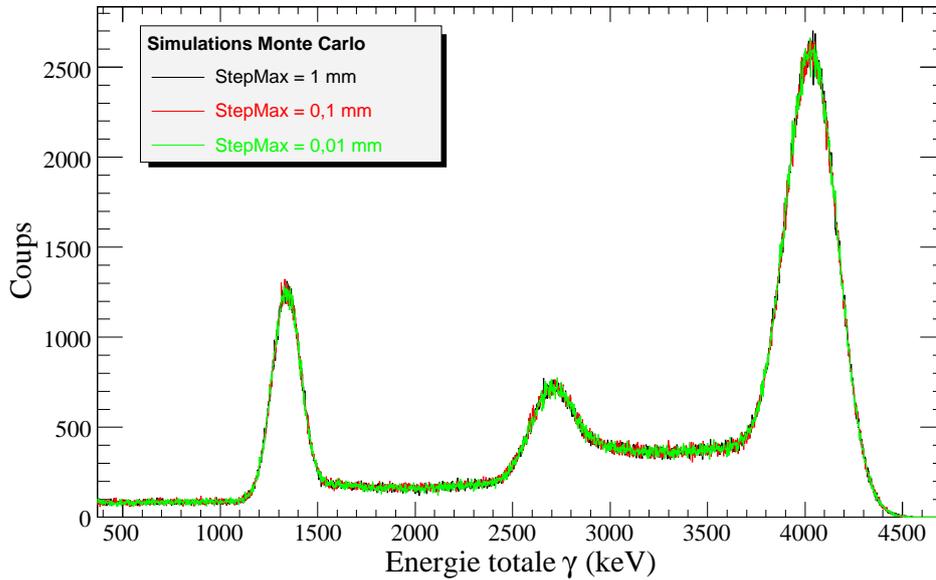


FIG. VI.5 – Comparaison entre les différentes valeurs de « StepMax » avec le rayon interne = 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons avec une source ^{24}Na .

VI.7 Modélisation des sources radioactives

Suite à leur désintégration β , certaines sources radioactives émettent deux gammas successifs qui sont corrélés entre eux.

En fait, si la spectroscopie nucléaire devait traiter seulement la radiation dipolaire de même que la spectroscopie optique, des attributions uniques de spin pourraient être faites pratiquement dans chaque cas, à partir de la corrélation angulaire des rayons gamma successifs.

En raison de l'occurrence de multipôles plus élevés, la situation est légèrement plus compliquée. Hamilton [117] et Goertzel [118] ont calculé explicitement la corrélation angulaire des rayons gamma successifs pour toutes les combinaisons possibles de dipôle pur et de rayonnements quadripolaires. Une discussion générale a été donnée par Yang [119].

La probabilité qu'un gamma d'une paire de rayons soit émis le long d'une direction donnée dans un élément d'angle solide $d\Omega$ si l'autre est émis sous un angle θ par rapport au premier est donnée par la corrélation angulaire de deux rayons gammas successifs.

$$W(\theta) = 1 + \sum_1^l a_i \cdot \cos^{2i} \theta \quad (\text{VI.1})$$

où $2l$ est l'ordre du plus bas multipôle de la cascade. S'il y a deux rayons gammas qui sont des quadripôles $W(\theta) = 1 + a_1 \cdot \cos^2 \theta + a_2 \cdot \cos^4 \theta$. Si un gamma est dipolaire $W(\theta) = 1 + a_1 \cdot \cos^2 \theta$, etc. Une autre restriction des termes dans $W(\theta)$ est $a_i = 0$ pour

$i > J_2$. J_2 est le spin de l'état intermédiaire dans la cascade. Ainsi si J_2 vaut zéro ou $\frac{1}{2}$, la corrélation angulaire est toujours isotropique ; Si J_2 vaut 1 ou $\frac{3}{2}$, la corrélation contient des termes en $\cos^2 \theta$. Les coefficients a_1 et a_2 sont donnés par Hamilton *et al* [117] pour toutes les combinaisons possibles des moments angulaires.

Plusieurs dispositifs expérimentaux ont été mis en œuvre pour déterminer la corrélation angulaire entre les gammas émis par une source radioactive.

Pour le cas du ^{60}Co et du ^{24}Na , $l = 2$, la corrélation est donnée par l'équation suivante [120] :

$$W(\theta) = 1 + 1/8 \cdot \cos^2 \theta + 1/24 \cdot \cos^4 \theta \quad (\text{VI.2})$$

VI.7.0.1 Cas du ^{60}Co

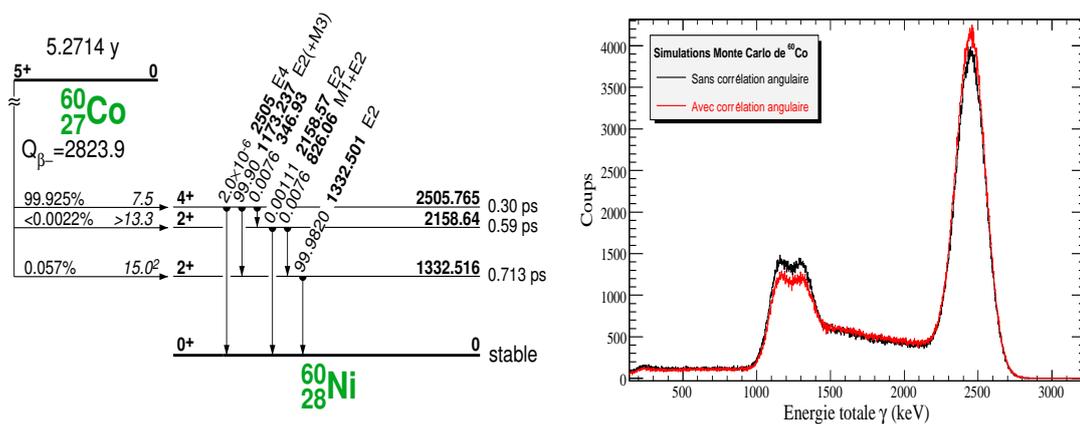


FIG. VI.6 – Gauche : Schéma des niveaux de décroissance du ^{60}Co . Droite : Réponse du TAC au ^{60}Co avec et sans corrélation angulaire pour un rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons.

Le ^{60}Co se désintègre en β^- . Le noyau fils ^{60}Ni qui est dans son état excité, va se désexciter dans son état fondamental en émettant deux gammas successifs de 1,173 MeV et 1,332 MeV. En effet, lors de la désintégration β^- , la désexcitation la plus probable à 99,925% est celle vers le niveau à 2,505 MeV ayant une durée de vie 0,3 ps. A ce stade, il y a une émission d'un gamma d'énergie 1,173 MeV avec une probabilité de 99,9%. Un autre gamma d'énergie 1,332 MeV est émis avec une probabilité de 99,98% (voir la figure VI.6 à gauche) permettant ainsi au noyau ^{60}Ni d'atteindre son état fondamental.

Les spectres d'énergie totale γ du ^{60}Co obtenus par la simulation, avec et sans corrélation angulaire, sont donnés dans la figure VI.6 à droite.

Nous remarquons qu'avec la corrélation angulaire le nombre d'événements est diminué de 13% au niveau des énergies des gammas émis. Ceci est compensé par une

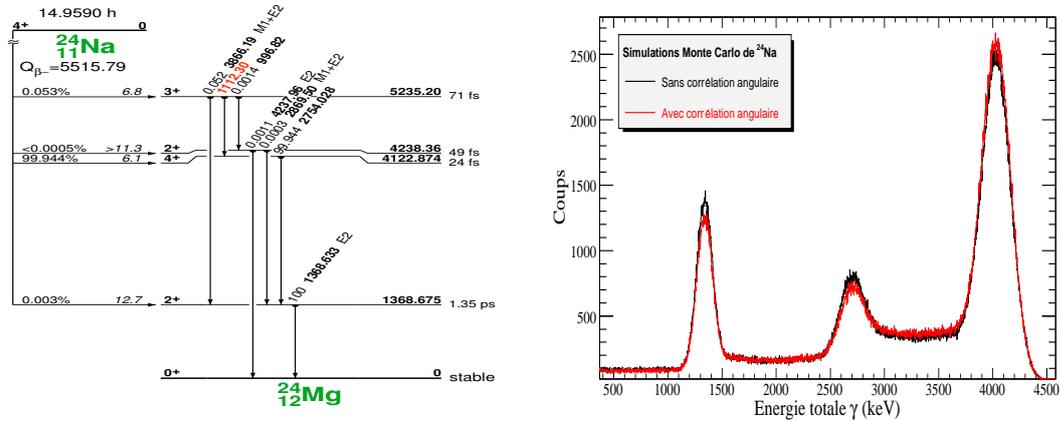


FIG. VI.7 – Gauche : Schéma des niveaux de décroissance de ^{24}Na et Droite : Réponse du TAC au ^{24}Na avec et sans corrélation angulaire pour un rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons.

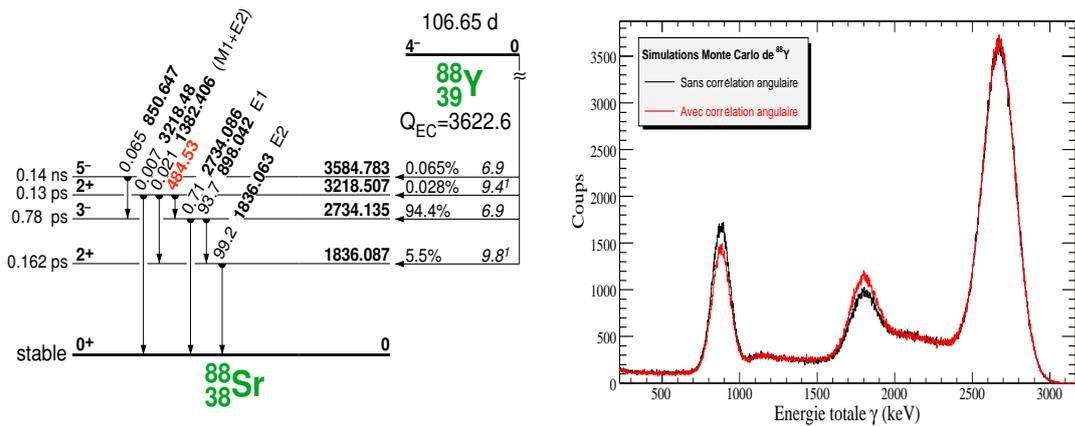


FIG. VI.8 – Gauche : Schéma des niveaux de décroissance de ^{88}Y . Droite : Réponse du TAC au ^{88}Y avec (rouge) et sans corrélation angulaire (noir) pour un rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons.

augmentation de l'efficacité (d'absorption totale) au niveau du pic d'énergie totale à 2505,7 keV.

VI.7.1 Cas du ^{24}Na

La figure VI.7 à gauche montre le schéma de décroissance du ^{24}Na . Comme le ^{60}Co , la décroissance du ^{24}Na est caractérisée par deux gammas successifs avant d'atteindre l'état stable du ^{24}Mg . Le premier état est à 2754,028 keV avec une intensité de 99,95% et le deuxième est à 1368,633 keV pour une intensité de 100%.

En analysant la partie droite de la figure VI.7, nous trouvons les mêmes effets de

corrélation que ceux du ^{60}Co que ce soit au niveau des énergies gammas émis ou de l'énergie totale.

VI.7.2 Cas du ^{88}Y

Le cas de l' ^{88}Y est un peu plus compliqué que les deux premiers pour deux raisons. D'une part la décroissance se fait par deux processus, la désintégration β^+ et la capture électronique. D'autre part, plusieurs niveaux excités sont atteints avec des probabilités non négligeables comme le montre la figure VI.8 à gauche. Dans notre cas nous avons considéré seulement le premier niveau à 1836,063 keV dont la probabilité est de 5,5% et le deuxième niveau à 2734,13 dont la probabilité est de 94,4%. Ces deux niveaux peuplés vont émettre deux γ successifs dont l'énergie est de 898,042 keV d'intensité de 93,7% et le deuxième à une énergie de 1836,063 keV et pour une intensité 99,2%.

A cause de la dépendance des niveaux excités, dans le cas du ^{88}Y , ce qui n'est pas le cas pour le ^{60}Co et ^{24}Na (il y a seulement un niveau excité considéré), la réponse du TAC au ^{88}Y est différente. Nous remarquons qu'il n'y a pas changement au niveau de l'énergie totale comme le montre la figure VI.8 à droite.

VI.8 Détermination du rayon interne du TAC

Afin de reproduire la réponse du TAC par la simulation MC, il est nécessaire de déterminer précisément le rayon interne du TAC. En effet, dans le chapitre précédent, nous avons mentionné que le rayon interne du calorimètre est de 10 cm. Mais, la photo (IV.22) de l'hémisphère du TAC nous montre que les modules de ce dernier ne peuvent pas parfaitement être une sphère avec le rayon indiqué. Il est clair que les modules sont légèrement décalés les uns par rapport aux autres.

Avant de commencer la comparaison entre la simulation MC et les données expérimentales, nous avons pris soin de bien calibrer en énergie tous les détecteurs. Après une correction de la dérive en énergie, nous avons soustrait le bruit de fond ambiant pris à partir de mesures sans source.

Les mesures de calibration en énergie du TAC ont été effectuées par l'utilisation des sources radioactives suivantes : ^{24}Na , ^{60}Co , ^{88}Y et ^{137}Cs . Les résultats des mesures comparés à ceux de ma simulation MC sont donnés dans les figures VI.9 et VI.10

Ces figures montrent que la simulation MC reproduit les mesures avec un excellent accord. Le rayon du TAC est ajusté dans une plage de 4 mm afin de reproduire tous les spectres de sources de calibrations. Le rayon ajusté de TAC est obtenu en faisant la moyenne des différentes valeurs.

$$R_{TAC} = 11,08 \pm 0,19 \text{ cm}$$

Toutes les études qui ont été faites par la suite sont effectuées avec un rayon interne de 11,08 cm.

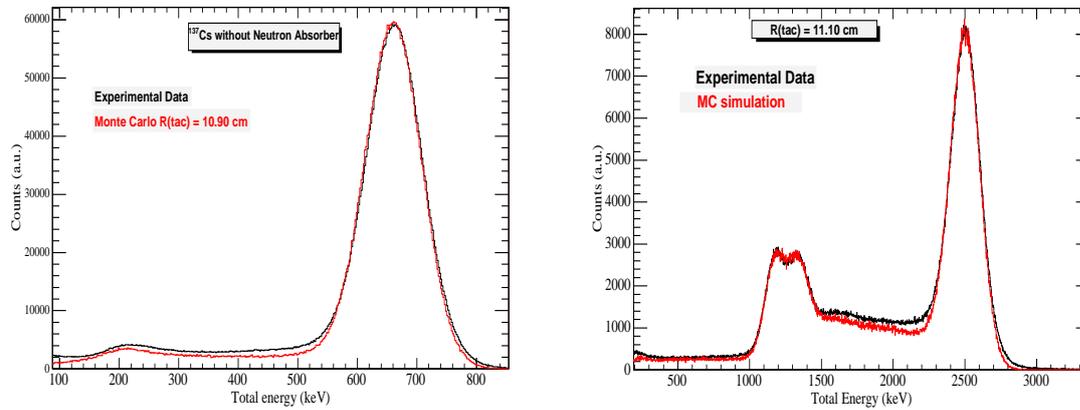


FIG. VI.9 – Réponse du TAC sans absorbeur de neutrons :(Gauche) ^{137}Cs avec $R_{TAC} = 10,90$ cm. (Droite) ^{60}Co avec $R_{TAC} = 11,10$ cm.

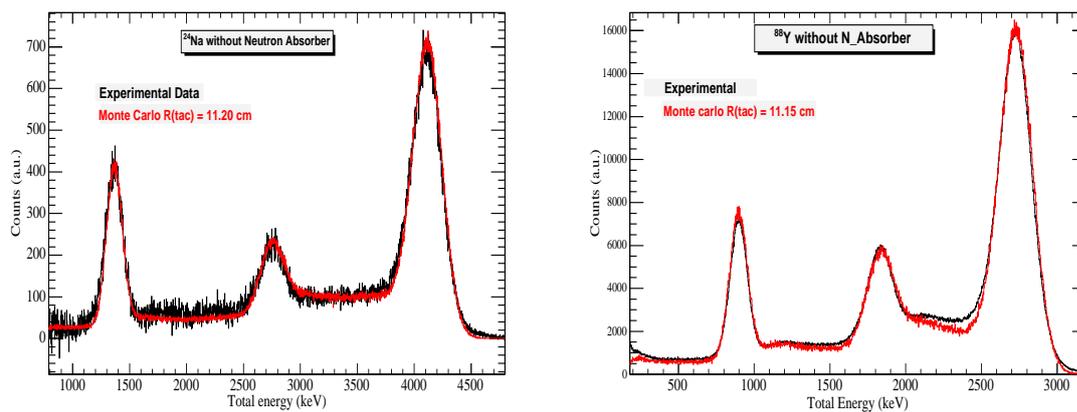


FIG. VI.10 – Réponse du TAC sans absorbeur de neutrons au :(Gauche) ^{24}Na avec $R_{TAC} = 11,20$ cm. (Droite) ^{88}Y avec $R_{TAC} = 11,15$ cm.

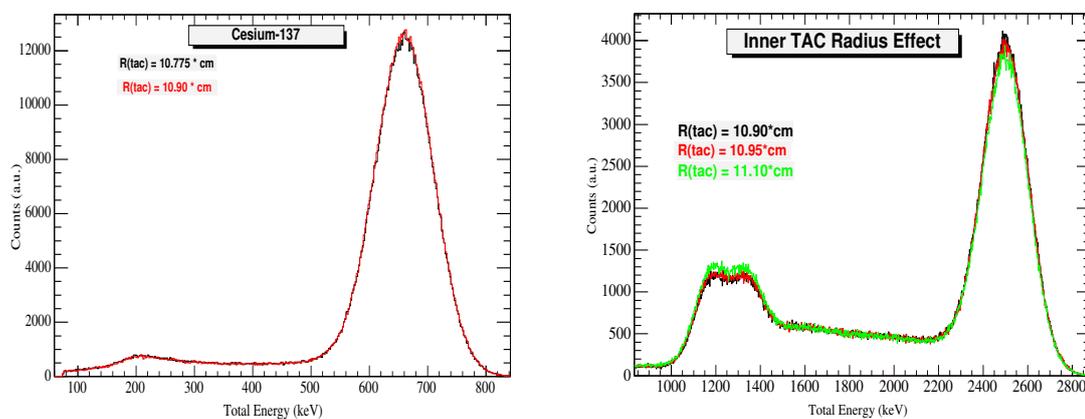


FIG. VI.11 – Variation de la réponse du TAC sans absorber de neutrons aux différentes valeurs de rayon interne : (Gauche) ^{137}Cs et (Droite) ^{60}Co .

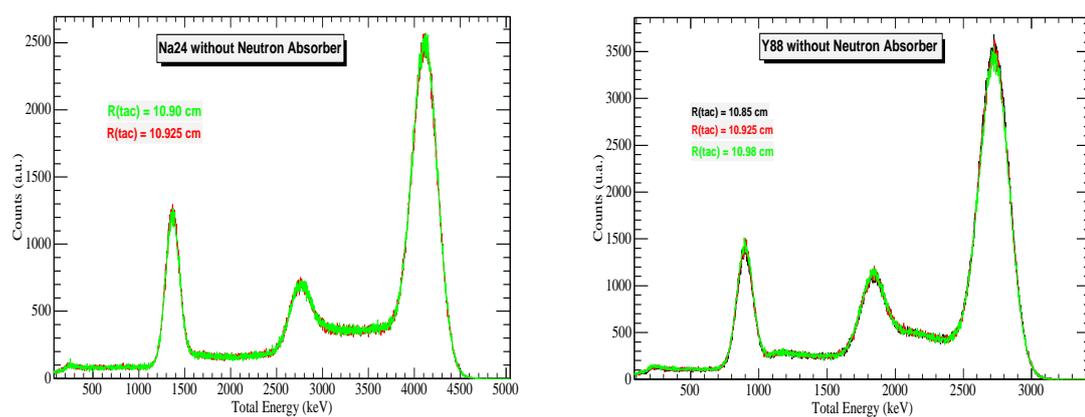


FIG. VI.12 – Variation de la réponse du TAC sans absorber de neutrons aux différentes valeurs de rayon interne (Gauche) ^{24}Na et (Droite) ^{88}Y .

Les figures VI.11 et VI.12 représentent l'effet de la variation du rayon interne du TAC dans l'intervalle des rayons calculé ci-dessus sur la réponse du TAC pour les différentes sources radioactives. Nous remarquons que sur cette plage de 4 mm l'effet dû au rayon du TAC est minime.

VI.9 Ajustement de la densité de l'absorbeur de neutrons

L'absorbeur de neutrons est utilisé pour réduire le bruit de fond dû aux neutrons diffusés par l'échantillon. Comme déjà signalé dans le chapitre IV, l'absorbeur de neutrons est constitué de ${}^6\text{LiOOC}(\text{CH}_2)_{10}\text{COO}{}^6\text{Li}$ avec une densité donnée de $1,1 \text{ g/cm}^3$. Nous avons modélisé ceci avec GEANT4 et en analysant les réponses du TAC simulées, nous avons remarqué qu'avec l'absorbeur de neutrons l'efficacité au pic est abaissée de 30%.

Afin de reproduire les données expérimentales mesurées avec l'absorbeur de neutrons, il est nécessaire de réduire la densité du composé enrichi de ${}^6\text{Li}$ et H à 70% de sa valeur nominale.

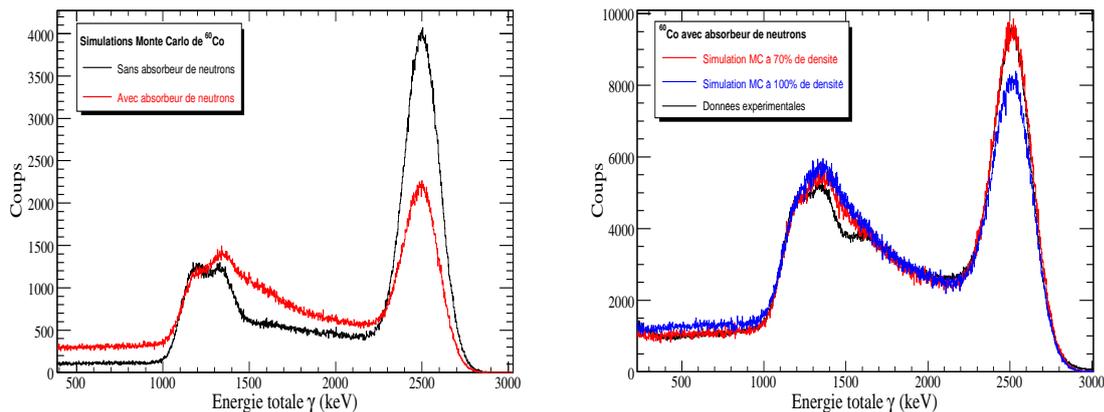


FIG. VI.13 – A droite : Comparaison des spectres γ simulés du ${}^{60}\text{Co}$ avec (rouge) et sans (noir) absorbeur de neutrons. A gauche : Comparaison de deux spectres γ simulés du ${}^{60}\text{Co}$ après ajustement de la densité de l'absorbeur de neutrons (rouge à 70% de la valeur nominale, violet à 100% de la valeur nominale), avec le spectre expérimental.

VI.10 Génération des cascades γ issus de la capture neutronique

VI.10.1 Principe

Un programme [121, 122] a été écrit et utilisé comme générateur d'événements pour des simulations MC avec GEANT4. Il a été développé pour être facile à implémenter et rapide dans le calcul des cascades. Pour produire des rayons gamma prompts qui suivent le processus de capture, la cascade nucléaire est divisée en deux parties comme esquissé sur le schéma VI.14.

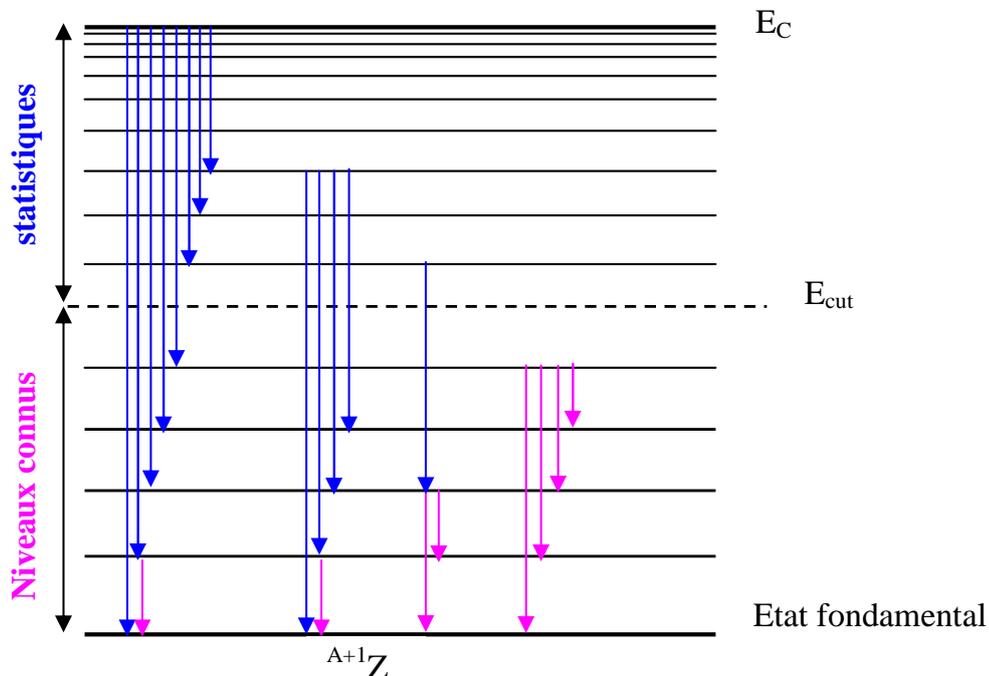


FIG. VI.14 – Schéma de génération des cascades Monte Carlo.

Le domaine de basse énergie correspond à des niveaux dont, énergie, spin, parité, transitions et intensités sont complètement connus et obtenus à partir des données expérimentales. Ce schéma de niveau connu peut être récupéré par exemple à partir des fichiers ENSDF [123]. La partie à basse énergie de la matrice donnant les rapports d'embranchement est calculée avec ces informations.

Le processus de conversion interne est inclus dans la cascade, en donnant les énergies de liaison du K, L et M, rendements de fluorescence et coefficients de conversion interne.

L'énergie de coupure, E_{cut} , correspond à l'énergie d'excitation jusqu'à laquelle le schéma de niveau discret peut être considéré connu. La partie supérieure, s'étend de E_{cut} jusqu'à l'énergie de capture E_C . Cette dernière détermine un niveau additionnel,

dont le spin et la parité sont normalement connus. Cet intervalle inconnu, $E_C - E_{cut}$, est décrit au moyen du modèle statistique du noyau.

D'abord, l'intervalle «statistique» est divisé en niveau discret. Ce procédé permet un calcul rapide des transitions, réduisant toute la durée de calcul. Les détails de ce continuum ont peu d'effet sur le spectre de capture gamma parce que les probabilités de transition favorisent fortement les transitions gamma de haute énergie, c'est-à-dire, les transitions à l'état fondamental ou aux niveaux expérimentaux connus les plus probables.

La partie de la matrice de rapport d'embranchement correspondant aux transitions de niveaux statistiques jusqu'aux niveaux expérimentaux connus de basse énergie seront remplis par les coefficients de transmission $T_{XL}(E_\gamma)$, décrits dans la référence [124].

$$T_{XL}(E_\gamma) = 2\pi E_\gamma^{2L+1} f_{XL}(E_\gamma) \quad (\text{VI.3})$$

Le type multipolaire XL est défini par les règles habituelles de sélection, en prenant les données le spin et la parité des niveaux expérimentaux connus. Les transitions considérées ici sont uniquement du type E1, M1 et E2.

La fonction de force $f_{XL}(E_\gamma)$ pour des transitions multipolaires de XL , dérive du modèle de la résonance géante dipolaire, GDR, qui a la forme d'une ou plusieurs Lorentzienne Standard [125], suivant :

$$f_{XL}^{SLO}(E_\gamma) = \frac{1}{(\pi\hbar c)^2(2L+1)} \sigma_0 \Gamma E_\gamma^{3-2L} \frac{\Gamma_0}{(E_\gamma^2 - E_0^2)^2 + E_\gamma^2 \Gamma_0^2} \quad [\text{mb}^{-1} \text{MeV}^{-2}] \quad (\text{VI.4})$$

Avec les paramètres de Lorentzienne E_0 , Γ_0 et σ_0 qui représentent respectivement l'énergie, la largeur de la GDR et la section efficace au pic. Les modèles de particule indépendante [124] et de Lorentzienne Généralisée, ont été également inclus dans ce programme (tableau VI.1).

TAB. VI.1 – Paramétrisations de la fonction de force des rayons γ . La possibilité d'ajouter une deuxième résonance (pygmée) pour les transitions E1 est valable.

Transition	Paramétrisation de force	Paramètres
E1	GDR de Lorentzienne Généralisé (1 ou 2 résonances)	$E_0^{E1}, \Gamma_0^{E1}, \sigma_0^{E1}$
	GDR de Lorentzienne Standard (1 ou 2 résonances)	$E_0^{E1}, \Gamma_0^{E1}, \sigma_0^{E1}$
	Particule indépendante	k (facteur de force)
M1	GDR de Lorentzienne Standard	$E_0^{M1}, \Gamma_0^{M1}, \sigma_0^{M1}$
	Particule indépendante	k (facteur de force)
E2	GDR de Lorentzienne Standard	$E_0^{E2}, \Gamma_0^{E2}, \sigma_0^{E2}$
	Particule indépendante	k (facteur de force)

Le reste de la matrice de rapport d'embranchement, correspond aux transitions relativement moins probables dans la partie statistique, $E_C - E_{cut}$. Dans cette région le spectre de rayons gamma est déterminé par le produit [124]

$$T_{XL} \times \rho(E - E_\gamma, I, \Pi) \quad (\text{VI.5})$$

où $\rho(E - E_\gamma, I, \Pi)$ représente la densité des niveaux finaux de spin et de parité I^Π avec l'énergie d'excitation proche de $E - E_\gamma$.

Les trois modèles de la densité de niveaux présentés dans le tableau VI.2 sont inclus dans ce programme dans le but d'étudier le paramétrage de densité reliée à des différences dans les spectres produits.

TAB. VI.2 – Paramétrisations de la densité de niveau à déterminer avec le programme de génération de cascades.

Paramétrisation de densité de niveau	Paramètres	Références
Back Shifted Fermi Gas "BSFG"	a (MeV ⁻¹), Δ (MeV)	[126],[127]
Température Constante "CT"	T , E_0 (MeV)	[127]
Combinaison "CT+BSFG"	T , E_0, Δ , E_x (MeV), a (MeV ⁻¹)	[51]

A partir des niveaux connus de capture, l'échantillonnage Monte-Carlo est réalisé afin de produire des cascades aléatoires d'une manière séquentielle. La matrice de rapport d'embranchement de la partie statistique est calculée en considérant les transitions E1, M1 et E2 aux niveaux «statistiques». Une fois la matrice de rapport d'embranchement remplie et disponible, la première transition simulée est générée. Pour les transitions dans la partie statistique, la matrice de rapport d'embranchement est recalculée encore pour le reste des niveaux statistiques et expérimentaux et la transition suivante est générée. Le programme procède séquentiellement jusqu'à ce que l'état fondamental soit atteint.

VI.10.2 Fonctions de densités de niveaux

La structure des niveaux d'un noyau peut être divisée en deux régions. Jusqu'à une certaine énergie d'excitation qui est typiquement entre 1 et 2 MeV, le nombre de niveaux est limité, et ils sont relativement bien séparés. En augmentant l'énergie d'excitation, le nombre de niveaux augmente, par conséquent l'espacement entre eux se réduit et la nature de l'excitation devient très complexe à traiter explicitement. Pour cela, la seule manière de les décrire est l'utilisation d'une procédure statistique. Une fonction de densité de niveau ρ est introduite :

$$\rho(E) = \frac{dN(E)}{dE} \quad (\text{VI.6})$$

où $N(E)$ est le nombre cumulé de niveaux jusqu'à l'énergie d'excitation E .

À partir de l'observation de la distribution des niveaux à basse énergie, une formule empirique peut être obtenue, connue comme la formule à température constante (CT) [127] :

$$\rho(E, J) = \frac{f(J)}{T} \exp\left(\frac{E - E_0}{T}\right) \quad (\text{VI.7})$$

où E_0 et T (la température nucléaire) peuvent être affinés pour ajuster l'équation (VI.7) sur les données expérimentales ; $f(J)$ est le facteur de distribution de spin :

$$f(J) = \exp\left(\frac{-J^2}{2\sigma_c^2}\right) - \exp\left(\frac{-(J+1)^2}{2\sigma_c^2}\right) \quad (\text{VI.8})$$

où σ_c est le facteur de coupure de spin dont la valeur moyenne dépendant de A est donnée sous la forme suivante : $\sigma_c = (0,98 \pm 0,23)A^{0,29 \pm 0,06}$ [127].

Dans l'approche la plus simple, le noyau peut être considéré comme un système des fermions qui peuvent occuper des niveaux équidistants en énergie. La densité des niveaux excités est :

$$\rho(E) = \frac{\exp(2\sqrt{aE})}{4\sqrt{3E}} \quad (\text{VI.9})$$

où a représente le paramètre de densité de niveaux.

Une extension plus réaliste de ce modèle considère le fait que les fermions ont la tendance à former des paires, qui requiert une quantité supplémentaire d'énergie pour les séparer. En introduisant un décalage E_1 dans l'énergie d'excitation ce processus peut être pris en considération ; en général, E_1 est considéré comme paramètre d'ajustement ; ceci mène au modèle « Back Shifted Fermi Gas »(BSFG) :

$$\rho(E, J) = f(J) \frac{\exp(2\sqrt{a(E - E_1)})}{\sigma_c 12\sqrt{2}a^{\frac{1}{4}}(E - E_1)^{\frac{5}{4}}} \quad (\text{VI.10})$$

dans ce cas le facteur de coupure de spin à la forme :

$$\sigma_c^2 = 0,0888A^{\frac{2}{3}}\sqrt{a(E - E_1)} \quad (\text{VI.11})$$

Les paramètres a et E_1 sont différents d'un noyau à un autre, et peuvent être affinés pour reproduire les valeurs de la densité de niveaux à basse énergie, et à l'état de capture en mesurant l'espacement moyen des résonances.

Les extensions du modèle de BSFG existent (voir la référence [126]) en introduisant deux paramètres supplémentaires, Δ la position fictive de l'état fondamental et I_{eff} le moment d'inertie effectif. Le modèle proposé par Gilbert et Cameron ([51]) est une combinaison des modèles CT et BSFG : jusqu'à une énergie E_X (de coupure autour de 2-3 MeV) la formule de CT est employée ; au-dessus de cette énergie, le modèle BSFG est appliqué, en employant la force d'appariement V_0 au lieu du décalage E_1 .

VI.10.3 Étape préliminaire

Pour que nous puissions comparer la simulation aux données expérimentales, il fallait que ces dernières soient sans bruit de fond. La méthode de soustraction de bruit de fond est décrite dans le chapitre précédent :

- 1) prendre un run bien calibré en énergie.
- 2) Correction par la dérive en énergie.
- 3) Soustraction de bruit de fond en utilisant la réponse de part et d'autre de la résonance.

Les simulations sont effectuées suivant les paramètres et les modèles de densité de niveau BSFG et de fonction de force de rayons gamma présentés dans le tableau (VI.3).

TAB. VI.3 – Les paramètres utiles pour la reproduction de réponse du TAC à l' ^{197}Au et l' ^{234}U .

Echantillons	^{197}Au	^{234}U
Paramètres		
Taux de comptage expérimental (coups/ μs)	0.89	0.75
Spin et parité de l'état fondamental	2^+	$\frac{7}{2}^-$
Energies de liaison K, L et M (keV)	80.7, 14.4 et 3.4	115.602, 21.758 et 5.548
rendement de fluorescence de K et L	0.96 et 0.32	0.970 et 0.489
Masse de noyau composé A	198.0	235.
Energie de séparation d'un neutron (MeV)	6.5122	5.2977
Energie (eV), spin et parité de la résonance de capture	4.9, 2^+	5.16, $\frac{1}{2}^+$
Modèle utilisé	BSFG [126]	BSFG [126]
a (MeV^{-1}), Δ (MeV) et I_{eff}	16.14, -0.84 et 0.5	23.69, -0.38 et 0.5

La fonction de force $f_{XL}(E_\gamma)$ est mieux reproduite en utilisant une Lorentzienne généralisé pour les transitions E1 dipolaires électriques, et une Lorentzienne standard pour les transitions M1 et E2. En effet, le modèle de particule indépendante s'est avéré surestimer la force E1, ainsi que la Lorentzienne standard. Les intensités relatives des transitions en fonction de l'énergie des rayons gamma dans le cas de l'or, sont données sur la figure VI.16.

TAB. VI.4 – Les paramètres recommandés pour ^{197}Au [124].

Transition	Paramètres	
E1	$E_0^{E1} = 13,72 \text{ MeV}$	$E_0^{E1} = 5,80 \text{ MeV}$
	$\Gamma_0^{E1} = 4,61 \text{ MeV}$	$\Gamma_0^{E1} = 1,50 \text{ MeV}$
	$\sigma_0^{E1} = 541,0 \text{ mb}$	$\sigma_0^{E1} = 6,00 \text{ mb}$
M1	$E_0^{M1} = 7,05 \text{ MeV}$	
	$\Gamma_0^{M1} = 4,0 \text{ MeV}$	
	$\sigma_0^{M1} = 1,12 \text{ mb}$	
E2	$E_0^{E2} = 10,81 \text{ MeV}$	
	$\Gamma_0^{E2} = 3,73 \text{ MeV}$	
	$\sigma_0^{E2} = 5,03 \text{ mb}$	

En général nous avons employé des paramètres recommandées de GDR dérivés des données expérimentales qui existent généralement dans [128] sinon dans [124] et [129]. Dans beaucoup de cas où cette information n'est pas disponible, une paramétrisation générale de E_0 , Γ_0 et σ_0 en fonction de la masse atomique est disponible [128] pour les transitions E1, M1 et E2. Dans le cas de l'or, l'accord avec la distribution expérimentale de réponse n'était pas complètement satisfaisant, c'est pour cela nous avons ajusté la réponse MC en changeant les paramètres GDR de quelques transitions.

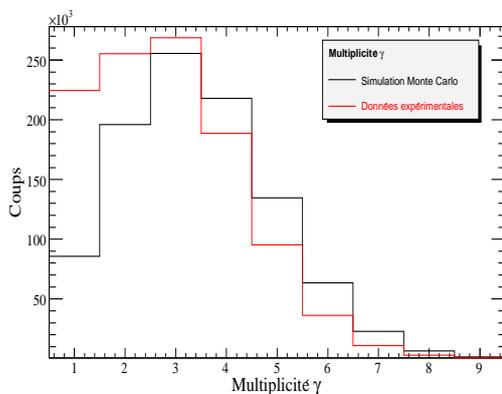
VI.10.4 Reproduction de la réponse du TAC à ^{197}Au

Nous avons commencé notre simulation par les paramètres recommandés dans la littérature [124] pour les modèles de densité de niveau et de fonction de force de rayons gamma présentés dans les deux tableaux (VI.3 et VI.4).

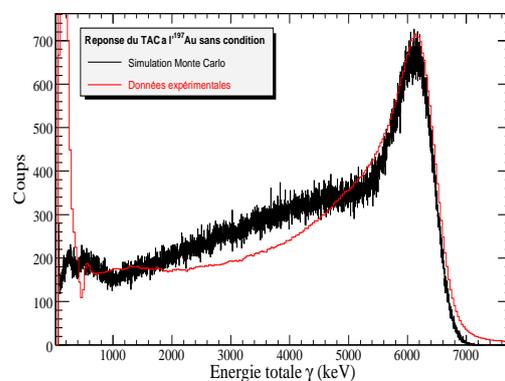
Les données expérimentales ne sont pas reproduites par les paramètres recommandés pour la densité de niveau et les modèles de fonctions de force de rayons gamma, comme le montre l'ensemble des sous-figures VI.15. Nous avons remarqué qu'avec ces paramètres, la multiplicité est trop élevée et il manque des gammas primaires utiles pour la transition directe à l'état fondamental. Il a donc été nécessaire d'ajuster ces paramètres sur les données expérimentales du TAC.

Il est possible de reproduire les données expérimentales de ^{197}Au en incluant les variations suivantes dans la description de fonctions de force de rayons gamma :

- 1) La meilleure manière de reproduire une multiplicité plus basse et un nombre plus élevé de transitions de gammas primaires est d'augmenter la fonction de force f_{E1} autour du S_n parce que c'est la seule transition possible aux niveaux des états excités très bas.
- 2) La dominance de la transition E_1 est favorisée en diminuant la force des transitions M_1 .



(a) La multiplicité pour toutes les énergies



(b) Réponse du TAC sans condition

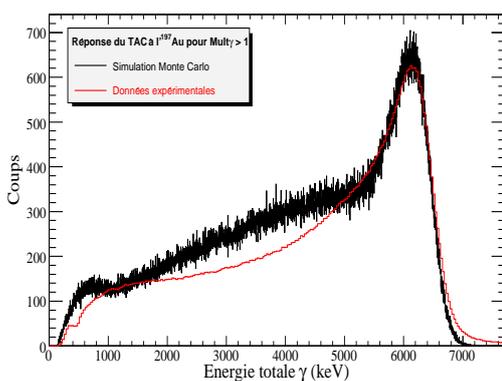
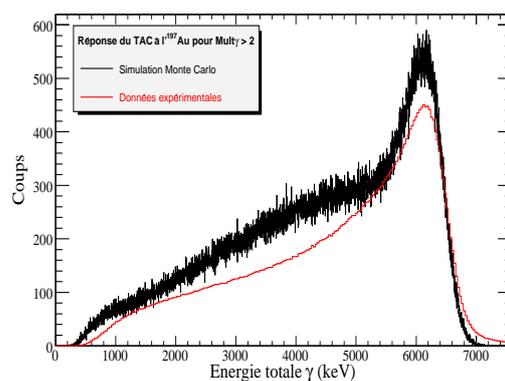
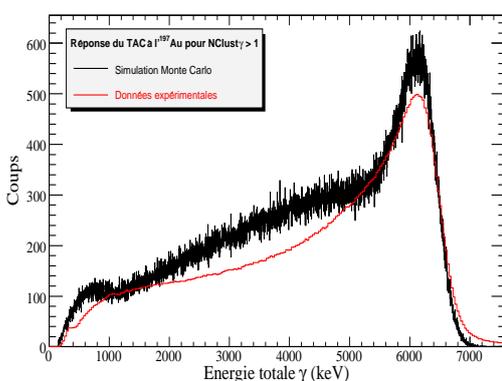
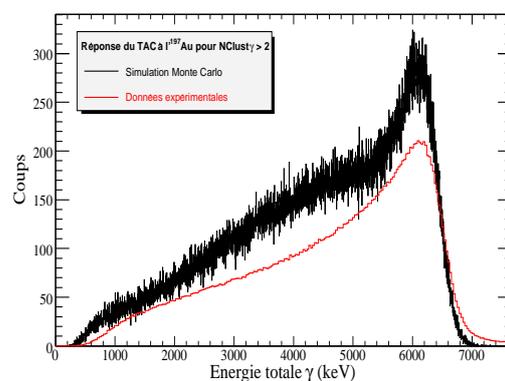
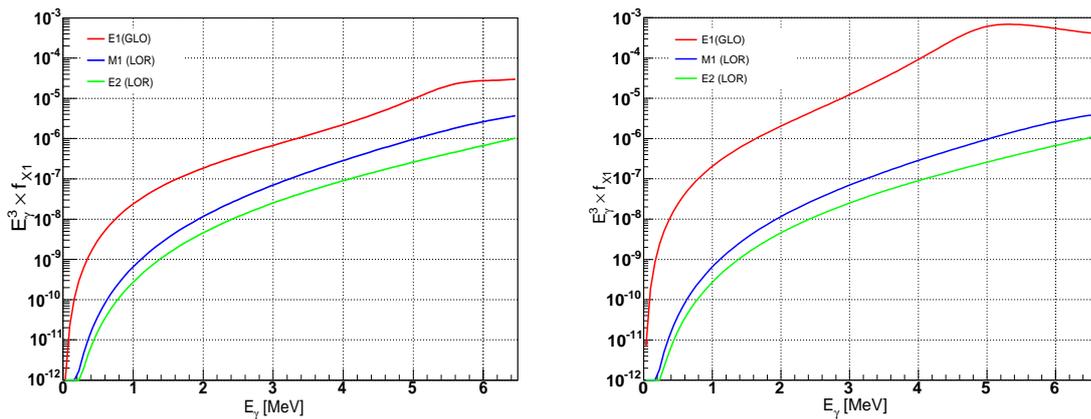
(c) Réponse du TAC Mult γ >1(d) Réponse du TAC Mult γ >2(e) Réponse du TAC Clust γ >1(f) Réponse du TAC Clust γ >2

FIG. VI.15 – Réponse du TAC à la première résonance de ^{197}Au aux différents critères de sélection, pour les paramètres de transitions recommandés.

TAB. VI.5 – Les paramètres utilisés de ^{197}Au .

Transition	Paramètres	
E1	$E_0^{E1} = 5,20 \text{ MeV}$	$E_0^{E1} = 5,80 \text{ MeV}$
	$\Gamma_0^{E1} = 1,50 \text{ MeV}$	$\Gamma_0^{E1} = 1,50 \text{ MeV}$
	$\sigma_0^{E1} = 300,0 \text{ mb}$	$\sigma_0^{E1} = 35,00 \text{ mb}$
M1	$E_0^{M1} = 7,05 \text{ MeV}$	
	$\Gamma_0^{M1} = 4,0 \text{ MeV}$	
	$\sigma_0^{M1} = 1,12 \text{ mb}$	
E2	$E_0^{E2} = 10,81 \text{ MeV}$	
	$\Gamma_0^{E2} = 3,73 \text{ MeV}$	
	$\sigma_0^{E2} = 5,03 \text{ mb}$	

FIG. VI.16 – Coefficients de transmission des rayons-gammas de ^{197}Au qui correspondent aux paramètres (gauche) existant dans la littérature et (droite) ajustés pour reproduire les données expérimentales.

- 3) Les transitions E_2 ne jouent pas un rôle important dans la génération des cascades et donc leur forme est conservée aux valeurs recommandées.

Une nouvelle paramétrisation des fonctions de force de rayons gammas, présentée dans le tableau VI.5, est possible pour reproduire non seulement la distribution de multiplicité mais aussi la forme de l'énergie déposée pour chaque critère de sélection d'événements comme le montre l'ensemble des sous-figures VI.17. Dans ces figures, nous avons pris toute l'énergie γ déposée dans le TAC. Le désaccord à basse multiplicité, provient du fait que le bruit fond n'est pas totalement soustrait. Ce désaccord peut être affranchit si nous prenons la domaine d'énergie γ suivant :

$$2 \text{ MeV} < E_{total}(\gamma) < 7,5 \text{ MeV}$$

Il est important de préciser que ces nouveaux paramètres ne prétendent pas remplacer les valeurs recommandées car aucune comparaison avec les autres mesures existantes n'a été effectuée.

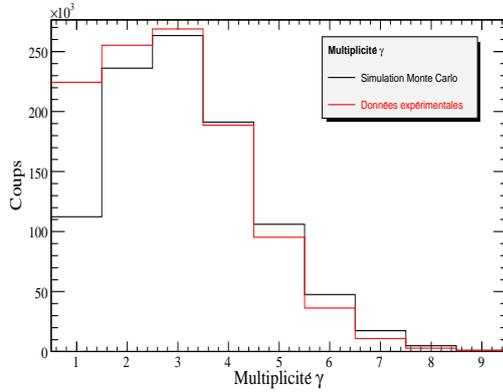
VI.10.5 Reproduction de la réponse du TAC à ^{234}U

Pour que nous puissions reproduire la réponse du TAC à l' ^{234}U , nous avons utilisé les paramètres de densités de niveaux pour le modèle de gaz de Fermi [126] et ceux de résonances géantes dipolaires pour chaque transitions [129] qui sont présentés respectivement dans les tableaux VI.3 et VI.6. Dans ce cas il y a seulement deux transitions, la première est celle de E_1 dont la fonction de force prend la forme d'une Lorenzienne généralisée et la deuxième est de type M_1 ayant pour forme une Lorenzienne standard. La figure VI.18 montre les coefficients de transmission des rayons-gammas pour chaque type de transition.

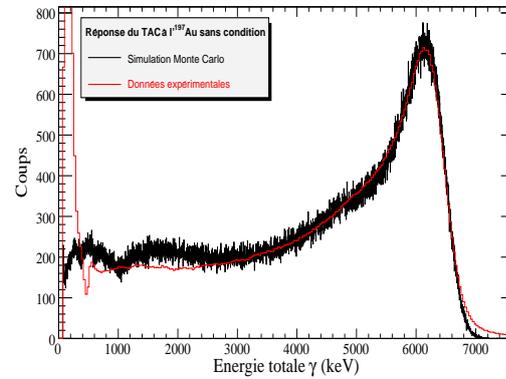
TAB. VI.6 – Les paramètres recommandés de ^{234}U .

Transition	Paramètres
E1	$E_0^{E_1} = 10,90 \text{ MeV}$ $\Gamma_0^{E_1} = 2,30 \text{ MeV}$ $\sigma_0^{E_1} = 328,0 \text{ mb}$
M1	$E_0^{M_1} = 13,96 \text{ MeV}$ $\Gamma_0^{M_1} = 4,75 \text{ MeV}$ $\sigma_0^{M_1} = 459 \text{ mb}$
E2	$E_0^{E_2} =$ $\Gamma_0^{E_2} =$ $\sigma_0^{E_2} =$

A l'aide de ces paramètres, nous avons réussi à reproduire la réponse du TAC à l' ^{234}U . Dans l'ensemble de sous-figures VI.19, nous présentons une comparaison entre les simulations Monte Carlo et les données expérimentales pour chaque critère de sélection d'événements. Ces figures montrent une reproduction excellente pour chaque cas de figure, sauf pour des énergies γ comprise entre 4,4 et 5 MeV, où il y a une petite différence de quelques pourcents dû sans doute au manque de quelques transitions primaires des niveaux connus pris des fichiers ENSDF. Pour le cas de la multiplicité, nous retrouvons le même problème rencontré dans le cas de reproduction de réponse du TAC à l' ^{197}Au qui a été expliqué ci-dessus.



(a) La multiplicité pour toute l'énergie



(b) Réponse du TAC sans condition

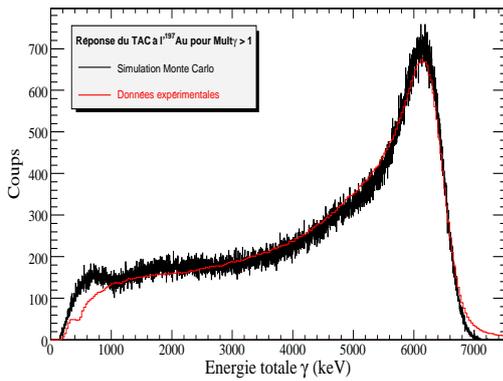
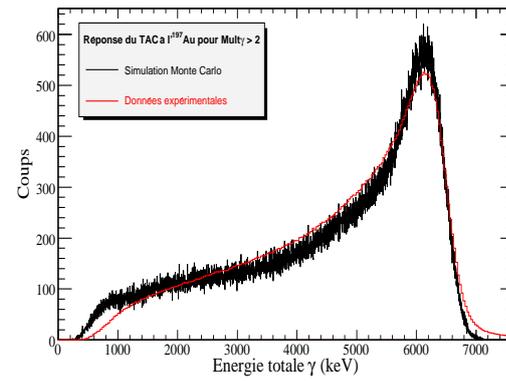
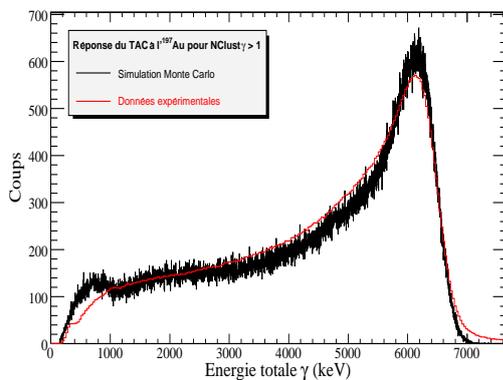
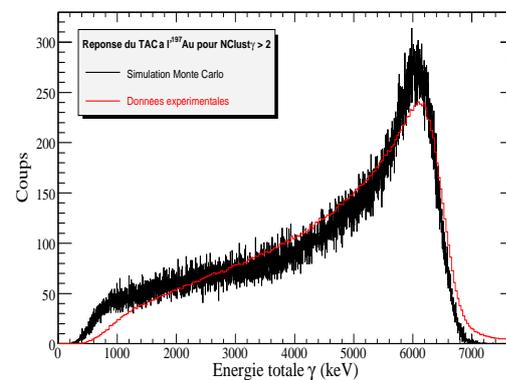
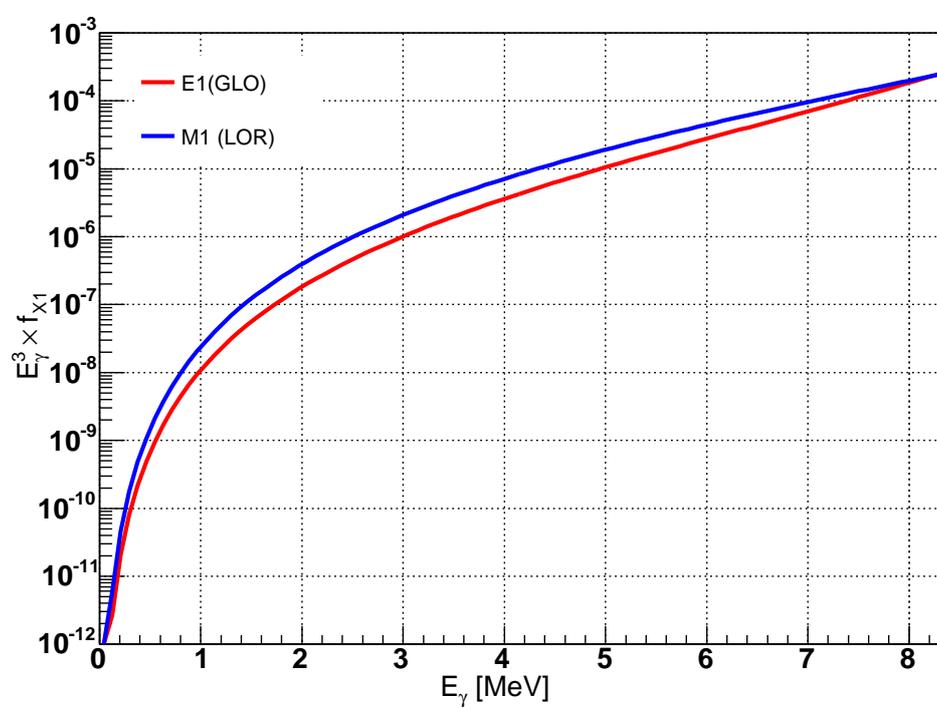
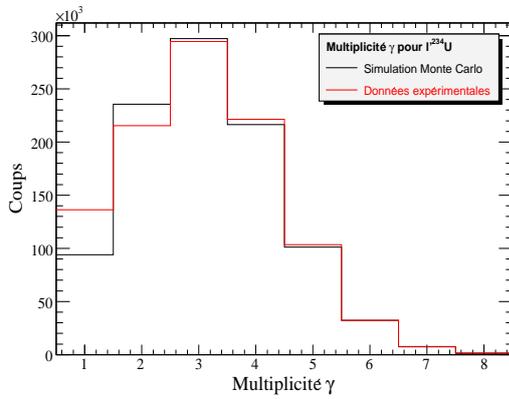
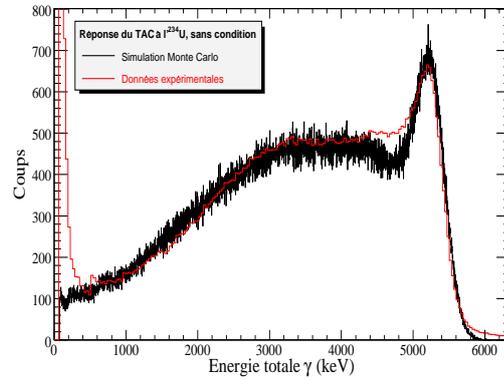
(c) Réponse du TAC $\text{Mult}_\gamma > 1$ (d) Réponse du TAC $\text{Mult}_\gamma > 2$ (e) Réponse du TAC $\text{Clust}_\gamma > 1$ (f) Réponse du TAC $\text{Clust}_\gamma > 2$

FIG. VI.17 – Réponse du TAC à la première résonance de ^{197}Au aux différents critères de sélection, pour les paramètres de transitions trouvés par ajustement aux données expérimentales.

FIG. VI.18 – Coefficients de transmission des rayons-gammas de l' ^{234}U .



(a) La multiplicité pour toutes les énergies



(b) Réponse du TAC sans condition

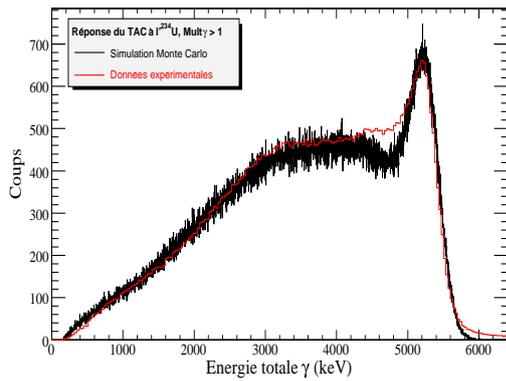
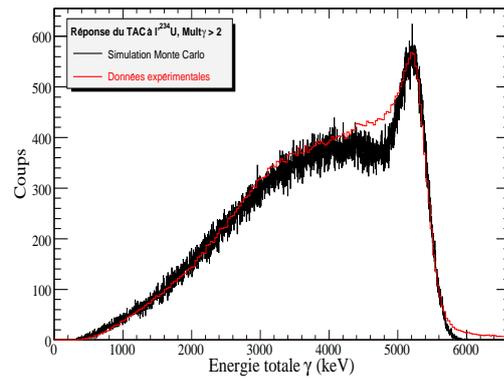
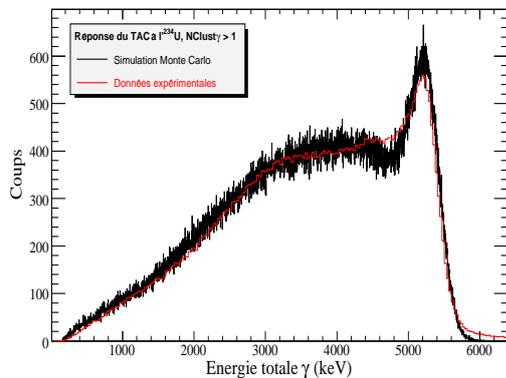
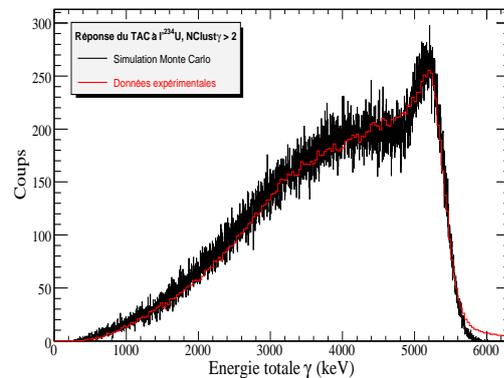
(c) Réponse du TAC Mult $\gamma > 1$ (d) Réponse du TAC Mult $\gamma > 2$ (e) Réponse du TAC Clust $\gamma > 1$ (f) Réponse du TAC Clust $\gamma > 2$

FIG. VI.19 – Réponse du TAC à la 1^{ère} résonance de ^{234}U aux différents critères de sélection, pour les paramètres de transitions qui existent dans la littérature.

VI.11 Efficacité de détection simulée

La reproduction de la réponse du TAC que ce soit pour l' ^{197}Au et l' ^{234}U nous permet de déterminer avec précision l'efficacité absolue ou de détection puisque nous travaillons avec un angle solide presque de 4π comme déjà expliqué dans le chapitre précédent. Cette efficacité est le rapport entre le nombre d'événements générés et celui détectés.

Pendant cette étude, le nombre d'événements émis avec GEANT4 est 10^6 , une valeur assez suffisante pour reproduire la réponse du TAC. Nous avons calculé l'efficacité de détection du TAC pour chaque critère de sélection d'événements et à chaque taux de comptage. Cette méthode de détermination va nous servir pour : d'une part bien choisir le critère adéquat de sélection d'événements et d'autre part corriger la réponse expérimentale du TAC de l'effet du temps mort.

La figure VI.20 présente l'efficacité de détection de l' ^{197}Au (à gauche) et celui de l' ^{234}U (à droite). Dans une vue d'ensemble, nous remarquons que la tendance de variation de l'efficacité pour chaque cas de figure est la même à quelques pourcents près, pour les deux isotopes. En tenant compte du taux de comptage expérimental, que ce soit de 0,89 coups/ μs pour l' ^{197}Au et de 0,75 coups/ μs pour l' ^{234}U , nous trouvons que l'efficacité de détection expérimentale pour le premier isotope est de l'ordre de $98,0 \pm 0,2\%$ et pour le deuxième est $98,5 \pm 0,1\%$ dans le cas où aucune condition n'est prise.

Pour voir la fiabilité de nos valeurs de simulations trouvées, nous avons comparé le facteur de perte en efficacité de détection pour chaque isotope. Si nous prenons le domaine expérimental du taux de comptage entre 0 et 4 coups/ μs , nous remarquons que la perte est pratiquement la même pour les deux isotopes. Ce résultat nous conforte quant à la fiabilité de nos simulations.

VI.12 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté en détails toutes les modélisations et les simulations qui ont été menées pour que nous puissions avoir des résultats de précision. Une modélisation de temps mort a été en plus faite qui sera explicitée dans le chapitre suivant lors de la correction du temps mort à la réponse expérimentale du TAC.

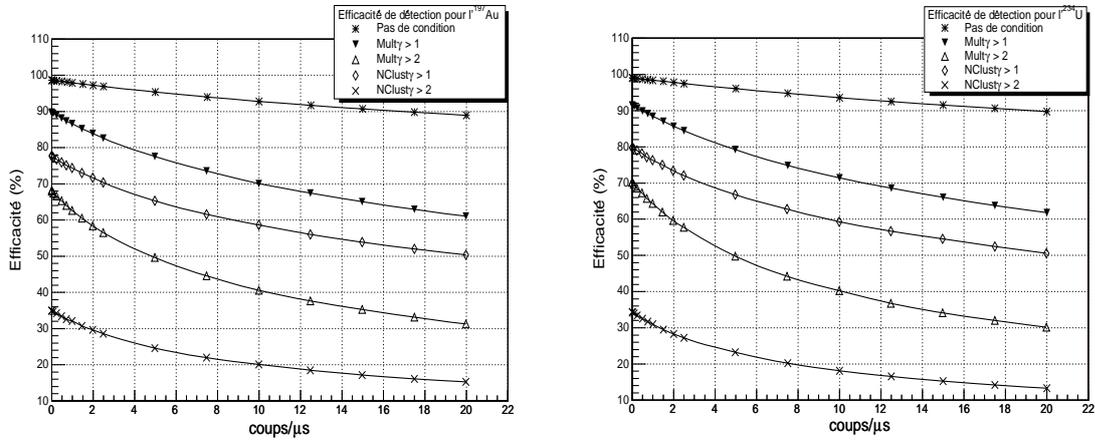


FIG. VI.20 – Efficacité de détection simulée des différents critères de sélection d'événements (gauche) Pour l' ^{197}Au et (droite) pour l' ^{234}U .

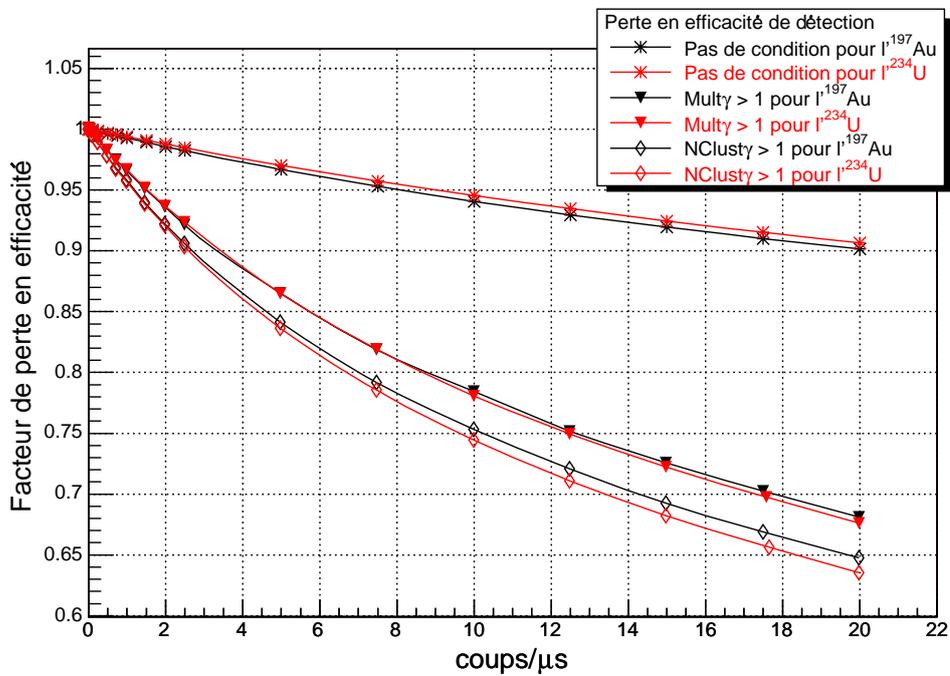


FIG. VI.21 – Comparaison entre la perte en efficacité, due au taux de comptage, de détection simulée de l' ^{197}Au et l' ^{234}U .

Chapitre VII

Réduction des données et résultats

Ce chapitre abordera deux parties principales qui caractérisent la procédure d'analyse de notre mesure : la réduction des données jusqu'à l'obtention du rendement de capture neutronique, et le traitement de ce dernier pour en extraire les grandeurs physiques d'intérêt.

Les mesures de capture permettent d'accéder au rendement de capture défini comme le rapport entre le nombre de capture radiatives sans bruit de fond sur le nombre de neutrons incidents sur l'échantillon à étudier. Le nombre de captures radiatives dépend du système de détection utilisé, que ce soit son efficacité de détection et du bruit de fond généré qu'il est donc nécessaire de déterminer. L'équation VII.1 donne explicitement le principe général de l'étude :

$$Y_{\text{exp}} = N \cdot \frac{S(E_n, \nu_\gamma, E_{\text{totale}\gamma}) - B(E_n, \nu_\gamma, E_{\text{totale}\gamma})}{\varepsilon_{\text{TAC}}(\nu_\gamma) \times \Phi_n(E_n)} \times f(E_n, \nu_\gamma) \quad (\text{VII.1})$$

Avec

- Y_{exp} le rendement de capture neutronique expérimental.
- S le signal mesuré par le TAC qui dépend de l'énergie de neutrons E_n , le critère de sélection des événements ν_γ et l'énergie totale γ .
- B le bruit de fond à soustraire à une énergie de neutron E_n .
- $\Phi_n(E_n)$ le nombre de neutrons incidents sur l'échantillon de l' ^{234}U à une énergie de neutron E_n .
- ε_{TAC} l'efficacité du TAC à détecter les captures de neutrons par ^{234}U .
- f facteur de correction.
- N un coefficient de normalization proche de l'unité.

Les données brutes obtenues par le système d'acquisition se présentent sous forme d'histogrammes, de matrices bidimensionnelles, et de constantes correspondant aux différentes échelles de comptage. La réduction des données brutes consiste à corriger les données des effets expérimentaux et à soustraire le bruit de fond observé dans l'expérience afin de déterminer le rendement de capture neutronique.

L'analyse de ce rendement de capture déterminé grâce à la réduction des données sera l'objet de la deuxième partie. L'analyse est effectuée à l'aide du code matriciel SAMMY [41]. Nous avons utilisé l'approximation Reich-Moore de cette théorie afin de décrire les sections efficaces résonnantes sous forme de paramètres de résonance (énergie, largeurs neutroniques et radiatives). Enfin une étude statistique pour déterminer les paramètres moyens sera abordée. Finalement cette section efficace sera comparée à des évaluations issues de différentes bibliothèques ou à des mesures expérimentales.

VII.1 Réduction des données

VII.1.1 Relation temps-énergie du faisceau de neutrons

VII.1.1.1 L'étalonnage temps-énergie

Dans toute mesure du temps de vol, une des observables de l'expérience est le temps d'occurrence d'un événement (capture de neutron). Ce temps est relié avec l'énergie du neutron au moyen de l'équation (III.3).

La longueur effective de vol L inclut non seulement la distance géométrique entre la source de neutron et l'échantillon, mais également le chemin de modération suivi du neutron à l'intérieur du bloc de plomb et le modérateur d'eau. Puisque le processus de modération change avec l'énergie du neutron, nous devons tenir compte du fait que la longueur effective de vol dépend également de E_n . Par convention, L peut être écrit comme somme de deux termes,

$$L = L(E_n) = L_0 + \Delta L(E_n) \quad (\text{VII.2})$$

où ΔL inclut la dépendance de la longueur de vol avec l'énergie de neutron E_n , due au processus de modération. Le terme constant L_0 représente la distance géométrique entre l'interface externe du modérateur et l'échantillon mais elle inclut également n'importe quel terme constant de la distance de modération.

La dépendance récursive de l'énergie de neutron E_n elle-même n'est pas très pratique du point de vue calcul. Cependant, il peut être démontré [130] que dans notre cas, l'addition du terme $\Delta L(E_n)$ à la distance constante L_0 est équivalente à ajouter un décalage constant de temps, t_0 , au temps du vol mesuré t ,

$$E_n = \frac{1}{2}m_n v^2 = \left(\frac{72,298262L_0}{t + t_0} \right)^2 \quad (\text{VII.3})$$

Notons que cette équation est maintenant beaucoup plus pratique que l'équation (III.3), puisque la dépendance récursive de E_n est évitée.

Afin de trouver les valeurs des paramètres de calibration L_0 et t_0 , un ensemble de résonances standard ont été mesurés à n_TOF [130]. À partir de ces mesures, la valeur

suivante a été obtenue,

$$t_0 = -68 \pm 13 \text{ ns} \quad (\text{VII.4})$$

Cet étalonnage temps-énergie a été obtenu en effectuant un ajustement des moindres carrés du paramètre t_0 de l'équation (VII.3) à partir de l'énergie de résonances standards.

La valeur de t_0 est caractéristique de l'installation, elle est donc déterminée une fois pour toute. Par contre la longueur de vol dépend du positionnement dans l'aire expérimentale du dispositif utilisé. Pour le TAC nous avons obtenu, en basant sur les résonances de l'or :

$$L_0 = 184,89 \pm 0,12 \text{ m} \quad (\text{VII.5})$$

VII.1.1.2 La référence γ -flash

Une étude effectuée sur le γ -flash nous a montré que ce dernier était vu par les détecteurs à un temps variant sur une plage d'une trentaine de ns par rapport au signal de pré-trigger (voir §III.9.1). De plus selon le type d'impulsion considérée, (dédié ou parasite) on constate que le temps d'arrivée du γ -flash n'est pas le même.

Afin de contourner ces difficultés, nous avons pris comme signal de référence le signal de « pickup » [131] fourni également par le PS, mais qui correspond à une mesure directe du faisceau de protons avant qu'il ne vienne heurter la cible de spallation.

De cette manière nous avons pu nous affranchir des divers biais systématiques observés au préalable sur le signal γ -flash. Dans notre cas, la valeur t_γ correspondant à l'arrivée du signal γ -flash par rapport au signal de « pickup » est 3223 ns.

VII.1.2 Choix du critère de sélection des événements

La figure VII.1 illustre le spectre d'énergie déposée dans le TAC de l' ^{234}U pour différents critères de sélection des événements. Si nous analysons les pics existants à différentes énergies, dans la réponse du TAC, nous trouvons :

- 1) à 1,46 MeV, le bruit de fond ambiant (^{40}K) dans le mur (décroissance par capture électronique à 10,7% vers ^{40}Ar) ;
- 2) à 2,2 MeV, la capture dans l'hydrogène qui existe dans l'absorbeur de neutrons ;
- 3) à 3,198 MeV, c'est la décroissance β^- du ^{208}Tl à 51% d'intensité vers le ^{208}Pb suivie d'une émission γ . Le ^{208}Tl provient de la décroissance de ^{232}U qui existe en très petite quantité dans l'échantillon (négligeable) ;
- 4) à 5,298 MeV c'est l'énergie de séparation de l' ^{234}U , donnée par la capture d'un neutron dans ce dernier ;
- 5) à partir de 6,3 MeV, la capture par les isotopes du baryum, des neutrons diffusés principalement par le titane.

Nous pouvons remarquer dans la figure VII.1 que la multiplicité γ améliore le signal à basse énergie mais que le rapport capture sur diffusion n'est pas changé. Le clustering améliore le signal de capture par rapport au bruit de fond ambiant mais aussi à la diffusion des γ et des neutrons.

De plus une étude similaire effectuée sur l'or nous a montré que la condition du nombre de clusters γ supérieur à un, déforme moins la réponse du calorimètre comparée à celle de la multiplicité γ supérieure à deux.

Dans la suite de notre étude, nous prendrons la réponse du TAC avec comme critère de sélection des événements le nombre de clusters γ supérieur à un.

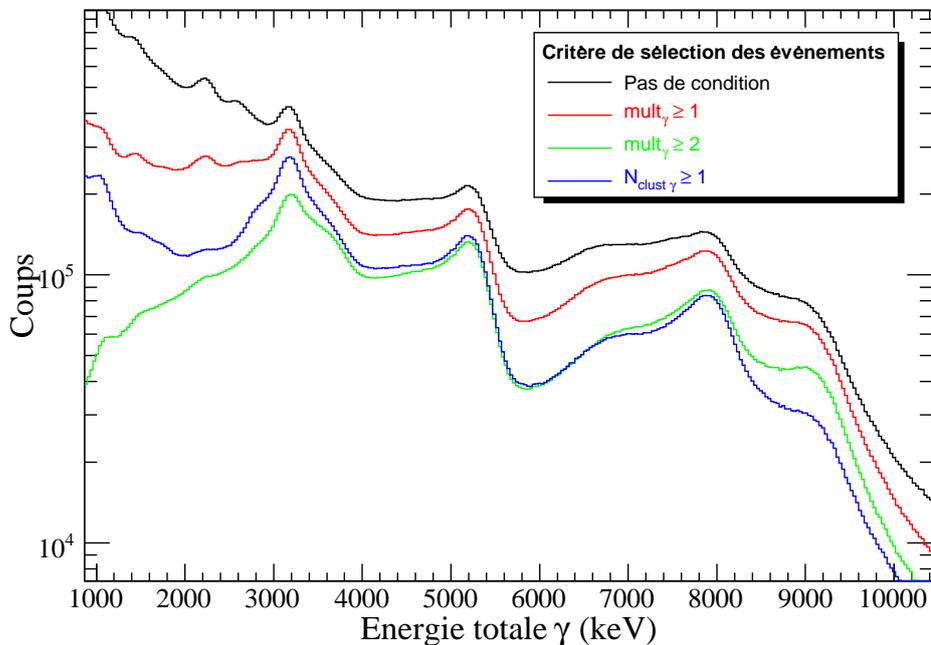


FIG. VII.1 – Choix du critère de sélection des événements.

VII.1.3 Correction de temps mort

Bien qu'utilisant un dispositif à base de flash-ADC, donc fonctionnant sans temps mort intrinsèque, une perte d'événements liée au programme de recherche et d'analyse de forme des impulsions, est à prendre en considération.

Afin d'accéder au temps mort on étudie le spectre d'intervalle de temps entre deux événements consécutifs arrivant sur un détecteur donné. Pour un taux de comptage donné, on s'attend à ce que ce spectre obéisse à une loi de Poisson [132]. La figure VII.2 montre en noir le spectre d'intervalle de temps obtenu pour un détecteur donné lors d'une mesure avec une source d'étalonnage. La courbe rouge montre la réponse attendu en absence de temps mort. La courbe bleue correspond à la réponse avec prise

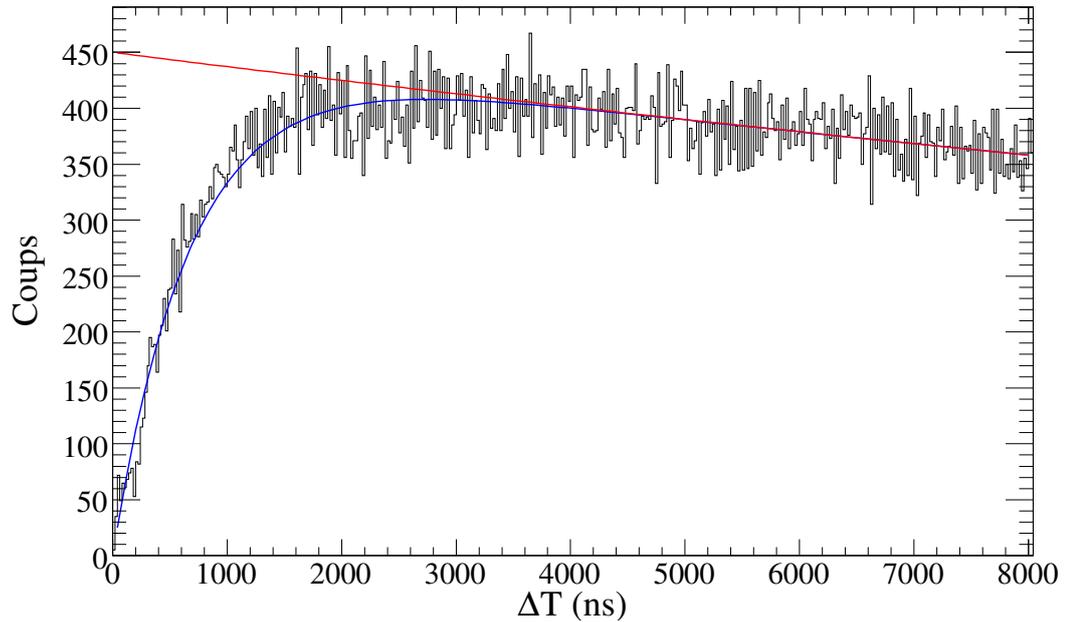


FIG. VII.2 – Spectre d'intervalle de temps entre deux événements consécutifs pour un détecteur donné. (Noir) réponse expérimentale, (rouge) réponse attendu, (bleu) réponse avec temps mort ajusté.

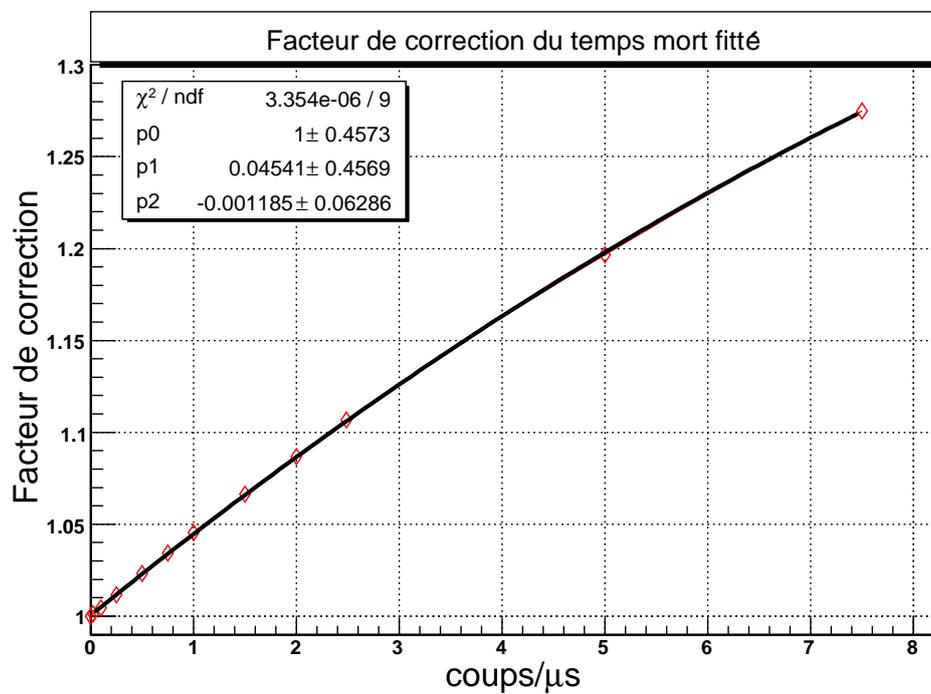


FIG. VII.3 – Un ajustement par un polynôme de second degré appliqué sur le facteur de correction de temps mort simulé de l' ^{234}U dont la condition est $N_{\text{clust}\gamma} \geq 2$ (voir §VII.1.2).

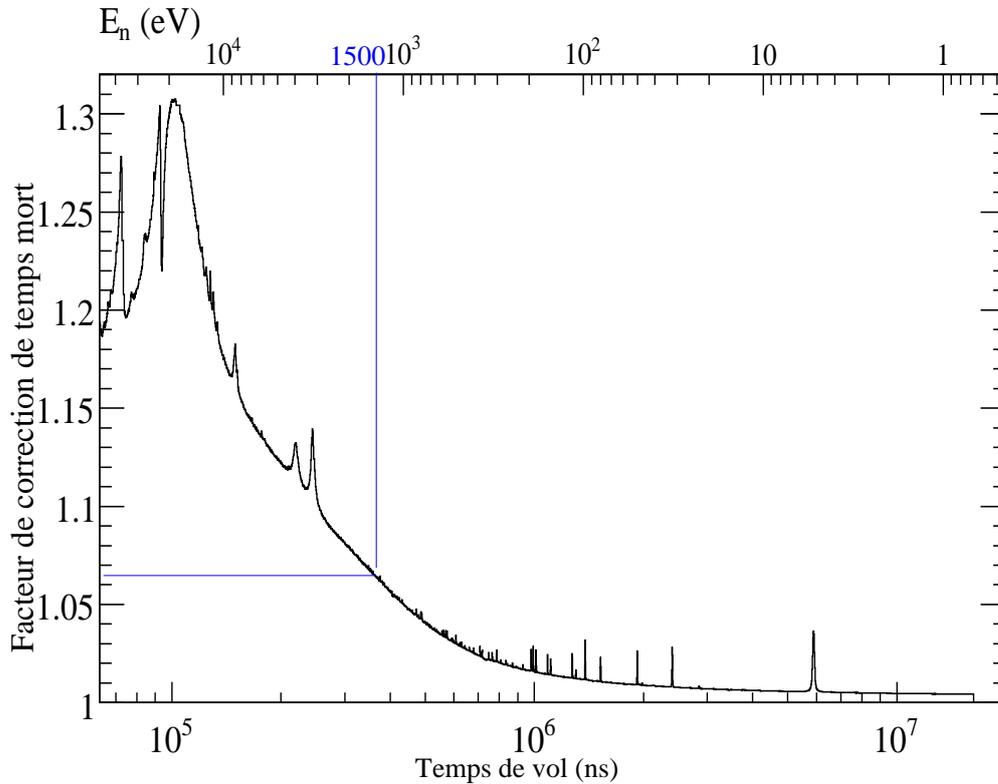


FIG. VII.4 – Allure du facteur de correction de temps mort en fonction du temps de vol des neutrons. De par sa définition, l’allure de ce spectre dépend du spectre de temps de vol sur lequel est effectué la correction, d’où l’apparition des résonances.

en compte du temps mort. Elle est obtenue en multipliant la loi de Poisson par une fonction du type :

$$f(t) = 1 - \exp(-t/\tau) \quad (\text{VII.6})$$

où τ varie typiquement entre 600 et 700 ns selon le détecteur considéré.

Une simulation Monte-Carlo, construite à partir des événements générés au préalable comme décrit au chapitre précédent, a été effectuée afin de calculer la perte d’efficacité due à la perte d’événements occasionnée par ce temps mort. Pour un taux de comptage donné, on tire au hasard, événement par événement, l’intervalle de temps entre deux événements successifs dans l’ensemble du calorimètre. De cet intervalle on peut aisément déduire l’intervalle de temps entre deux événements consécutifs pour un détecteur touché donné. À partir de ce temps on effectue un tirage Monte-Carlo sur la fonction donnée par l’équation (VII.6) afin de rejeter, ou non, ce détecteur. Les événements ainsi générés sont passés à travers le programme d’analyse afin de déterminer la perte d’efficacité occasionnée par cet effet de temps mort.

Le résultat est montré dans la figure VI.21. Sans condition, la perte d’efficacité reste en-dessous de 2% jusqu’à ~ 4 coups/ μs . Mais en se basant sur les critères de sélection

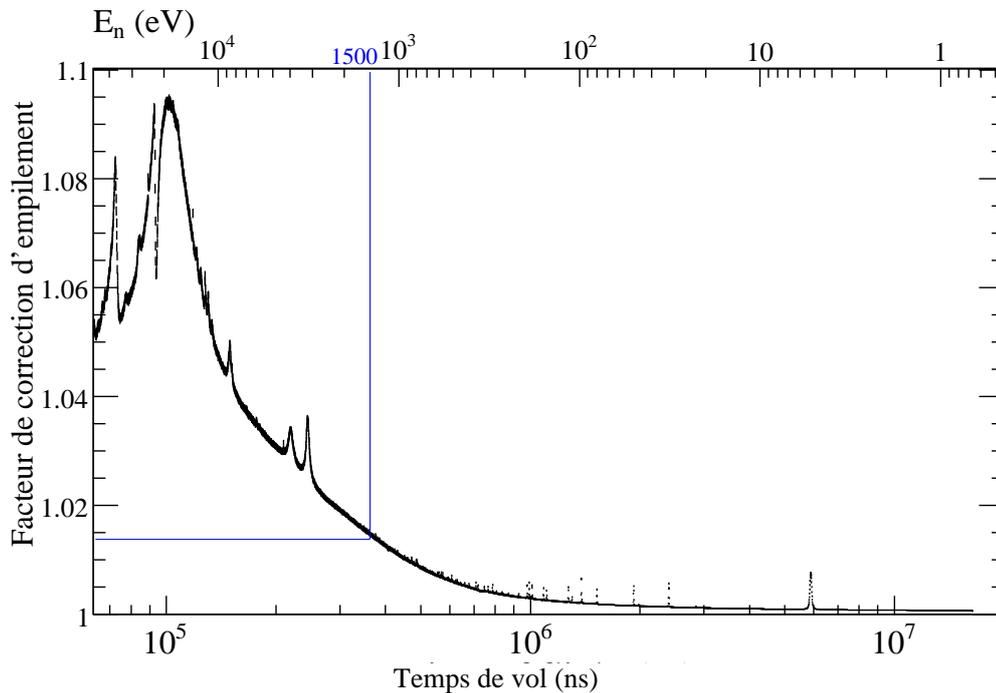


FIG. VII.5 – Allure du facteur de correction d’empilement en fonction du temps de vol des neutrons. De par sa définition, l’allure de ce spectre dépend du spectre de temps de vol sur lequel est effectué la correction, d’où l’apparition des résonances.

d’événements sur la multiplicité γ , la perte en efficacité est alors très sensible au taux de comptage. Cet effet ne peut donc pas être négligé avec notre critère de sélection.

La figure VII.3 présente l’inverse de la perte en efficacité simulé, pour le cas de ^{234}U , lorsqu’on demande que plus d’un cluster soit touché, en fonction du taux de comptage. Ceci correspond au facteur de correction de temps mort que nous devons appliquer à nos données. La courbe correspond à un ajustement effectué par un polynôme de degré 2.

Connaissant le taux de comptage du calorimètre en fonction du temps de vol, on en déduit aisément le facteur de correction à appliquer en fonction du temps de vol, qui est montré sur la figure VII.4. La correction de temps mort ne dépasse pas 10% pour la gamme d’énergie de neutrons ($E_n \leq 1,5 \text{ keV}$) qui a fait l’objet de ce travail. Si l’on admet que l’incertitude sur la valeur du temps mort est d’environ 10%, l’erreur introduite sur le taux de comptage par la correction de temps mort reste donc, hormis à haute énergie, inférieure au pourcent.

VII.1.4 Correction de l’empilement

Pour estimer la correction due à l’effet de l’empilement on va considérer que si plus d’un événement se produit pendant la fenêtre de coïncidence de $\Delta T=10 \text{ ns}$, alors

l'événement sera perdu. Avec cette hypothèse extrême, la correction, $f_p(t)$, à apporter à l'effet d'empilement est donc donnée par la formule de correction dans le cadre d'un temps mort paralysable [132, 36] :

$$f_p(t) = \frac{1}{1 - \int_t^{t+\Delta t} C_r(\tau) d\tau} \quad (\text{VII.7})$$

où $C_r(\tau)$ représente le taux de comptage instantané au temps τ .

La figure VII.5 représente ce facteur correctif en fonction du temps de vol neutron pour la mesure de ^{234}U . On peut voir que pour le domaine considéré ($E_n \leq 1,5$ keV) cet effet reste au plus de l'ordre du pourcent, et n'a donc pas été pris en compte dans ce travail.

VII.1.5 Détermination du bruit de fond

Le bruit de fond se traduit par un signal qui s'additionne aux événements utiles dans nos spectres de neutrons en temps de vol. Pour un taux de comptage S , dans un canal donné, il faut donc réussir à séparer la partie correspondant au signal de capture que l'on cherche à mesurer, notée C , du bruit de fond B .

Le bruit de fond dépend du signal lui-même et de l'instant de la mesure (à ne pas confondre avec le temps de vol du neutron).

On a donc avec E_n , l'énergie cinétique des neutrons autrement dit en fonction du temps de vol t est enregistré :

$$S(E_n) = C(E_n) + B(E_n) \quad (\text{VII.8})$$

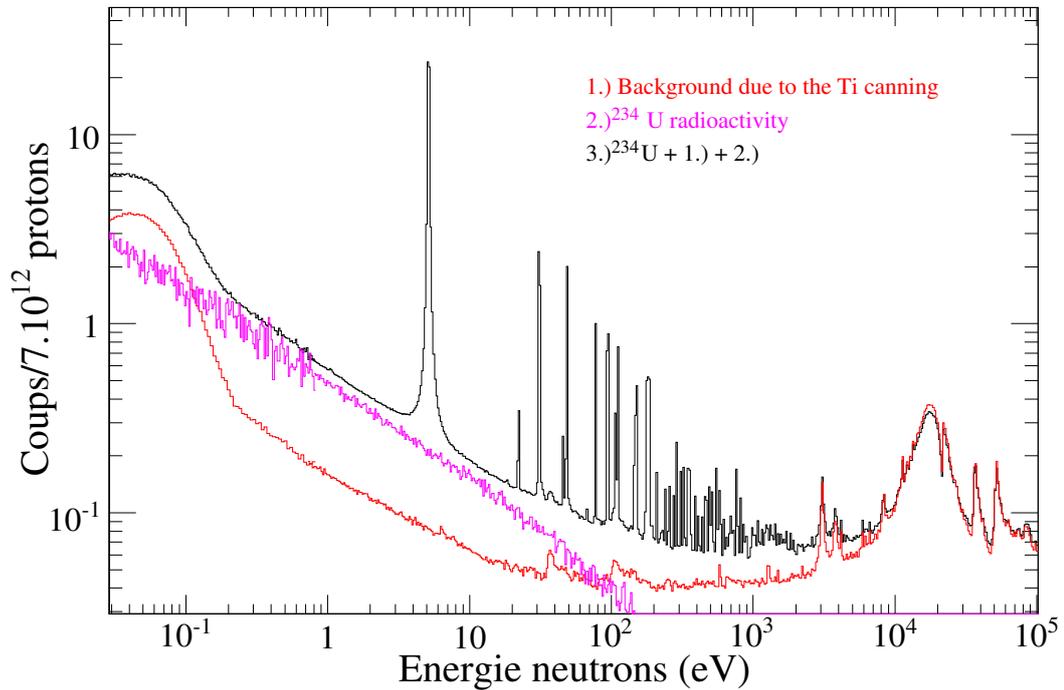
VII.1.5.1 Origine du bruit de fond

Le bruit de fond associé à la mesure de capture est constitué de quatre composantes :

- 1) le bruit de fond ambiant de la salle expérimentale sous faisceau,
- 2) les neutrons diffusés par l'échantillon,
- 3) la radioactivité ambiante et celle de l'échantillon,
- 4) les photons diffusés contenus dans le faisceau de neutrons.

Nous représentons sur la figure VII.6 ces différentes composantes, en comparaison avec le spectre brut associé à l' ^{234}U , auquel nous devons soustraire chacun de ces types de bruit.

Le bruit de fond ambiant sous faisceau peut provenir de l'extérieur du TAC ou du TAC lui-même. A basse énergie de neutrons c'est la radioactivité ambiante qui domine ainsi que la capture des neutrons par le silicium contenu dans les feuilles de Kapton servant de fenêtres entre le vide du guide neutron et le porte échantillon situé dans l'air. Au delà de 100 eV on observe une contribution isoléthargique probablement associée à des neutrons diffusés capturés dans le calorimètre.

FIG. VII.6 – Spectre brut de capture de ^{234}U .

Les neutrons diffusés par l'échantillon Cette composante est associée à la diffusion des neutrons par l'échantillon qui peuvent être capturés dans les éléments composant le TAC et son environnement. Les rayons γ ainsi produits sont alors susceptibles d'interagir dans le TAC. Ce bruit de fond croît avec la section efficace de diffusion élastique des matériaux de l'échantillon à étudier

Les neutrons diffusés dans le TAC ou dans les matériaux l'environnant peuvent également réagir à nouveau dans le détecteur et donc être détectés avec un temps de retard.

Dans notre cas, nous remarquons d'après la figure VII.6, la diffusion des neutrons par le titane naturel, qui provient du canning, domine à haute énergie de neutrons.

La radioactivité ambiante et de l'échantillon de ^{234}U a été mesuré pendant un arrêt du faisceau. Ce bruit de fond est constant dans le temps ou bien décroissant en $1/\sqrt{E}$ si il est représenté en fonction de l'énergie des neutrons incidents et en $dn/d\ln E$. Grâce au haut flux instantané, ce bruit de fond ne devient significatif qu'à bas taux de comptage, et peut être aisément soustrait ou ajusté sur les données.

Les photons issus du faisceau de neutrons La source principale de rayonnements γ transportés avec le faisceau provient de la capture des neutrons thermiques par les atomes d'hydrogène de l'eau du modérateur entourant la cible de spallation (ainsi que des matériaux situés autour de ce modérateur). L'énergie de ces rayons γ est comprise

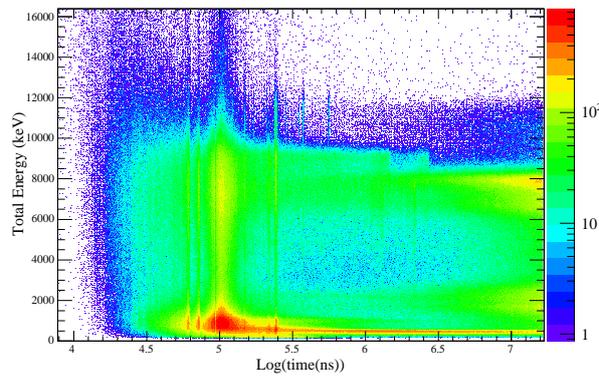
entre 1 et 2,2 MeV.

Des simulations [56] tenant compte de la dimension du modérateur de n_TOF et des sections efficaces de réaction montrent que la composante principale de cette source de rayons γ suit une décroissance exponentielle en temps dont la constante correspond à la demi-vie des neutrons thermiques dans le modérateur.

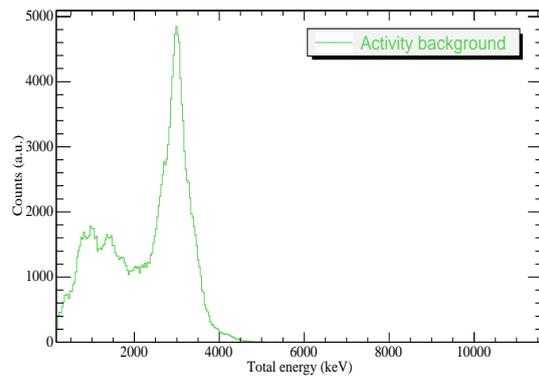
Les rayons γ ainsi produits sont diffusés, comme dans le cas de ceux provenant de la cible, par les différents éléments présents dans le faisceau de neutrons.

Notons cependant que dans notre domaine d'étude, cette composante de bruit de fond est très faible.

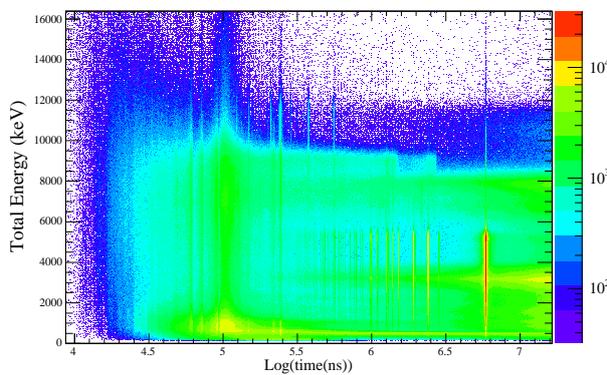
VII.1.5.2 Extraction du bruit de fond



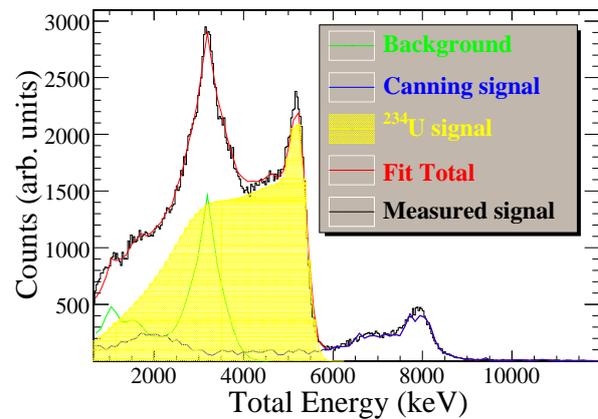
(a) Matrice bidimensionnelle de mesure de canning vide



(b) La radioactivité mesurée de 1^{234}U



(c) Matrice bidimensionnelle de mesure de 1^{234}U



(d) Résultats d'ajustement de différents spectres

FIG. VII.7 – Les différents spectres utilisés pour extraire le bruit de fond.

La première étape de ce travail consiste à déterminer la réponse en énergie du TAC à un neutron capturé par un noyau de ^{234}U , en tenant compte du critère de sélection des événements. La procédure pour extraire cette réponse a été explicitée au §V.4.1. La forme de la réponse du TAC est ajusté à partir des réponses aux résonances donnés sur la figure V.17.

Pour extraire la réponse du calorimètre au ^{234}U seul, trois histogrammes sont nécessaires comme illustré sur la figure VII.7 :

- 1) la matrice (temps de vol, énergie totale) obtenue lors d'une mesure avec une capsule vide en a),
- 2) la réponse du TAC à l'échantillon sans faisceau en b),
- 3) la matrice (temps de vol, énergie totale) obtenue lors de la mesure avec ^{234}U en c).

Ensuite, pour chaque bin en temps, le spectre en énergie mesuré avec ^{234}U est décomposé en trois éléments (en d) :

- a) l'ajustement de la réponse de ^{234}U (en jaune),
- b) l'ajustement de la radioactivité de l' ^{234}U mesuré sans faisceau de neutrons (en vert),
- c) le signal mesuré avec le canning vide pour le même temps de vol (en bleu).

Cette décomposition est effectuée au moyen d'un ajustement linéaire de l'amplitude de ces trois composantes.

VII.1.6 Efficacité de détection

Comme déjà signalé auparavant, l'efficacité de détection est nécessaire pour la détermination du rendement de capture. Elle est très difficile à calculer expérimentalement avec la précision demandée. Pour cela, nous avons procédé à des simulations MC à l'aide de GEANT4. Pour valider nos résultats, nous avons comparé la perte en efficacité de détection du TAC pour l' ^{197}Au et l' ^{234}U .

L'efficacité de détection, qu'on devrait inclure dans l'analyse, est l'efficacité trouvée à partir de la simulation pour le critère choisi (le nombre de cluster $\gamma > 1$) pour un taux de comptage pratiquement nul, qui vaut 79,75%. Toutefois pour une meilleure précision, nous avons corrigé cette valeur par l'efficacité expérimentale trouvée pour la première résonance (voir §V.4.3). Soit r ce facteur de correction.

$$\varepsilon_{\text{TAC}} = \varepsilon_{\text{cluster } \gamma > 1}^{\text{simulation}} \cdot r \quad (\text{VII.9})$$

Avec

$$r = \frac{\text{Perte en efficacité du TAC mesurée}}{\text{Perte en efficacité du TAC simulée par MC}} = \frac{D_1}{S_1} \quad (\text{VII.10})$$

Pour la perte expérimentale nous avons multiplié les efficacités données dans le tableau V.3 de la première résonance. Ceci nous donne l'efficacité du critère de sélection sachant qu'au moins un détecteur a été touché. Cette perte vaut

$$D_1 = 0,897 \times 0,863 = 0,7741.$$

Pour la perte déterminée par simulation, nous avons fait le rapport de deux efficacités à un taux de comptage égal à 0,75 coups/ μ s, correspond à la valeur expérimentale pour cette résonance. La première efficacité est la valeur sans condition, la deuxième correspondant au critère du nombre de cluster γ supérieur à un, comme présenté dans l'équation suivante :

$$S_1 = \frac{\varepsilon_{\text{cluster } \gamma > 1}^{\text{simulation}}}{\varepsilon_{\text{totale}}^{\text{simulation}}} \Bigg|_{0,75 \text{ cps}/\mu\text{s}} = \frac{0,77095}{0,98555} = 0,7822 \quad (\text{VII.11})$$

Le facteur de correction vaut donc : $r = 0,990$. Ce facteur, très proche de un, présente une autre preuve de validation de nos calculs de simulations. Au final l'efficacité du TAC (pour $N_{\text{clust}\gamma} > 1$) vaut :

$$\varepsilon_{\text{TAC}} = 0,7975 \times 0,990 = 78,9\% \quad (\text{VII.12})$$

VII.1.7 Flux de neutrons

La forme du flux de neutrons, de 0,03 eV à 1 MeV en fonction de l'énergie, est nécessaire puisqu'elle dépend de l'énergie des neutrons. Comme nous l'avons signalé dans le chapitre III, plusieurs mesures et simulations MC ont été entreprises pour décrire la forme de ce flux. Dans notre procédure d'analyse, nous avons utilisé le flux qui a été déterminé de 0,1 eV à 1 keV par un ajustement des données prises par le biais des détecteurs SiMON. Pour les énergies supérieures ce sont les points moyennés provenant de la mesure par les chambres à fission fournies par le PTB qui ont été considérés. La figure VII.8 illustre ce flux. De 0,03 à 0,1 eV la forme du flux a été déterminée au moyen de la mesure de capture sur l'or.

Fraction d'interception du faisceau Pour tenir en compte du profil du faisceau qui change avec l'énergie de neutrons incidents, un facteur qui décrit le pourcentage de neutrons incidents sur la surface de l'échantillon est nécessaire. Ce facteur s'appelle fraction d'interception du faisceau. Cette fraction a été déterminée par des simulations de MC en utilisant la paramétrisation du CIEMAT [133] de la source de neutrons et un transport géométrique suivant la ligne entière des éléments du faisceau de n_TOF. Les nouvelles dimensions du deuxième collimateur ont été aussi bien incluses. Le résultat de cette étude en utilisant la distance de vol de 184,89 cm de la cible du plomb vaut :

$$\varepsilon_{\text{faisceau}} = 0,198 \pm 0,007 \quad (\text{VII.13})$$

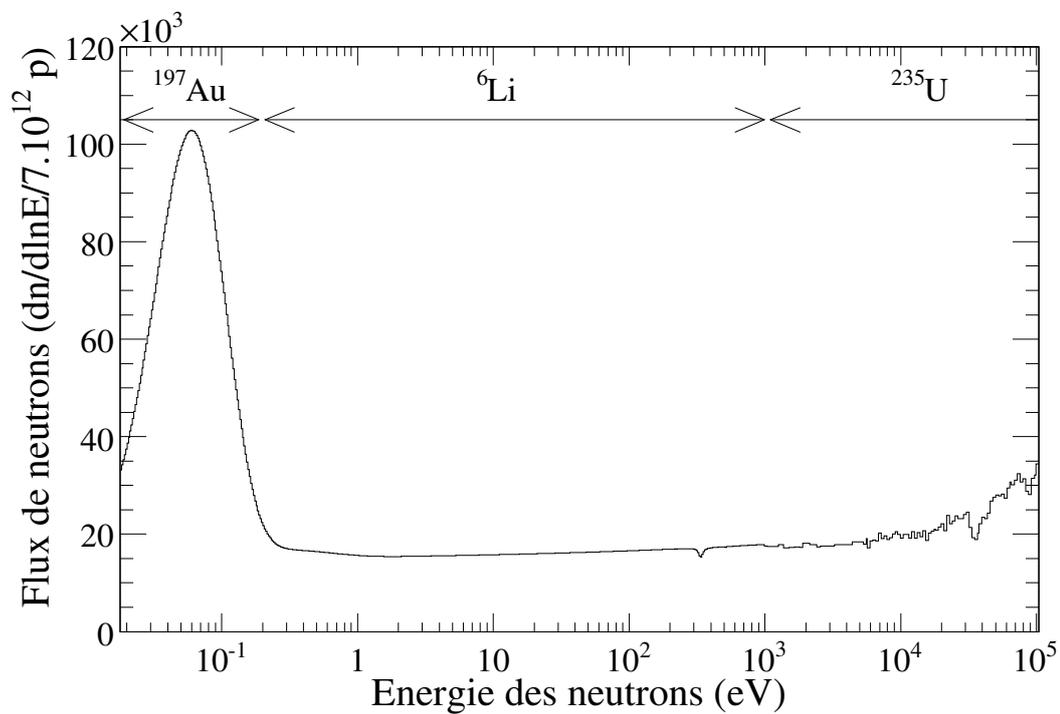


FIG. VII.8 – Flux de neutrons de 0,03 eV à 100 keV.

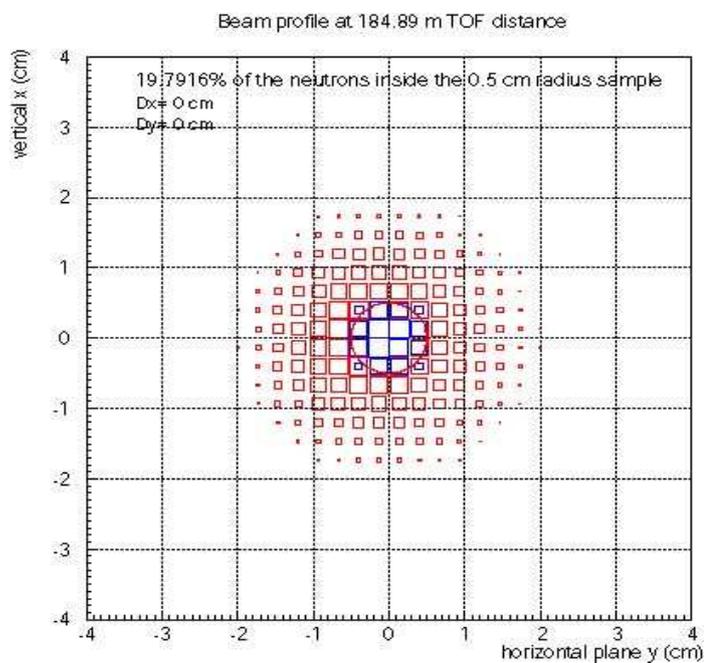


FIG. VII.9 – Fraction des neutrons incidents sur un échantillon de 10 mm de diamètre [133].

VII.2 Analyse dans la région des résonances

Dans l'analyse des résonances de la section efficace, le rendement est paramétré au moyen de la théorie des matrice-R. Les paramètres de ce modèle sont les niveaux d'énergie, spins et les largeurs partielles. Pour plus de détails voir le chapitre II.

Une procédure d'ajustement itérative peut être employée dans l'analyse, en variant un ou plusieurs paramètres décrivant le rendement théorique jusqu'à ce que la meilleure paramétrisation ait trouvé l'optimum pour décrire le rendement expérimental.

Néanmoins, il y a quelques effets expérimentaux, contribuant au rendement et à l'élargissement, qui sont difficiles à corriger dans les données expérimentales. Il est donc plus facile, et plus précis, de les inclure dans le calcul du rendement théorique.

VII.2.1 Effets expérimentaux

VII.2.1.1 Effets de l'épaisseur de l'échantillon

Le taux de réaction de capture Y_γ est la somme de contributions d'événements de collisions multiples où le neutron subit zéro, une, deux, etc. diffusions avant d'induire finalement la réaction enregistrée,

$$Y_\gamma = Y_{\gamma,0} + Y_{\gamma,1} + Y_{\gamma,2} + \dots \quad (\text{VII.14})$$

Le taux de premier choc est le produit de la probabilité d'interaction des neutrons incidents et du rapport σ_γ/σ du nombre d'événements (n,γ) au nombre total d'interactions,

$$Y_{\gamma,0} = (1 - T) \frac{\sigma_\gamma}{\sigma}, \quad (\text{VII.15})$$

où $T = e^{-n\sigma}$ est la fraction de neutrons à une énergie donnée qui traverse sans interaction un échantillon d'une épaisseur n (atomes/barn).

Pour des échantillons très minces $n\sigma \ll 1$, le taux de réaction de capture peut être approximé par le premier terme, donc négliger les collisions multiples d'où $Y_\gamma \sim Y_{\gamma,0} \sim n\sigma_\gamma$. Mais, en général, les termes de collisions multiples doivent être considérés. Ceux-ci peuvent être écrits comme :

$$Y_{\gamma,1} = (1 - T) \frac{\sigma_n}{\sigma} \langle (1 - T_1) \frac{\sigma_{\gamma,1}}{\sigma_1} \rangle_1, \quad (\text{VII.16})$$

$$Y_{\gamma,0} = (1 - T) \frac{\sigma_n}{\sigma} \langle (1 - T_1) \frac{\sigma_{n,1}}{\sigma_1} \langle (1 - T_2) \frac{\sigma_{\gamma,2}}{\sigma_2} \rangle_2 \rangle_1, \quad (\text{VII.17})$$

L'indice numérique indique le nombre de collisions précédentes. Les parenthèses traduisent des moyennes spatiales et angulaires sur toutes les premières, deuxièmes, ... collisions possibles. Notons que dans le domaine des résonances, de petites variations d'énergies peuvent entraîner des variations dramatiques de la section efficace. Les taux de collisions multiples $Y_{\gamma,1}, Y_{\gamma,2}, \dots$ sont donc des fonctions dépendant fortement des sections efficaces σ_γ, σ_n et σ . Le seul moyen valable serait la simulation Monte-Carlo de

l'histoire des collisions multiples des neutrons basée sur une description détaillée des résonances des sections efficaces, sur les distributions de probabilités appropriées pour les libres parcours et les angles de diffusion, et sur la géométrie exacte de l'échantillon.

VII.2.1.2 Effet Doppler

L'effet Doppler dans des réactions nucléaires est provoqué par l'agitation thermique des noyaux cibles. Une méthode de calcul de d'élargissement consiste à supposer que les noyaux cibles ont la même distribution de vitesse que les atomes d'un gaz idéal, qui suivent la distribution de Maxwell-Boltzmann. Après quelques approximations, on peut montrer [41] que l'élargissement peut être inclus grâce à une convolution gaussienne du taux de réaction avec une largeur Doppler, $\Delta = \sqrt{2}\sigma$, donnée par :

$$\Delta = \sqrt{\frac{4EkT}{M/m}} \quad (\text{VII.18})$$

Dans cette formule, M est la masse du noyau cible, kT la température de Debye et m la masse de neutron.

VII.2.1.3 La fonction de résolution

Pour obtenir des paramètres de résonances les plus exacts possibles, il est nécessaire de bien connaître cette résolution afin de pouvoir en donner une représentation fiable dans le programme d'analyse SAMMY qui a été utilisé dans le cadre de ce travail.

Dans une mesure de capture, le rendement de capture est affecté par la résolution expérimentale. En effet, le rendement de capture mesuré est en fait le résultat de la convolution du rendement réel que l'on cherche à déterminer par la résolution expérimentale,

$$Y_{exp}(E) = \int_0^{+\infty} Y_{réel}(E') \cdot R(E, E') \cdot dE' \quad (\text{VII.19})$$

avec

E , l'énergie cinétique des neutrons.

$Y_{exp}(E)$, le rendement mesuré.

$Y_{réel}(E)$, le rendement réel, c'est à dire non affecté par la résolution expérimentale.

$R(E, E')$, la résolution expérimentale qui dépend de plusieurs effets caractéristiques de chaque dispositif expérimental. Pour plus de détails voir §III.9.2.

La fonction de résolution de n_TOF a été déterminée par simulations de Monte-Carlo [134]. Elle a été également validée expérimentalement par la mesure de capture sur le ^{nat}Fe . Deux codes de simulation Monte-Carlo CAMOT ([135], [136]) et FLUKA [137] ont été utilisés pour calculer la production et le transport des particules et des rayons γ . Une description des simulations du faisceau de neutrons est donnée dans la référence [134]. La simulation contient une reproduction détaillée de l'ensemble cible-modérateur avec la fenêtre d'aluminium et le tunnel avec les deux collimateurs.

Afin d'accumuler assez de statistiques, la distribution temporelle de neutrons dans une gamme d'énergies donnée ΔE est calculée.

Une bonne description de la fonction de résolution est d'importance cruciale dans l'analyse des résonances résolues de sections efficaces (n,γ).

VII.2.2 Le code d'analyse en Matrice-R SAMMY

SAMMY est un code d'analyse utilisé couramment pour le paramétrage des données des sections efficaces des réactions induites par neutrons.

Les caractéristiques principales de SAMMY [41, 45] peuvent être assorties dans quatre catégories :

- 1) calcul de sections efficaces théoriques. Dans la région des résonances résolues (RRR), celles-ci sont déterminées grâce à la théorie des matrice-R. Dans la région des résonances non-résolues (URR), divers modèles statistiques peuvent être utilisés,
- 2) corrections des effets expérimentaux,
- 3) une procédure d'ajustement, dont le but est de déterminer les paramètres théoriques à partir des données expérimentales,
- 4) les fonctions de pré- ou de post-traitement, permettant de mettre en forme les résultats pour être utilisés dans les codes de neutroniques.

Le code SAMMY a été choisi pour l'analyse des données de capture, parce qu'il permet d'inclure tous les effets mentionnés ci-dessus de manière détaillée. Pour la reproduction de la section efficace nous avons utilisé l'approximation de Reich-Moore, qui est parfaitement justifiée dans notre cas.

Les effets d'épaisseur d'échantillon sont implémentés dans SAMMY en considérant un échantillon homogène de taille finie. La diffusion multiple est calculée en assumant l'approximation des neutrons uniformément distribués dans l'échantillon après la deuxième diffusion.

Plusieurs options d'élargissement thermiques sont possibles dans SAMMY, bien que le modèle de gaz libre décrit ci-dessus soit recommandé. La fonction de résolution de faisceau de neutrons de n -TOF a été récemment implémentée dans le code.

En utilisant le théorème de Bayes, SAMMY génère un ensemble de paramètres de résonance a posteriori et de matrice de covariance des données expérimentales disponibles a priori. Généralement, les paramètres de résonances en entrée de la référence [15] ont été utilisés dans ce travail pour le calcul du rendement théorique avec SAMMY. Des paramètres pour différents isotopes, comme la composition atomique de l'échantillon, peuvent être également inclus dans SAMMY afin de tenir compte des impuretés de l'échantillon.

TAB. VII.1 – Les paramètres appropriés pour l’usage avec des données expérimentales de n_TOF au CERN, valables de 1 eV à 1 MeV.

Paramètres	Valeurs pour n_TOF	Unités
τ_5	-3,7004	ns
τ_6	-684,39	ns
τ_7	-0,5189	sans dimension
Λ_0	3,8457	ns
Λ_3	502,9930	ns
Λ_4	-0,4155	sans dimension
a_1	-0,0381	ns ⁻¹
a_2	$9,974 \times 10^{-6}$	eV ⁻¹
a_3	-0,01172	ns ⁻¹
a_4	0,0001019	eV ⁻¹
a_5	0,05009	ns ⁻¹
a_6	0,0	ns ⁻¹
a_7	0,0	sans dimension
A_2	1,0	sans dimension
A_4	-1,0	sans dimension
A3SQE (A_3) : a_{35}	-0,0001689	[ns × (eV) ^{1/2}] ⁻¹
A3SQE (A_3) : a_{36}	0,0004254	[ns × (eV) ^{1/2}] ⁻¹
A3SQE (A_3) : a_{37}	-0,06043	sans dimension
A3SQE (A_3) : a_{55}	0,0002766	[ns × (eV) ^{1/2}] ⁻¹

VII.2.2.1 La fonction de résolution RPI de n_TOF dans SAMMY

Dans SAMMY plusieurs paramétrisations ont été incluses pour décrire la fonction de résolution de différentes installations comme ORELA, GELINA et actuellement n_TOF. Nous avons trouvé que la fonction de résolution dite RPI pour “Rensselaer Polytechnic Institute” [138] peut reproduire convenablement les distributions temporelles neutroniques simulées de l’installation n_TOF.

La fonction de résolution RPI est généralement la somme de trois composantes : une fonction de χ^2 avec six degrés de liberté et deux termes exponentiels dont les paramètres dépendent de l’énergie. Le premier terme contenant Λ est pris en compte uniquement si $t > -\tau$. Quant à la quantité $X(t)$, elle est égale à l’unité si la somme des queues exponentielles est positive, et nulle sinon.

$$R(t) = A_0 \frac{(t + \tau)^2}{2\Lambda^3} e^{-\frac{t+\tau}{\Lambda}} + A_1 [A_2 e^{-A_3(t+t_0)} + A_4 e^{-A_5(t+t_0)}] X(t) \quad (\text{VII.20})$$

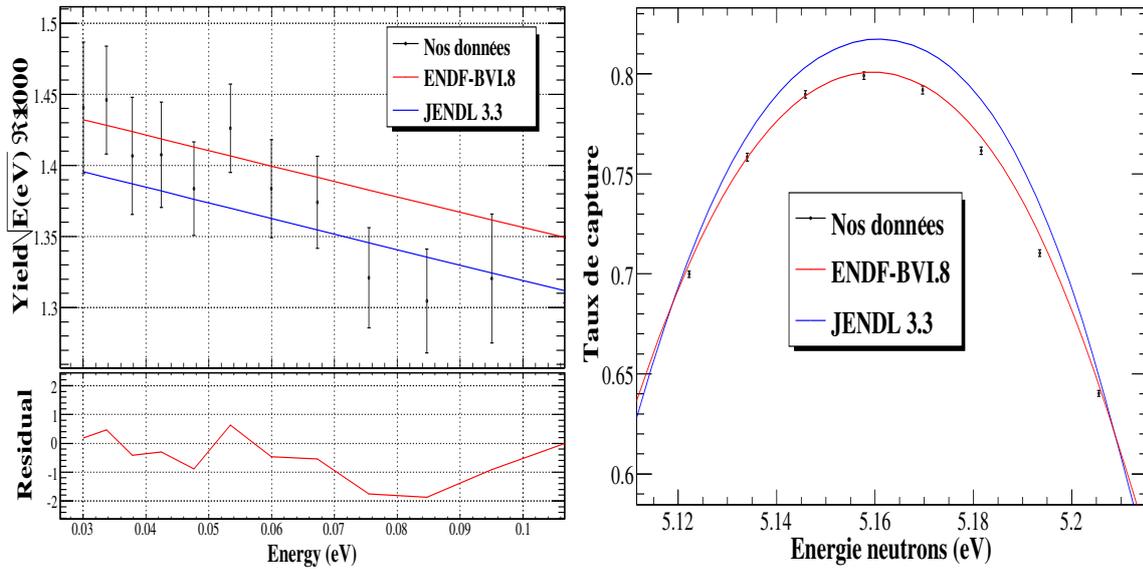


FIG. VII.10 – Ajustement de la région thermique (à gauche) et la première résonance (à droite) en prenant comme paramètres d'entrées de ceux de la bibliothèque ENDF/B-VI.8 (en rouge) et JENDL3.3 (en bleu).

Le paramétrage est donné dans le tableau VII.1, avec les dépendances en énergie des paramètres définis par les équations VII.21, VII.22 et VII.23.

$$\Lambda(E) = \Lambda_0 + \Lambda_1 \ln(E) + \Lambda_2 [\ln(E)]^2 + \Lambda_3 E^{\Lambda_4} \quad (\text{VII.21})$$

$$\tau(E) = \tau_1 e^{-\tau_2 E} + \tau_3 e^{-\tau_4 E} + \tau_5 + \tau_6 E^{\tau_7} \quad (\text{VII.22})$$

$$A_i(E) = \{a_{i1} e^{-a_{i2} E} + a_{i3} e^{-a_{i4} E} + a_{i5} + a_{i6} E^{a_{i7}}\} \alpha_i \quad (\text{VII.23})$$

VII.2.3 Protocole d'analyse

VII.2.3.1 Normalisation

Comme la densité surfacique de ^{234}U dans notre échantillon n'est pas connue actuellement à mieux que 10% près, nous avons décidé de normaliser nos mesures à la valeur de la section efficace de capture au niveau du point thermique et de la première résonance. En effet, si on effectue seulement l'ajustement au niveau du point thermique la valeur trouvée c'est en fait le produit entre la vraie normalisation et l'épaisseur de l'échantillon. Le but de l'ajustement au niveau de la première résonance est donc pour éliminer la valeur de l'épaisseur de l'échantillon. Pour ce faire nous sommes partis des paramètres de résonances données par ENDF/B-VI.8 [15] JENDL3.3 et nous avons ajusté la constante de normalisation et la composition de l'épaisseur de l'échantillon (les deux paramètres libres) afin de reproduire nos données pour des énergies neutrons

inférieures à 0,1 eV. Le résultat de cet ajustement est montré sur la figure VII.10. Une étude de comparaison [139] entre les données ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 [16] et validée par des expériences a montré que le point thermique de JENDL est sous estimé de 5% (voir la figure VII.10) d'où le choix de procéder la normalisation en utilisant ENDF/B-VI.8.

VII.2.3.2 Bruit de fond constant déterminé par SAMMY

Lors de notre ajustement nous avons laissé à SAMMY la possibilité de prendre en compte un bruit de fond constant. Une valeur de $8,4 \cdot 10^{-5}$ a été trouvée qui a ensuite été retranchée du taux de capture expérimental.

VII.2.3.3 Procédé d'ajustement

Une fois la normalisation déterminée et le bruit de fond retranché, nous avons déterminé, en partant des valeurs données par ENDF/B-VI.8, puis en effectuant plusieurs itérations, un ajustement des données entre 0,03 eV et 10 eV afin de déterminer la valeur de la résonance négative et de la première résonance.

Une fois que cette région a été ajustée de façon satisfaisante, nous avons établi un ajustement sur toute la gamme d'énergie, soit de 0,1 eV jusqu'à 1,5 keV, afin d'effectuer un ajustement final.

VII.3 Résultats pour les résonances

La figure VII.11 montre le rendement de capture de neutronique de ^{234}U de 0,03 à 10 eV. Nos données sont en noir. La courbe rouge correspond à la simulation en utilisant les paramètres de résonances ENDF/B-VI.8. La courbe en bleue donne l'ajustement de SAMMY sur nos données.

TAB. VII.2 – Comparaison des paramètres de résonance négative avec ENDF/B-VI.8.

Source \ Paramètres	E_n (eV)	Γ_γ (meV)	Γ_n (meV)
n_TOF	$-0,97 \pm 0,01$	$26 \pm 1,88$	$0,85 \pm 0,06$
ENDF/B-VI.8	-2	40	3,22

Bien que nos données soient normalisées pour reproduire la section efficace connue des spectres thermiques, on peut clairement voir sur la figure VII.11 que la pente donnée par le rendement ENDF/B-VI.8 ne correspond pas à celle ajustée sur nos données.

Les tableaux VII.2 et VII.3 illustrent l'ajustement de SAMMY sur nos données comparé aux valeurs adoptées par ENDF/B-VI.8. Les erreurs citées sont seulement

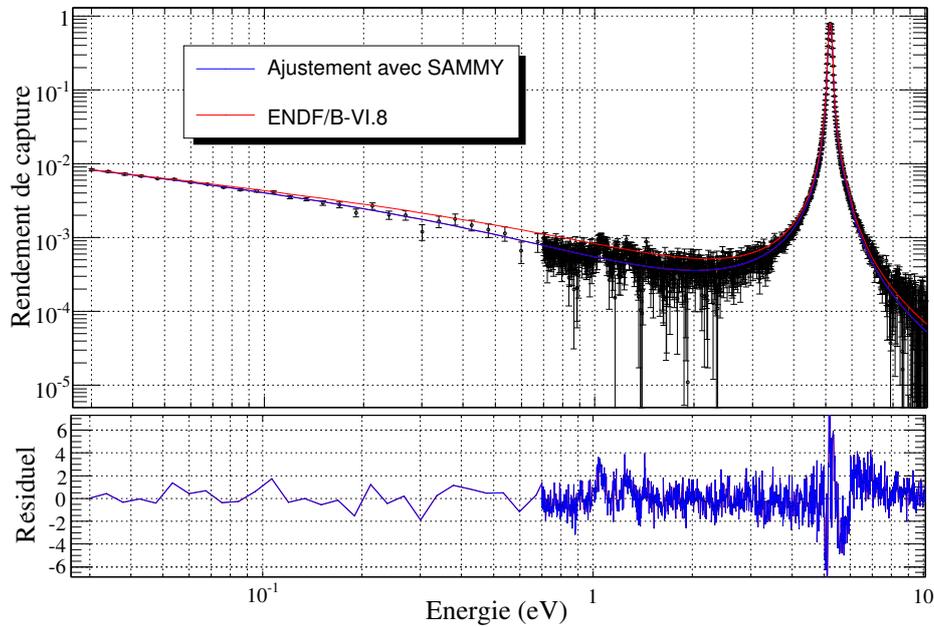


FIG. VII.11 – Ajustement dans la région à basse énergie entre 0,03 et 10 eV. Une comparaison entre les données ENDF/B-VI.8 en rouge et nos résultats d’ajustement avec SAMMY en bleu.

TAB. VII.3 – Comparaison des paramètres de la première résonance avec ENDF/B-VI.8.

Source \ Paramètres	E_n (eV)	Γ_γ (meV)	Γ_n (meV)
n_TOF	$5,157 \pm 0,0003$	$38,13 \pm 0,07$	$3,636 \pm 0,026$
ENDF/B-VI.8	5,16	40	3,92

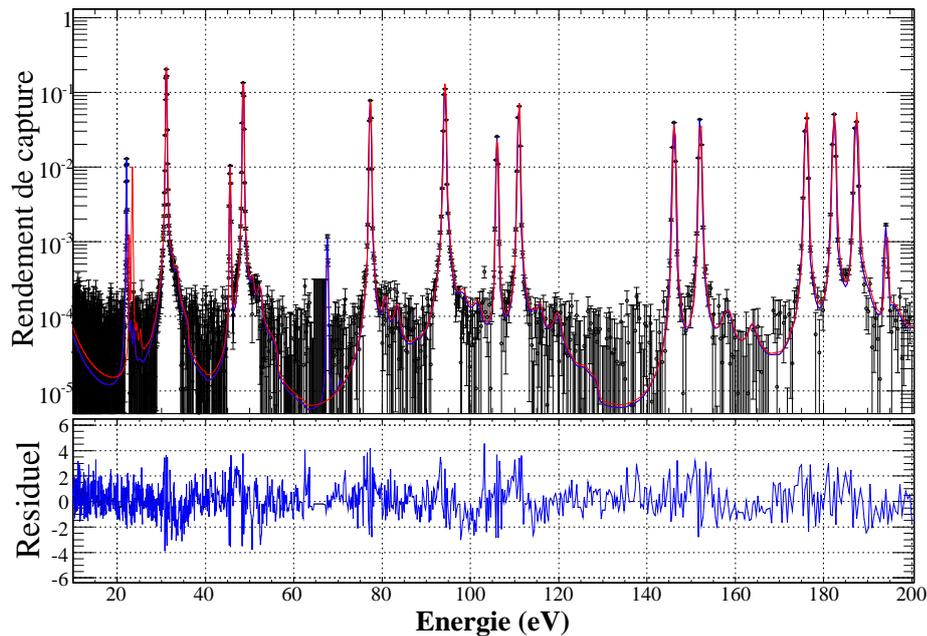


FIG. VII.12 – Comparaison entre les données expérimentales (en noir), de ENDF/B-VI.8 (en rouge) et celles d’ajustement de SAMMY (en bleu) du rendement de capture neutronique de ^{234}U jusqu’au 200 eV.

statistiques. On devrait ajouter une erreur de 0,1% pour les énergies de résonance dues à l’incertitude sur la distance de vol.

Pour l’énergie négative nous avons trouvé une largeur radiative de 26 meV, en accord avec celle de Mughabghab [33], correspondant également à l’évaluation JENDL-3.3, et plus petite que la valeur de ENDF/B-VI.8. Néanmoins on devrait noter que notre énergie négative et la largeur neutronique ne correspondent pas à la valeur de Mughabghab ou de JENDL.

La largeur radiative de la première résonance est compatible avec la valeur ENDF/B-VI.8, mais en désaccord avec JENDL-3.3 [16] ou Mughabghab [33]. Notre largeur neutronique est environ 8% inférieure à celle de ENDF/B-VI.8. Néanmoins, comme cela peut être vu sur la figure VII.11, notre meilleur ajustement n’est pas capable de reproduire correctement la forme de la première résonance avec un résiduel très bas. Plusieurs raisons peuvent être invoquées pour expliquer une telle anomalie. Premièrement le modèle du gaz libre, choisi dans l’analyse actuelle pour la description de l’élargissement Doppler dans SAMMY, n’est probablement pas bien adapté pour décrire ce phénomène pour un échantillon de type oxyde. Deuxièmement notre description d’échantillon incluse dans l’ajustement de SAMMY est imprécise. En réalité notre échantillon se compose de différentes couches de $\text{Ti-Al-U}_3\text{O}_8$.

Dans SAMMY il est traité comme un mélange homogène de tous ces composants. L’impact d’une telle différence dans l’effet la diffusion multiple n’a pas encore été étudié. De plus la répartition de la masse de ^{234}U dans notre échantillon n’est pas bien connue

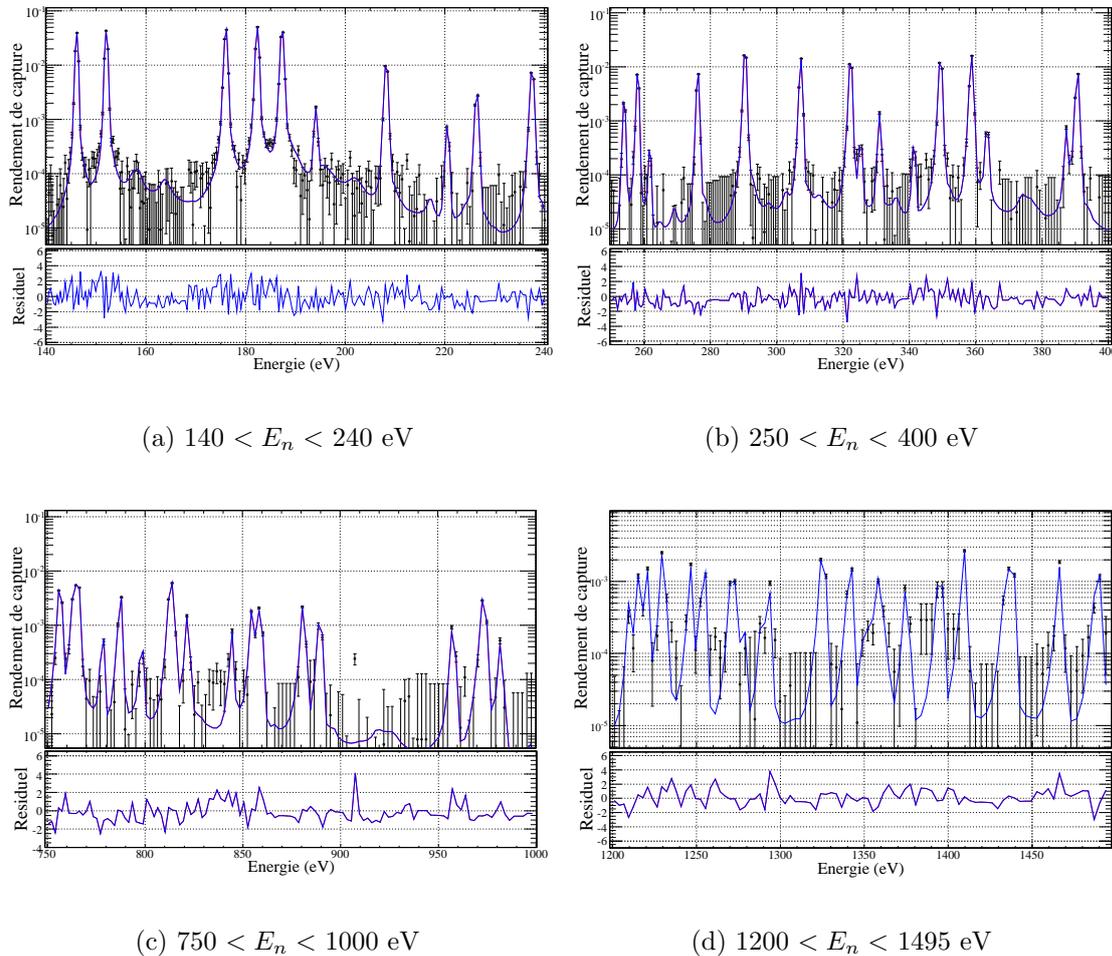


FIG. VII.13 – Panel de résonances ajustés sur quatre domaines en énergie de neutrons.

et peut également donner lieu à une erreur systématique.

Afin de déterminer la largeur radiative nous avons effectué une analyse en la laissant libre dans la plupart des résonances jusqu'à 200 eV. Au-dessus de cette énergie notre statistique est trop faible pour ajuster ce paramètre.

Les résultats sont présentés sur la figure VII.12. La résonance à 23 eV n'est pas vue dans les données actuelles, mais les paramètres pour la résonance de 22 eV sont proches de la résonance à 23 eV de ENDF/B-VI.8. Nous remarquons une résonance à 67,6 eV, qui n'est pas rapportée dans les évaluations. Pour les autres résonances, nous pouvons voir un accord raisonnable entre nos données et l'évaluation ENDF/B-VI.8.

Nous signalons que l'identification des niveaux (résonances) est visuelle. Il est donc quelquefois difficile d'identifier d'éventuels doublets (ou des multiplets), en cas de superpositions de résonances.

Une autre difficulté réside dans la détermination des petites résonances. Certaines résonances sont en effet difficilement discernables des fluctuations statistiques.

TAB. VII.4 – Comparaison de la largeur radiative moyenne avec les évaluations.

Paramètre \ Source	ENDF/B-VI.8	JENDL3.3	ce travail
$\langle \Gamma_\gamma \rangle$ (meV)	40	26	$38,2 \pm 1,5$

Il y a donc une forte probabilité de ne pas identifier certaines résonances à cause de ces deux cas. Dans le cadre de ce travail, les résonances ont été analysées jusqu'à 1,5 keV. Au final le nombre de résonances identifiées est de 123 sans compter la résonance négative.

A titre d'illustration, nous présentons sur la figure VII.13 quelques résonances sur toute la plage en énergie étudiée.

Les différents paramètres de résonance entre 0,03 eV et 1,5 keV sont données avec leurs incertitudes, qui sont de nature statistique uniquement, dans l'annexe D.

VII.3.1 Conclusion

Une mesure de la section efficace de capture neutronique de l' ^{234}U a été effectuée à l'installation de n_TOF au CERN, en utilisant un nouveau calorimètre d'absorption totale de 4π BaF₂. Un rendement de 0,03 eV à 1,5 keV a été extrait. De nouveaux paramètres ont été extraits pour décrire la section efficace dans le domaine thermique. La largeur radiative de la première résonance trouvée est de 38,13 meV en accord avec la valeur ENDF/B-VI.8.

VII.4 Analyse statistique

Les principaux intérêts de la description des sections efficaces à l'aide de paramètres de résonance est de pouvoir déterminer des valeurs statistiques telles que les espaces moyens, les largeurs partielles moyennes et les fonctions densité. Ces valeurs vont en effet servir de base pour déterminer la valeur moyenne de la section efficace dans le domaine des résonances non résolues.

VII.4.1 Largeur radiative moyenne

La largeur radiative doit suivre une loi χ^2 à grand nombre de degrés de liberté. Seules de faibles fluctuations sont donc attendues autour de la valeur moyenne.

Les largeurs radiatives ajustés par SAMMY pour les énergies en dessous de 200 eV sont représentés dans l'annexe D. La valeur moyenne $\langle \Gamma_\gamma \rangle$ est obtenue par moyenne pondérée suivant cette formule :

$$\langle \Gamma_\gamma \rangle = \frac{\sum_i \Gamma_\gamma \varepsilon_i^{-2}}{\sum_i \varepsilon_i^{-2}} \quad (\text{VII.24})$$

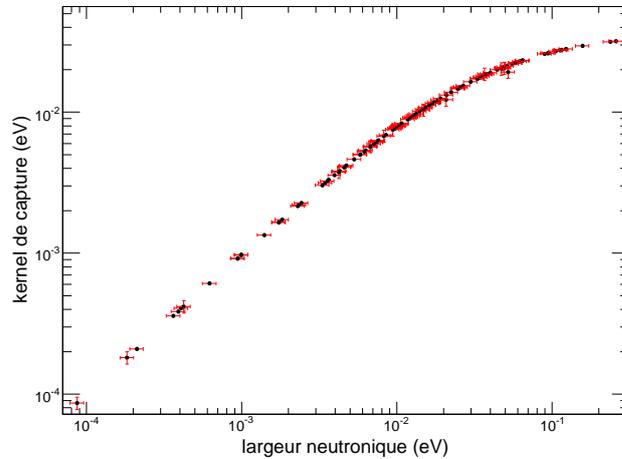


FIG. VII.14 – Kernel de capture radiative en fonction de la largeur neutronique.

avec :

ε_i l'erreur statistique sur la valeur de Γ_{γ_i} pour une résonance i

$$\langle \Gamma_{\gamma} \rangle = 38,2 \pm 1,5 \text{ meV} \quad (\text{VII.25})$$

L'écart principal entre les diverses évaluations est la largeur radiative moyenne. ENDF/B-VI.8 donne une valeur de 40 meV basé sur la mesure de transmission de James *et al.* [140]. Au contraire l'évaluation de JENDL-3.3 suit Mughabghab et donne 26 meV. Nos mesures sont en accord satisfaisant avec James *et al.* [140], mais en désaccord avec Mughabghab [33].

VII.4.2 Kernel radiatif

Une façon de déterminer la largeur radiative Γ_{γ} consiste à extraire la valeur moyenne d'un large nombre de résonances. Mais, nous pouvons aussi calculer le kernel radiatif, défini par :

$$A_{\gamma} = \frac{g\Gamma_n\Gamma_{\gamma}}{\Gamma_n + \Gamma_{\gamma}} \quad (\text{VII.26})$$

et étudier son comportement en fonction de Γ_n . Cette procédure permet d'ajuster la valeur moyenne de Γ_{γ} . Si $\Gamma_n \gg \Gamma_{\gamma}$ alors $A_{\gamma} \approx g\Gamma_{\gamma}$ tandis que si, au contraire, $\Gamma_n \ll \Gamma_{\gamma}$, alors $A_{\gamma} \approx g\Gamma_n$.

La figure VII.14 représente l'aire A_{γ} pour toutes les résonances en fonction de Γ_n . La valeur de Γ_{γ} a été ajustée à partir de cette aire en utilisant l'équation VII.26. Le résultat de l'ajustement correspond à $\Gamma_{\gamma} = 37 \pm 2 \text{ meV}$.

VII.4.3 Distribution des largeurs neutronique réduites

La largeur neutronique réduite suit une distribution χ^2 à 1 degré de liberté, appelée la loi de Porter et Thomas [53], définie par l'équation (II.52) :

$$\chi^2(x) \cdot dx = \frac{1}{\sqrt{2\pi x}} \cdot e^{-\frac{x}{2}} \cdot dx$$

avec :

$$x = \frac{\Gamma_n^0}{\langle \Gamma_n^0 \rangle} \quad (\ell = 0 \text{ pour toutes les résonances})$$

$$\Gamma_n^0 = \frac{\Gamma_n}{\sqrt{E}}, \text{ la largeur neutronique réduite}$$

$\langle \Gamma_n^0 \rangle$, valeur moyenne des largeurs neutroniques réduites.

On utilise fréquemment la distribution intégrale de la loi de Porter et Thomas donnant le nombre de résonances $N(x_t)$ dont la largeur neutronique réduite est supérieure à $x_t \cdot \langle \Gamma_n^0 \rangle$:

$$N(x_t) = N_0 \cdot \int_{x_t}^{+\infty} p(x) \cdot dx = N_0 \left(1 - \operatorname{erf} \left(\sqrt{\frac{x_t}{2}} \right) \right) \quad (\text{VII.27})$$

avec

N_0 , représente le nombre total de niveaux sans seuil.

et x_t une quantité sans dimension définie par :

$$x_t = \frac{g\Gamma_n^0}{\langle g\Gamma_n^0 \rangle} \quad (\text{VII.28})$$

dans notre cas d'étude le facteur statistique de spin g égal à 1.

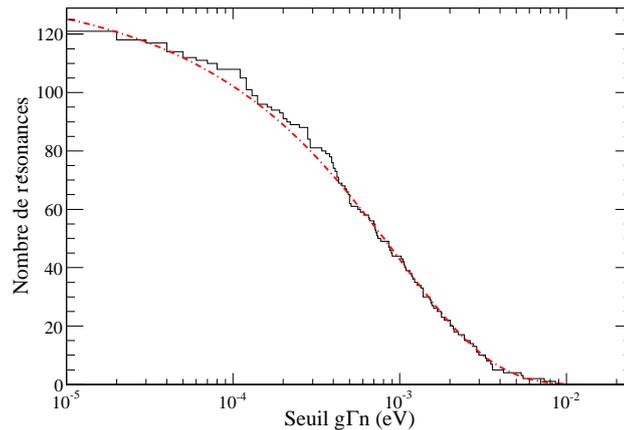


FIG. VII.15 – Distribution intégrale des largeurs neutroniques réduites (en fonction de $g\Gamma_n^0$) et comparaison avec la loi de Porter et Thomas (en rouge).

Sur la figure VII.15, la distribution intégrale de la valeur $g\Gamma_n^0$ pour les 123 résonances de $\ell = 0$ identifiées expérimentalement est comparée à la distribution de la loi de Porter et Thomas calculée avec les valeurs :

$$N_0 = 136 \pm 2$$

$$\langle \Gamma_n^0 \rangle = (0,987 \pm 0,012) \cdot 10^{-3} \text{ eV}$$

VII.4.4 Espacement moyen

Le nombre N de résonances pour un spin donné en fonction de l'énergie (nombre de résonances d'énergie inférieure à l'énergie considérée) est représenté sur la figure VII.16.

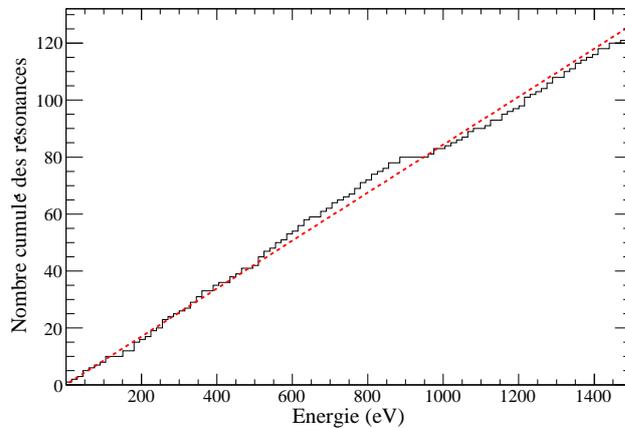


FIG. VII.16 – Nombre cumulé des résonances identifiées en fonction de l'énergie et comparaison avec la droite ajustée.

Si tous les niveaux de $\ell = 0$ étaient identifiés alors, selon l'équation (II.46), l'inverse de la pente de cet histogramme donnerait l'espacement moyen des niveaux $\langle D_0 \rangle$.

L'espacement moyen de niveau $\langle D_0 \rangle$ est donc déterminé par la pente de l'histogramme en dessous de 1500 eV où 123 résonances avec $\ell = 0$ ont été identifiées. L'incertitude sur la valeur de $\langle D_0 \rangle$ étant déterminée par l'équation (II.50), on obtient :

$$\langle D_0 \rangle = 11,76 \pm 0,05 \text{ eV} \quad (\text{VII.29})$$

Notons cependant que la valeur précédente ne tient pas compte des résonances manquées. Afin d'en tenir compte, il est préférable de se référer à la loi de distribution de Porter et Thomas sur la largeur neutronique réduite, dont l'analyse vient d'être présentée. En dessous de 1500 eV, le nombre de résonance pour $\ell = 0$, N_e , estimé étant 136 ± 2 on en déduit que l'espacement moyen des résonances, corrigé des résonances manquantes est :

$$\langle D_0 \rangle = \frac{1490,91 - 5,16}{(136 - 1) \pm 2} = 11,0 \pm 0,2 \text{ eV} \quad (\text{VII.30})$$

Cette valeur est en excellent accord avec $10,92 \pm 0,47$ donnée par Mughabghab [33].

VII.4.5 Distribution des espacements

Une méthode supplémentaire pour obtenir l'espacement moyen est d'utiliser la loi de distribution des espacements. La distribution expérimentale des espacements pour l'ensemble des résonances est comparée à la loi de Wigner correspondante est montrée sur la figure VII.17.

La valeur trouvée par ajustement sur nos données est : $\langle D_0 \rangle = 11,7 \pm 0,9$ eV.

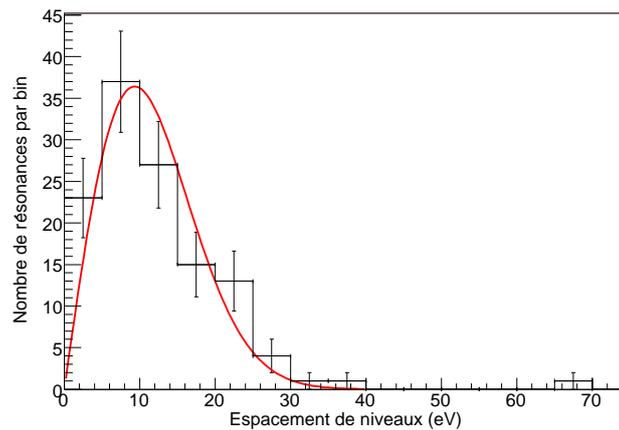


FIG. VII.17 – Distribution expérimentale des espacements D comparée à la distribution théorique de Wigner calculée pour $\langle D \rangle = 11,7 \pm 0,9$ eV.

Les distributions observées ont tendance à être plus larges. Si un niveau manque entre deux niveaux observés, l'espacement observé est plus grand, et deux espacements plus petits ne sont alors pas observés. Toutefois cette valeur est compatible avec la valeur trouvée au paragraphe précédent, mais avec une incertitude plus importante ici.

VII.4.6 Fonction densité d'onde s

La fonction densité pour les ondes s est donnée par :

$$S_0 = \frac{\langle \Gamma_n^0 \rangle}{\langle D \rangle} = \frac{1}{\Delta E} \sum g \Gamma_n^0 \quad (\text{VII.31})$$

Avec

ΔE , intervalle d'énergie.

\sum , somme sur les résonances identifiées dans l'intervalle ΔE .

$\langle D \rangle$, espacement moyen.

S_0 est la pente de l'histogramme de la valeur cumulée de $g \Gamma_n^0$ en fonction de l'énergie.

La fonction densité n'est pas grandement affectée par les niveaux manquants, la méthode d'analyse utilisée conservant l'aire : si une seule résonance est identifiée alors que plusieurs sont mélangées, l'aire de cette résonance est pratiquement la somme des aires des résonances superposées.

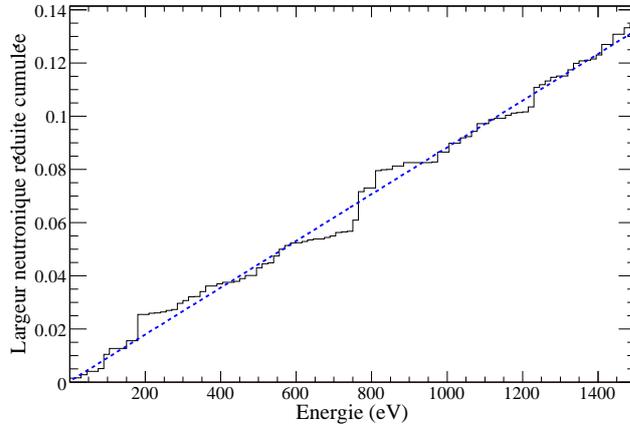


FIG. VII.18 – Histogramme de la valeur cumulée de $g\Gamma_n^0$ en fonction des énergies inférieures à 1500 eV, comparée à la droite ajustée.

L'histogramme de fonction densité S_0 est représenté sur la figure VII.18. La fonction densité trouvée est :

$$S_0 = (0,88 \pm 0,03) \cdot 10^{-4} \quad (\text{VII.32})$$

Cette valeur est compatible avec Mughabghab [33]. Un ajustement effectué par ECIS [141] dans le domaine non résolu donne une valeur de $0,96 \cdot 10^{-4}$ [16].

VII.5 Détermination de l'incertitude sur les paramètres de résonance

A la barre d'erreurs statistique donnée par SAMMY sur chaque paramètre ajusté doivent être ajoutées d'autres sources d'incertitudes.

VII.5.1 Incertitude sur la distance de vol

La longueur de vol a été déterminée avec les résonances standards de l'or. La précision avec laquelle l'énergie de ces résonances est donnée par l'incertitude sur la distance de vol $L = 194,89$ m valant : $\Delta L = 12$ cm.

De l'équation (III.2), il vient directement :

$$\Delta E = \frac{2E}{L} \cdot \Delta L \quad (\text{VII.33})$$

soit

$$\frac{\Delta E}{E} \sim 0,13\% \quad (\text{VII.34})$$

avec ΔE , l'incertitude sur l'énergie provenant de l'incertitude sur la distance de vol.

Cette incertitude influe uniquement sur l'énergie des résonances. Il faut donc rajouter une incertitude systématique de 0.1% sur l'énergie des résonances déterminées par SAMMY.

VII.5.2 Incertitude sur la largeur radiative moyenne

La largeur radiative de la majorité des résonances, surtout au delà de 200 eV, a été fixée à 38,2 meV, valeur de la largeur radiative moyenne.

Or celle-ci, comme nous l'avons vu dans la section VII.4.1, vaut $\langle \Gamma_\gamma \rangle = 38,2 \pm 1,5$ meV.

Afin de tenir compte de cette incertitude, l'analyse des résonances est à nouveau effectuée en fixant la largeur radiative des résonances à $\langle \Gamma_\gamma \rangle = 38,7$ et $\langle \Gamma_\gamma \rangle = 35,7$ meV.

La moitié de l'écart, entre ces deux nouveaux ajustements, sur l'énergie et la moitié neutronique de chacune des résonances est alors considéré comme l'incertitude propagée sur ces paramètres.

VII.5.3 Incertitude sur la résolution

La fonction de résolution, incluse dans SAMMY, a été déterminée au cours de la campagne des mesures de capture avec le C_6D_6 en 2002. En 2004, nous avons utilisé le calorimètre donc ici la contribution du système de détection à la résolution a été changé.

En plus, pour déterminer la fonction de résolution une modélisation très détaillée de l'installation a été établie entre autre les deux collimateurs. Mais dans nos mesures, la longueur du deuxième collimateur a également été changé.

De plus toutes les simulations ont été effectuées en supposant une épaisseur du modérateur de 5 cm, alors qui s'est finalement avéré que cette épaisseur était de 6 cm.

Des simulations sont actuellement en cours pour tenir compte de ces modifications. L'incertitude sur la résolution n'a donc pas encore été estimée.

VII.5.4 Incertitude sur le flux de neutrons

L'évaluation de l'incertitude effectuée sur le flux de neutrons n'a pas été évidente. Cependant, dans la campagne des mesures de 2002, il a été adopté une erreur de 2%, basée sur la comparaison de deux mesures indépendantes (PTB et SiMON). Cette étude a donné un écart maximal relative de 2% autour de 1 keV [57].

VII.5.5 Incertitude provenant du niveau du bruit de fond

Le bruit de fond a été déterminé à l'aide d'une méthode inédite. Cette méthode a montré son efficacité en analysant les mesures de la réaction $^{233}\text{U}(n,\gamma)$. Elle nous permet de discriminer deux rendements à la fois le premier est celui de capture et l'autre celui de fission.

Il est possible d'attribuer qualitativement une incertitude sur la soustraction de bruit de fond ΔB de 3% dans la plupart des gammes en énergie. Néanmoins des études complémentaires doivent encore être menées pour une estimation quantitative de cette incertitude.

VII.5.6 Incertitude sur l'épaisseur de l'échantillon

L'épaisseur de l'échantillon nous pose problème dans deux étapes de notre analyse. Premièrement, l'échantillon en réalité, comme il est présenté dans le chapitre IV, est composé de plusieurs couches de Ti-Al-U₃O₈, mais a été modélisé dans SAMMY comme un mélange homogène de toutes les composantes dans un diamètre de 10 mm. Donc la modélisation, dans SAMMY, de l'échantillon est imprécise.

Deuxièmement, en modifiant la répartition de la masse donnée de ^{234}U et de l'oxygène de 8 à 10% et en laissant les diamètres de Ti et Al tels quels, nous avons pu reproduire l'évaluation de ENDF/B-VI.8 dans le domaine thermique.

Nous pensons qu'une mesure complémentaire pour déterminer la distribution spatiale de matière dans l'échantillon est indispensable afin de s'affranchir de cette incertitude qui est l'ordre de 10%.

VII.6 Comparaison des résultats

Comme nous l'avons déjà mentionné dans le premier chapitre, Il n'existe qu'un seul jeu de données accessible concernant la mesure de capture neutronique du ^{234}U dans le domaine des résonances, c'est la mesure effectuée par Muradyan *et al.* [24]. Ces données sont moyennées sur une grande plage en énergie (3 bins/decade) et présentées à partir de 4,65 eV. Nous allons aussi nous positionner par rapport aux données évaluées de deux principales bibliothèques, à savoir ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3, JEFF3.1 étant identique à cette dernière dans le domaine des résonances. Pour le cas de ENDF, les valeurs de section efficace de capture neutronique répertoriées proviennent de la mesure de transmission de James *et al.* [140]. JENDL se base pour sa part sur la compilation de Mughabghab. Il existe quelques différences quant aux résultats obtenus avec ENDF ou avec JENDL pour la section efficace $\sigma_{(n,\gamma)}$. La différence principale entre les deux bibliothèques étant le choix de la largeur radiative (voir la figure VII.19).

Afin d'évaluer l'impact de nos données nous avons effectué tout d'abord une comparaison sur des valeurs intégrales, à partir de la section efficace déduite de l'analyse de nos données grâce à SAMMY.

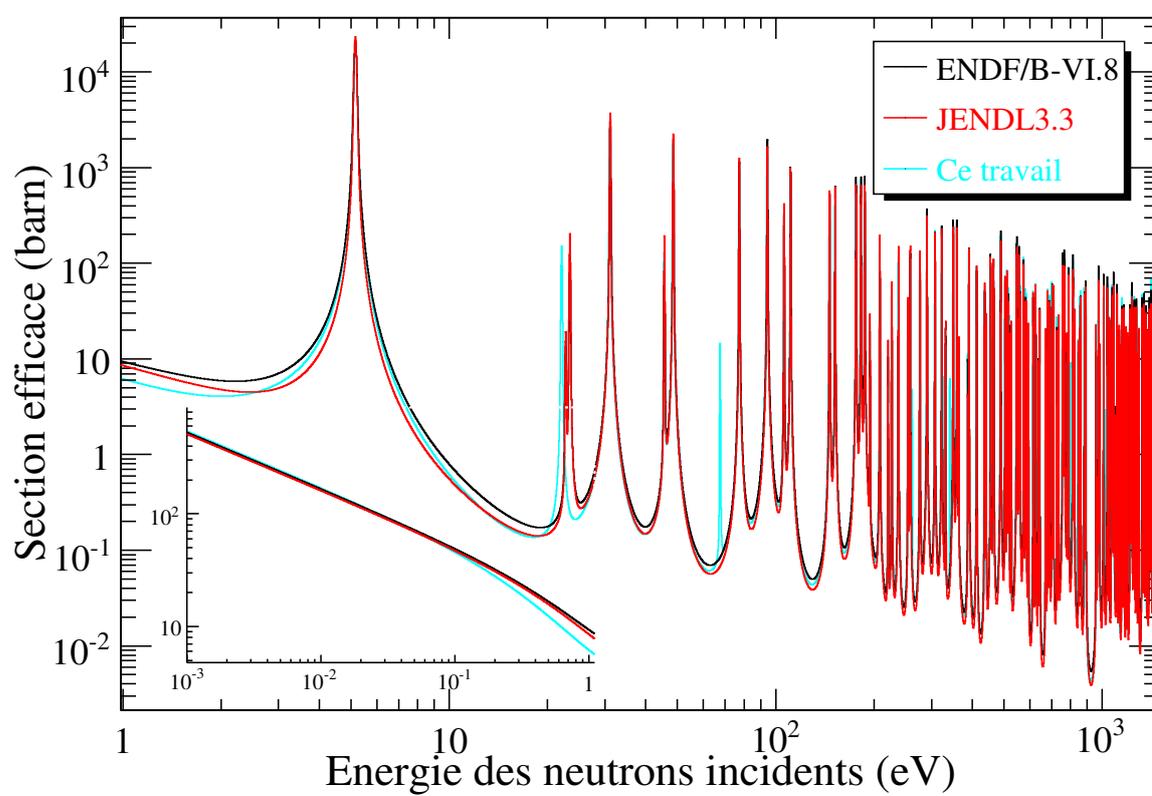


FIG. VII.19 – Comparaison de notre section efficace de capture avec les bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 (JEFF3.1)

Le résultat de cette comparaison de la région thermique est reporté en premier lieu dans le tableau VII.5.

TAB. VII.5 – Comparaison de nos données avec les bibliothèques pour la section efficace moyenne dans un spectre thermique, $\langle\sigma_c\rangle_{therm}$, et pour l'intégrale de résonance.

	Nos données	ENDF/B-VI.8	JENDL3.3
$\langle\sigma_c\rangle_{therm}$ (b)	89.6	90.0	87.0
intégrale de résonance (b)	603	654	626

La première ligne présente la valeur moyenne maxwellienne à l'énergie thermique, définie comme suit :

$$\bar{\sigma}_c = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \sigma_c(E) \frac{E}{E_0} e^{-E/E_0} dE}{\int_{E_1}^{E_2} \frac{E}{E_0} e^{-E/E_0} dE} \quad (\text{VII.35})$$

avec $E_0 = 0,0253$ eV, $E_1 = 10^{-5}$ eV et $E_2 = 3$ eV.

Notre normalisation étant basé sur ENDF. Nous retrouvons évidemment la même valeur que ENDF. Un écart de 3% est observé entre ENDF et JENDL provenant d'un choix différent pour le point thermique.

La deuxième ligne présente l'intégrale de résonance donnée par :

$$I_c = \int_{E_3}^{E_4} \sigma_c(E) \frac{dE}{E} \quad (\text{VII.36})$$

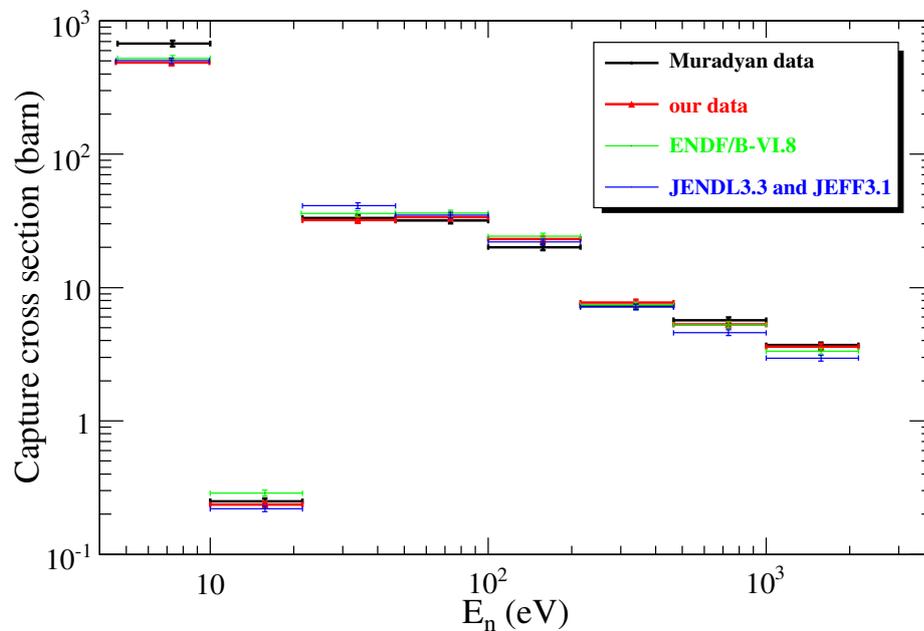
avec $E_3 = 0,5$ eV et $E_4 = 1500$ eV.

Cette intégrale est complètement dominé par la première résonance et les écarts observés sont le reflet des écarts trouvés pour les paramètres de cette résonance.

Le résultat de la comparaison avec Muradyan dans la région des résonances résolues est illustré sur la figure VII.20 et les valeurs correspondantes données dans le tableau VII.6. Si l'on admet une incertitude de 5% sur ces valeurs, on en conclu alors à un très bon accord entre ces données sauf pour la région correspondant à la première résonance. Au delà de quelques centaines d'eV, JENDL a tendance à sous-estimer systématiquement la section efficace.

TAB. VII.6 – Comparaison de nos données avec celles de Muradyan *et al.* [24] et des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 (JEFF3.1)

Energie (eV)	section efficace moyenne (barn)			
	Muradyan	nos données	ENDF/B-VI.8	JENDL3.3
[4,65 ; 10]	676	486	525	500
[10 ; 21,5]	0.25	0.236	0.288	0.220
[21,5 ; 46,5]	33.3	32.1	35.2	41.1
[46,5 ; 100]	31.8	33.6	36.2	34.9
[100 ; 215]	20.1	23.2	24.3	22.0
[215 ; 465]	7.3	7.72	7.40	7.13
[465 ; 1000]	5.7	5.29	5.28	4.59
[1000 ; 2150]	3.7	3.59	3.33	2.96

FIG. VII.20 – Comparaison de nos données avec celles de Muradyan *et al.* [24] et des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 (JEFF3.1)

Conclusion et perspectives

L'objectif de cette étude est de déterminer la section efficace de capture neutronique de ^{234}U . L'installation expérimentale n_TOF, située au CERN, a été mise en oeuvre, entre autre dans cette optique. Grâce à ces caractéristiques uniques dans le monde, une bonne résolution en énergie de neutrons et un haut flux instantané, la mesure de noyaux radioactifs tels que le ^{234}U est facilitée.

Le dispositif expérimental est constitué d'une cible de spallation en plomb, heurtée par un faisceau de protons de 20 GeV/c. La réaction de spallation engendre des neutrons d'une gamme en énergie élevée, modérés par de l'eau déminéralisée entourant la cible. Enfin, le faisceau de neutrons est obtenu à partir d'un système de collimation, placé entre la cible et l'aire expérimentale. Le principe de ce type de mesure est basé sur la méthode du temps de vol.

La mesure de la section efficace de capture neutronique de ^{234}U a été effectuée, jusqu'au domaine thermique, lors de la première campagne de mesure avec un calorimètre à absorption totale consistant en un détecteur 4π de BaF_2 composé de 40 cristaux hexagonaux et pentagonaux formant une coquille sphérique de 10 cm de rayon intérieur pour une épaisseur de 15 cm.

L'étape suivante du travail a consisté à déterminer l'efficacité de détection d'une cascade de rayonnements, qui est très difficile à mesurer expérimentalement. Le recours aux simulations Monte-Carlo, à partir du code GEANT4, nous a permis de déterminer cette efficacité et de la valider.

L'extraction et la réduction des données issues de la mesure, effectuée en 2004, ont conduit à l'obtention du rendement de capture de ^{234}U . La correction des effets expérimentaux sur ces données a consisté à la correction de temps mort et la soustraction du bruit de fond. La validation de cette soustraction de bruit de fond a été effectuée en appliquant la même procédure à des données prises lors de la mesure avec un échantillon de ^{233}U et a permis de discriminer entre capture et fission.

La détermination de la section efficace de capture neutronique de ^{234}U dans le domaine des résonances résolues a ensuite été entreprise à partir de l'ajustement des paramètres de résonances par le biais du code SAMMY. Il est à noter que la normalisation du taux de capture neutronique de ^{234}U a été obtenue grâce à l'ajustement de nos données dans la région thermique sur la bibliothèque ENDF/B-VI.8, qui a une très faible incertitude, moins de 3%, dans cette région.

Un rendement de capture a été extrait de 0,03 eV à 1,5 keV. De nouveaux paramètres ont été déterminés pour le domaine thermique. Nous avons identifié 123 résonances et fourni les paramètres de résonances entre 0,03 et 1500 eV : leur énergie, largeur neutronique ont été extraites par ajustement avec SAMMY. La largeur radiative moyenne $\langle \Gamma_\gamma \rangle$ obtenu de $38,2 \pm 1,5$ meV est en accord satisfaisant avec James *et al.* [140]. Nous avons déterminé l'espacement moyen $\langle D_0 \rangle$ par diverse méthodes. En tenant compte des résonances manquantes la valeur trouvée, $11,0 \pm 0,2$ eV est en excellent accord avec celle donnée par Mughabghab [33]. Cependant l'estimation des erreurs systématiques peuvent être améliorer :

- réévaluer la distribution en masse d'uranium et d'oxygène présente dans l'échantillon, en fonction des résultats qui seront fournis par le laboratoire IPPE,
- vérifier expérimentalement les hypothèses formulées sur l'origine du bruit de fond,
- extraire et comparer un rendement de capture avec une méthodologie différente (une autre méthode d'extraction du bruit de fond, un autre critère de sélection des événements, ...),
- redéterminer la résolution expérimentale, compte tenu des nouveaux paramètres de l'installation n_TOF,
- étudier l'effet Doppler nous donnerait une idée sur la dispersion des largeurs radiatives. Nous pourrions donc déterminer la largeur radiative moyenne avec plus de précision,
- redéterminer le profil de faisceau avec le détecteur MicroMegas avec le nouveau collimateur.

De plus l'étude de ces données pourrait être étendue au delà de la zone des résonances.

Une utilisation combinée des codes de simulations Monte Carlo GEANT4 et MCNP pourrait permettre de mieux comprendre le réponse du TAC aux photons et aux neutrons. Une étude de l'effet de la diffusion multiple pourrait se faire avec ces deux codes. Cela permettrait notamment de faire une étude approfondie pour abaisser ou déporter la masse du canning à l'extérieur du TAC pour les échantillons radioactifs, qui nous permettrait de réduire le bruit de fond des neutrons diffusés par le titane qui devient très gênant au delà de 2 keV. Pour les échantillons fissiles, il serait également très intéressant de pouvoir effectuer, au moyen de cibles actives, des mesures simultanées de capture et de fission.

Une amélioration possible de l'installation n_TOF réside dans la réduction du bruit de fond des photons issus du faisceau (utilisation d'un modérateur de D₂O ou de H₂O chargée en ¹⁰B). Dans ce cas, le niveau de bruit serait fortement atténué surtout à haute énergie. Par contre cette alternative affecterait la forme de flux de neutrons, donc demanderait de nouvelles mesures et simulations du flux et de la résolution. Une base à 20 m permettrait également d'effectuer des mesures avec des échantillons disponibles uniquement en très faible quantité ou bien extrêmement radioactif.

On pourrait également songer à une amélioration du système d'acquisition de données. Une suppression de zéro sur la carte d'acquisition permettrait une optimisa-

tion du débit d'acquisition de données. Cela pourrait également permettre d'augmenter la profondeur des codeurs de 8 à 10 bits, diminuant ainsi grandement le problème des signaux saturés faute d'une gamme dynamique trop faible.

Pour finir il faudrait que les résultats de notre mesure soit rapidement pris en compte dans les bases de données, afin de pouvoir contribuer à améliorer les études de scénario et de sensibilités qui ont été à l'origine de cette mesure.

Annexes

Annexe A

Les calibrations du Calorimètre

Dans cette partie nous présentons quelques résultats de calibration en énergie A.1 et en temps A.2.

TAB. A.1: Coefficients de calibration en énergie de chacun des quarante détecteurs pris du run N° 7257 avec deux sources radioactives mises ensemble de ^{88}Y et ^{137}Cs .

Détecteur	p_0 (keV)	p_1 (keV/canal)
BaF ₂ N° 01	-8,63	33,98
BaF ₂ N° 02	39,93	31,07
BaF ₂ N° 03	9,04	34,22
BaF ₂ N° 04	1,89	32,83
BaF ₂ N° 05	11,86	35,34
BaF ₂ N° 06	34,11	33,83
BaF ₂ N° 07	13,90	38,21
BaF ₂ N° 08	15,05	33,50
BaF ₂ N° 09	10,20	35,49
BaF ₂ N° 10	21,50	36,99
BaF ₂ N° 11	-2,98	39,82
BaF ₂ N° 12	28,41	35,09
BaF ₂ N° 13	-4,25	37,54
BaF ₂ N° 14	16,69	38,13
BaF ₂ N° 15	5,86	37,61
BaF ₂ N° 16	-1,95	37,75
BaF ₂ N° 17	18,35	34,32
BaF ₂ N° 18	7,53	32,41
BaF ₂ N° 19	31,80	38,52

TAB. A.1: continuation

Détecteur	p_0 (keV)	p_1 (keV/canal)
BaF ₂ N° 20	22,23	33,97
BaF ₂ N° 21	-2,40	31,01
BaF ₂ N° 22	0,94	32,75
BaF ₂ N° 23	9,54	34,30
BaF ₂ N° 24	0,57	31,85
BaF ₂ N° 25	20,97	35,01
BaF ₂ N° 26	15,94	37,22
BaF ₂ N° 27	16,12	33,96
BaF ₂ N° 28	20,00	33,64
BaF ₂ N° 29	37,25	33,66
BaF ₂ N° 30	10,11	33,36
BaF ₂ N° 31	25,74	34,62
BaF ₂ N° 32	13,95	38,03
BaF ₂ N° 33	14,65	34,03
BaF ₂ N° 34	2,94	36,81
BaF ₂ N° 35	35,63	35,83
BaF ₂ N° 36	5,70	40,91
BaF ₂ N° 37	11,71	35,33
BaF ₂ N° 38	17,86	33,57
BaF ₂ N° 39	27,11	35,03
BaF ₂ N° 40	35,47	35,73

TAB. A.2: Coefficients de calibration en temps de chacun des quarante détecteurs pris d'un run de calibration d'une source radioactive multi-gammas nécessaire pour avoir la coïncidence (dans ce cas c'est le ⁶⁰Co).

Détecteur	p_0 (ns)	$p_1 \times 10^6$ (sans unité)
BaF ₂ N° 01	-3,0	-0,90
BaF ₂ N° 02	-3,2	-0,90
BaF ₂ N° 03	-5,7	-0,90
BaF ₂ N° 04	-6,3	-0,60
BaF ₂ N° 05	-6,6	-0,61

TAB. A.2: continuation

Détecteur	p_0 (ns)	$p_1 \times 10^{06}$ (sans unité)
BaF ₂ N° 06	-4,7	1,27
BaF ₂ N° 07	-3,4	1,51
BaF ₂ N° 08	-8,6	-1,50
BaF ₂ N° 09	-6,6	-0,53
BaF ₂ N° 10	-8,3	-0,54
BaF ₂ N° 11	-7,5	-0,54
BaF ₂ N° 12	-6,1	-0,53
BaF ₂ N° 13	-2,1	0,00
BaF₂ N° 14	0,0	0,00
BaF ₂ N° 15	-1,3	0,00
BaF ₂ N° 16	-7,5	-0,30
BaF ₂ N° 17	-7,7	-0,29
BaF ₂ N° 18	-6,7	-0,29
BaF ₂ N° 19	-6,1	-0,29
BaF ₂ N° 20	-4,8	-0,90
BaF ₂ N° 21	-7,4	-0,89
BaF ₂ N° 22	-7,2	-0,89
BaF ₂ N° 23	-3,2	-0,57
BaF ₂ N° 24	-7,8	-0,57
BaF ₂ N° 25	-5,5	-0,57
BaF ₂ N° 26	-3,7	-0,57
BaF ₂ N° 27	-8,6	-1,25
BaF ₂ N° 28	-5,3	-1,24
BaF ₂ N° 29	-6,7	-1,25
BaF ₂ N° 30	-9,9	0,01
BaF ₂ N° 31	-9,5	0,02
BaF ₂ N° 32	-9,4	0,02
BaF ₂ N° 33	-7,9	0,01
BaF ₂ N° 34	-4,1	-0,76
BaF ₂ N° 35	-6,7	-0,76
BaF ₂ N° 36	-1,3	-0,76
BaF ₂ N° 37	-6,4	-0,83
BaF ₂ N° 38	-8,3	-0,83
BaF ₂ N° 39	-6,2	-0,83

TAB. A.2: continuation

Détecteur	p_0 (ns)	$p_1 \times 10^{06}$ (sans unité)
BaF ₂ N° 40	-7,3	-0,16

Annexe B

Utilisation du code Monte-Carlo MCNP

B.1 Le code de simulation MCNP

MCNP (Monte Carlo N-Particles) est un code de transport Monte Carlo développé à Los Alamos National Laboratory par l'équipe de la division des Sciences Physiques Appliquées (X Division) [142]. La première version MCNP1A date d'août 1977.

La gamme d'énergie de neutron pris en compte dans les simulations avec le code utilisé est compris entre 10^{-5} eV et 20 MeV pour la plupart des isotopes et jusqu'à 150 MeV pour d'autres versions (MCNPX [143] avec laquelle nous avons travaillé, MCNP5) tandis que pour les photons il est compris entre 1 keV et 100 GeV et enfin pour les électrons entre 1 keV et 1 GeV (MCNP5).

Une fois que les paramètres liés à la géométrie du système physique et la définition des matériaux sont entrés, on doit choisir le mode de transport (mode N pour les neutrons, mode P pour les photons et mode E pour les électrons), ainsi que les réponses désirées (calcul de flux, dépôt d'énergie etc.). Il décrit l'historique de chaque particule incidente et des particules créées au cours du transport. Ceci permet d'avoir une description complète des flux de particules dans l'environnement. Plus de détails sont disponibles dans le manuel d'utilisation [142].

B.2 L'ensemble du dispositif expérimental modélisé dans le code MCNP

Les figures B.1, B.2, B.3, B.4 illustrent en détails les différents constituants inclus dans la simulation MCNP :

- 1) La figure B.1 présente une coupe transversale de l'ensemble des constituants du TAC (les modules, absorbeur de neutrons, porte échantillon (ou cible) et le tube de faisceau de neutrons).

- 2) La figure B.2 illustre les composantes de chaque module comme cristal de BaF_2 , le PM, l'électronique et le support de module.
- 3) Sur le figure B.3, on trouve l'emplacement du l'échantillon dans l'absorbeur de neutrons.
- 4) Enfin, la figure B.4 montre en détails la façon de positionner ll'échantillon entre deux plaques mise à l'envers chacun est constitué d'un anneau de fibre de verre et une bande mince de kapton. Pour le support échantillon est fixé au tube de faisceau par l'intermédiaire d'un anneau de serrage.

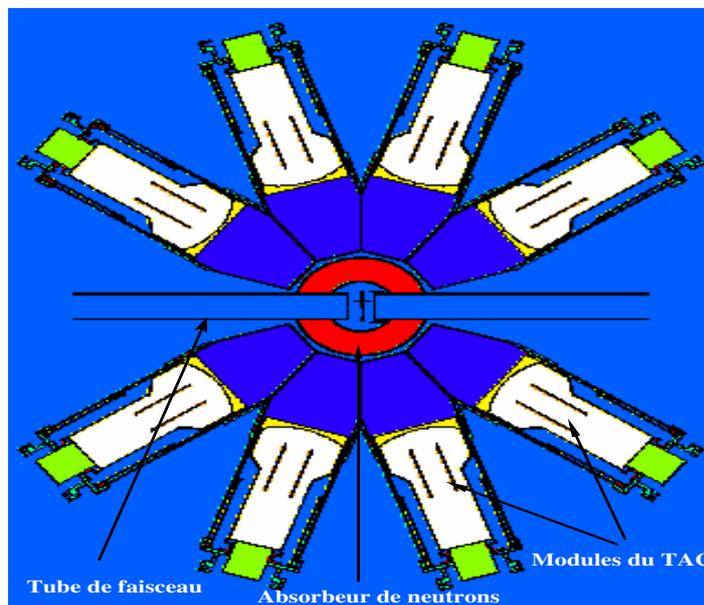


FIG. B.1 – Coupe transversale du dispositif inclus dans la simulation MCNP.

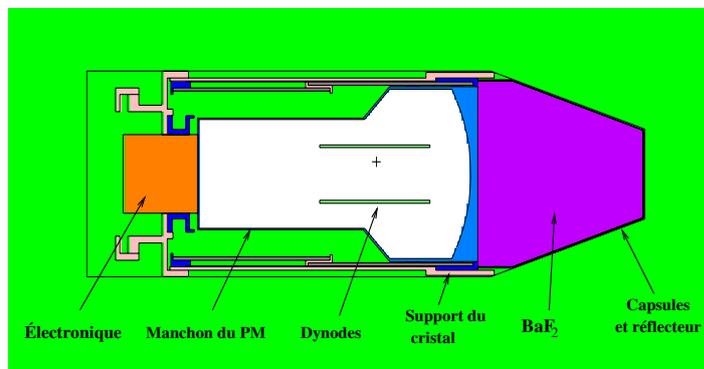


FIG. B.2 – Coupe longitudinale d'un seul module du TAC inclus dans la simulation MCNP.

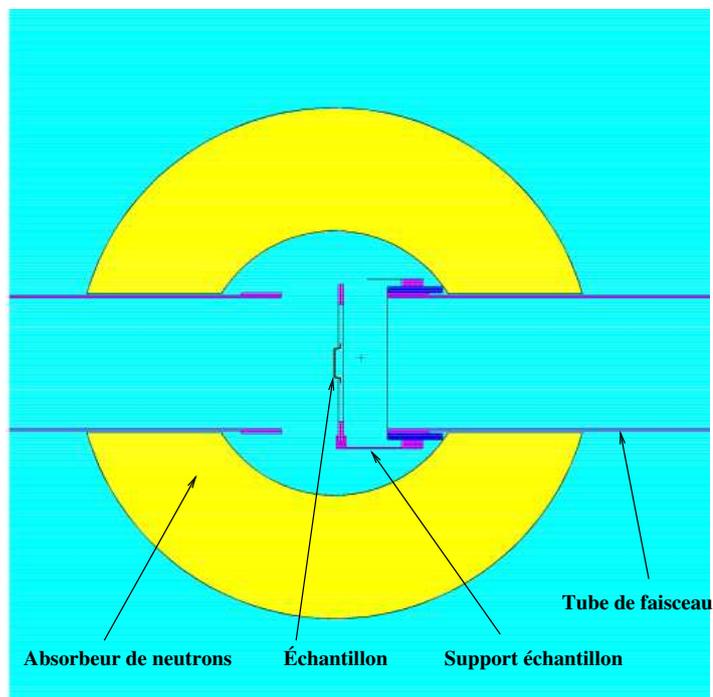


FIG. B.3 – Coupe transversale de l'absorbeur de neutrons du TAC inclus dans la simulation MCNP.

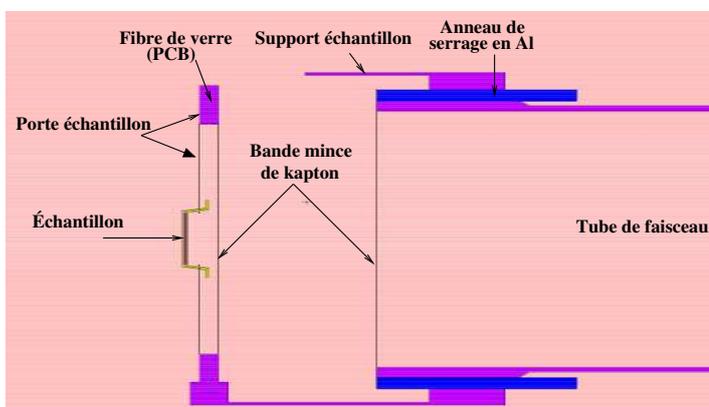


FIG. B.4 – Coupe transversale de la porte cible incluse dans la simulation MCNP.

Annexe C

Les matériaux constituant le TAC

TAB. C.1 – L'abondance naturelle du Titane.

Isotope	Abondance (%)	S_n (MeV)
^{46}Ti	8,25	8,875
^{47}Ti	7,44	11,628
^{48}Ti	73,72	8,143
^{49}Ti	5,41	10,948
^{50}Ti	5,18	6,372

TAB. C.2 – Caractéristiques des matériaux constituant le TAC.

Constituant	Matériel	Densité (g/cm ³)	Composition et Isotopes
Cristal	BaF ₂	4,88 ou 4,89	*****
Capsules et réflecteur	Fibre de carbone (1mm) enrichi ¹⁰ B	2,102 ou 2,012	C(44,7%),O(10,1%), H(4,0%),enrB(41,2%)
	Aluminium	2,6989 ou 2,7	¹³ Al nat (0,05 ou 0,3 mm)
	Téflon	0,94	C ₂ F ₄ (0,1 ou 0,3 mm)
PM	Electronique	0,53	²⁶ Fe nat
	Quartz	2,2	SiO ₂
	Dynodes	2,00	Cu(95%), Be(5%)
	Vide de PM	0,0	*****
Support du cristal	μ -métal	7,86	Fe(15%), Ni(77%), Cu(4%),Mo(4%)
	Scotch	2,60	H ₁₀ C ₁₀ O ₂ N
	Téflon	0,94	C ₂ F ₄
	Aluminium	2,70	¹³ Al nat
	PVC	1,45	H ₃ C ₂ Cl
Tube du faisceau	Alliage d'Al (AW-6060) Anticorodal	2,7	Si(0,6%),Fe(0,5%), Cu(0,1%),Mn(1%), Mg(1,2%),Cr(0,25%), Zn(0,2%),Ti(0,1%), Al(96,05%)
Abs. de neutrons	sel de lithium	1,10	⁶ LiOOC[(CH ₂) ₁₀]COO[⁶ Li]
Capsule d'absorbeur	Aluminium(1mm)	2,70	¹³ Al nat
	Scotch (0,3mm)	2,6	H ₁₀ C ₁₀ O ₂ N
Canning	Echantillon	*****	*****
	Aluminium	2,7	¹³ Al nat (0,15mm)
	Titane	4,54	²² Ti nat (0,2mm)
Serrage	Aluminium	2,7	¹³ Al nat
Support cible	Aluminium	2,7	¹³ Al nat (29g)
Bande mince	Kapton(0,025mm)	1,43	C(50%),Si(10,5%), O(35,5%), B(3%), Na(1%)
Porte cible	Kapton(0,025mm)	1,43	C(56,4%),H(25,7%), Si(5,1%),O(12,8%)
	Fibre de verre PCB (1,1mm)	1,74 ou 2,56	6C(50%),14Si(10,5%), 8O(35,5%),5B(3%), 11Na(1%)
Hall expérimental	air	0,001229	N(78%),Ar(1%), O(21%)

Annexe D

Paramètres de résonances du ^{234}U

TAB. D.1: Paramètres de résonances du ^{234}U issus de l'ajustement par SAMMY. La largeur radiative Γ_γ a été fixée à 38,2 meV. Les incertitudes associées sont uniquement de nature statistique.

Energie (eV)	Incertitude (eV)	Γ_γ (meV)	$d\Gamma_\gamma$ (meV)	Γ_n (meV)	$d\Gamma_n$ (meV)
-0,97	0,01	26,00	1,88	0,851	0,058
5,16	0,0003	38,13	0,07	3,636	0,026
22,10	0,02	38,20	1,50	0,178	0,019
31,10	0,12	40,44	4,06	6,163	0,036
45,57	0,03	38,20	1,50	0,411	0,032
48,50	0,01	45,41	3,56	7,718	0,03
67,59	0,05	38,20	1,50	0,082	0,041
77,30	0,01	45,80	3,96	8,875	0,76
94,19	0,03	34,08	3,36	41,694	0,04
106,02	0,01	46,77	3,97	3,968	0,130
110,97	0,02	51,45	4,78	14,877	0,185
146,10	1,77	41,45	3,80	12,328	0,335
152,02	0,14	48,28	4,77	15,757	2,137
176,05	0,07	38,32	3,57	39,299	2,220
182,34	0,22	36,67	3,52	47,099	2,345
187,33	0,09	34,33	3,24	54,200	0,057
194,08	0,03	38,20	1,50	0,584	0,118
208,22	0,07	38,20	1,50	6,109	0,027
220,52	0,59	38,20	1,50	0,345	0,126
226,39	0,02	38,20	1,50	1,684	0,461

TAB. D.1: continuation

Energie (eV)	Incertitude (eV)	Γ_γ (meV)	$d\Gamma_\gamma$ (meV)	Γ_n (meV)	$d\Gamma_n$ (meV)
237,52	0,22	38,20	1,50	5,750	0,173
253,97	0,31	38,20	1,50	1,682	0,191
258,03	0,16	38,20	1,50	5,928	0,02
261,71	0,03	38,20	1,50	0,194	0,588
276,19	2,32	38,20	1,50	6,805	1,244
290,37	0,52	38,23	1,50	37,200	0,400
307,26	0,17	38,20	1,50	18,497	2,193
322,23	0,32	38,20	1,50	24,093	0,04
325,23	0,88	38,20	1,50	0,369	0,140
331,00	0,23	38,20	1,50	1,286	0,04
341,37	0,16	38,20	1,50	0,361	3,338
349,36	0,58	35,20	2,58	35,902	0,938
358,71	0,61	37,07	3,61	38,341	0,101
363,40	0,24	38,20	1,50	0,962	0,1
387,36	0,34	38,20	1,50	0,834	1,504
390,64	0,36	38,20	1,50	14,796	1,063
412,22	0,15	38,20	1,50	9,492	0,581
435,78	0,27	38,20	1,50	5,325	0,234
440,29	0,17	38,20	1,50	3,148	1,695
454,79	0,12	38,20	1,50	21,600	1,279
463,58	0,07	38,20	1,50	14,787	1,134
464,94	0,15	38,20	1,50	7,951	6,827
488,36	0,11	34,57	2,11	64,028	1,357
503,41	0,90	38,20	1,50	9,632	1,364
510,31	0,06	38,20	1,50	13,566	1,085
515,32	0,47	38,20	1,50	10,044	0,430
518,17	0,09	38,20	1,50	4,298	0,243
523,67	0,02	38,20	1,50	2,152	7,507
546,85	0,09	35,20	1,59	61,740	4,503
555,33	0,29	34,48	2,29	47,279	1,173
560,36	0,37	38,20	1,50	11,581	3,375
573,86	1,52	38,20	1,50	29,946	1,004
581,66	0,21	38,20	1,50	11,466	1,069

TAB. D.1: continuation

Energie (eV)	Incertitude (eV)	Γ_γ (meV)	$d\Gamma_\gamma$ (meV)	Γ_n (meV)	$d\Gamma_n$ (meV)
584,85	0,17	38,20	1,50	8,664	0,352
593,24	0,02	38,20	1,50	3,621	1,110
613,82	0,06	38,20	1,50	9,577	0,1
622,53	0,04	38,20	1,50	1,002	1,405
625,25	0,53	38,20	1,50	12,130	0,176
636,40	0,71	38,20	1,50	1,881	0,773
642,88	0,24	38,20	1,50	6,780	0,355
670,19	0,63	38,20	1,50	3,563	1,362
680,29	0,25	38,20	1,50	12,796	1,215
689,15	0,19	38,20	1,50	11,630	1,841
701,27	0,13	38,20	1,50	18,405	1,595
708,25	0,29	38,20	1,50	16,164	0,794
725,13	0,09	38,20	1,50	7,527	0,541
733,36	0,06	38,20	1,50	5,685	0,827
756,33	0,26	39,64	3,50	90,301	6,670
763,73	0,73	33,71	3,73	264,994	5,889
765,96	0,07	36,09	2,07	69,295	0,331
778,36	0,42	38,20	1,50	3,313	3,592
787,32	0,08	34,05	2,08	38,999	0,230
797,91	0,46	38,20	1,50	2,303	2,568
812,43	0,44	38,20	1,50	25,321	1,970
813,99	0,06	33,02	1,50	179,997	10,053
821,63	0,83	38,20	1,50	10,108	0,470
844,16	0,15	38,20	1,50	4,757	1,721
854,87	0,11	38,20	1,50	16,733	2,154
858,77	0,24	38,20	1,50	20,599	2,845
880,87	0,01	38,20	1,50	23,207	1,238
889,16	0,06	38,20	1,50	33,100	0,76
957,59	0,02	38,20	1,50	7,596	0,302
973,36	0,82	33,58	1,50	159,400	5,396
981,80	0,87	38,20	1,50	3,9566	0,214
1009,21	0,97	40,94	3,97	74,601	0,1
1020,74	0,31	37,20	1,50	0,999	7,524

TAB. D.1: continuation

Energie (eV)	Incertitude (eV)	Γ_γ (meV)	$d\Gamma_\gamma$ (meV)	Γ_n (meV)	$d\Gamma_n$ (meV)
1036,57	0,11	36,25	1,50	64,300	1,316
1049,71	0,60	38,20	1,50	12,995	0,672
1066,19	0,31	38,20	1,50	6,728	5,188
1072,44	0,01	41,87	3,01	42,500	9,525
1082,98	0,69	34,03	2,69	113,802	5,608
1108,33	0,20	39,03	2,20	49,500	0,475
1124,86	0,23	38,20	1,50	4,736	0,992
1127,38	0,67	38,20	1,50	9,905	3,456
1147,83	0,30	38,20	1,50	34,392	0,734
1158,16	0,16	38,20	1,50	7,330	2,487
1165,83	0,32	38,20	1,50	24,911	0,971
1180,37	0,98	38,20	1,50	9,698	0,996
1196,15	0,31	38,20	1,50	9,961	0,679
1209,95	0,50	38,20	1,50	6,792	2,496
1215,62	0,10	38,20	1,50	24,980	2,986
1220,20	0,17	38,20	1,50	29,912	2,433
1229,89	0,05	44,09	3,50	138,005	3,727
1246,38	0,37	38,20	1,50	37,246	4,870
1254,10	0,83	38,20	1,50	52,919	4,781
1271,07	1,72	39,91	1,90	40,399	3,421
1277,47	0,56	38,20	1,50	4,212	0,458
1288,20	0,24	38,20	1,50	4,586	1,237
1294,13	0,56	38,20	1,50	12,086	5,479
1324,45	0,67	38,20	1,50	56,500	2,678
1325,74	0,68	38,20	1,50	26,800	9,360
1341,16	0,55	38,83	1,50	89,416	10,424
1351,43	0,64	38,20	1,50	4,236	3,295
1358,62	0,75	38,29	1,89	38,115	5,616
1361,97	0,28	32,20	1,50	6,164	1,745
1374,71	0,65	38,20	1,50	17,451	5,853
1394,64	0,32	33,73	1,90	71,399	2,462
1408,83	0,23	38,20	2,00	24,632	12,264
1409,72	0,01	38,97	2,50	125,898	3,309

TAB. D.1: continuation

Energie (eV)	Incertitude (eV)	Γ_γ (meV)	$d\Gamma_\gamma$ (meV)	Γ_n (meV)	$d\Gamma_n$ (meV)
1434,36	0,01	38,20	1,50	33,075	11,338
1437,70	0,12	38,33	1,50	109,998	9,610
1466,41	0,27	39,90	1,50	82,806	1,070
1484,00	0,04	38,20	1,50	10,681	0,431
1489,20	1,34	38,18	2,70	41,086	0,42

Bibliographie

- [1] « International Energy Agency, *Key world energy statistics* ». <http://www.iaea.org>, 2005.
- [2] TECHNIP., éd., *L'énergie pour le monde de demain*. World Energy Council, 1993.
- [3] S. BOUDJEMLINE, *Réalisation et caractérisation des cellules photovoltaïques plastiques*. Thèse doctorat, Université d'Angers, 2004.
- [4] « Physique nucléaire et sûreté », in *Clefs du CEA*, vol. 45, CEA.
- [5] C. STÉPHAN et L. TASSAN-GOT, *Energie nucléaire : Quels futur pour les réacteurs nucléaires ?* IPN-Orsay, 2003.
- [6] « Loi n° 91-1381 du 30/12/1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs ». Journal Officiel, 1991.
- [7] « Assemblée nationale ». <http://www.assemblee-nationale.fr>.
- [8] « A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems », rap. tech., Technical Roadmap Report, Sept. 2002.
- [9] S. ANDRIAMONJE *et al.*, « Experimental determination of the energy generated in nuclear cascades by a high energy beam », *Physics Letters*, vol. B348, p. 697, 1995.
- [10] J. DUFOUR, « Introduction à l'école Joliot-Curie », *Annales de Physique*, vol. 25, p. 1–346, Avril 2000.
- [11] INTERNATIONAL WORKING GROUP ON GAS-COOLED REACTORS specialists meeting on gas-cooled reactor safety and licensing aspects report, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1981.
- [12] « L'énergie nucléaire du futur : quelles recherches pour quels objectifs ? », in *Une introduction aux monographies DEN*, CEA, 2006.
- [13] S. DAVID in *Systèmes nucléaires du futur*, (CNRS/IN2P3/Institut de Physique Nucléaire d'Orsay), 2003-2004.
- [14] « JEFF, Bibliothèque de données nucléaires évaluées Européenne ».
- [15] « ENDF/B-VI, Bibliothèque de données nucléaires évaluées Américaine ».
- [16] « JENDL, Bibliothèque de données nucléaires évaluées Japonaise ».
- [17] « BROND, Bibliothèque de données nucléaires évaluées Russe. ».

- [18] « CENDL, Bibliothèque de données nucléaires évaluées Chinoise ».
- [19] « The NEA High Priority Nuclear Data Request List ». <http://www.nea.fr/html/dbdata/hprl/>.
- [20] M. SALVATORES, I. SLESSAREV et A. TCHISTIAKOV, « The transmutation of long-lived fission products by neutron irradiation », *Nucl. Sci. and Eng.*, vol. 130, p. 309–319, 1998.
- [21] C. RUBIA *et al.*, « Sensitivity analysis of neutron cross sections relevant for accelerator driven systems », rap. tech., The 1st Management Report of the n_TOF ND-ADS EC program under contract no. FIKW-CT-2000-00107., 2000.
- [22] G. ALIBERTI, G. PALMIOTTI, M. SALVATORES et C. G. STENBERG, « Impact of nuclear data uncertainties on transmutation of actinides in accelerator-driven assemblies », *Nucl. Sci. and Eng.*, vol. 146, p. 13–50, 2004.
- [23] G. PALMIOTTI et M. SALVATORES, « Proposal for nuclear data covariance matrix », rap. tech., JEFDOC 1063 Rev. 1 January 20th, 2005.
- [24] G. MURADYAN *et al.*, « Measurements of neutron capture cross sections of ^{234}U and ^{236}U and fission cross section of ^{234}U », in *Proceeding of 7th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei (ISINN-7)*, vol. **JINR E3-98-212**, (Dubna), p. 292, May 25-28 1999.
- [25] J. ULLMANN *et al.*, « The detector for advanced neutron capture experiments : A 4π baf₂ detector for neutron capture measurements at lansce », in *Proceeding of Int. Conf. Data for Sci. and Tech. (ND2004) Sante Fe, New Mexico (USA), September 26th - October 1st*, (Santa Fé), 2004.
- [26] A. FODERARO, *The elements of neutron Interaction Theory*. The Maple Press Co., 1971.
- [27] H. TELLIER, *Réactions nucléaires induites par neutrons*. INSTN, 1989.
- [28] J. LYNN, *The theory of neutron resonance reactions*. Oxford University Press, 1968.
- [29] A. LANE et R. THOMAS, « R-matrix theory of nuclear reactions », *Review of Modern Physics*, vol. 30, p. 257, 1958.
- [30] P. REUSS, *Elements de Physique Nucléaire à l'usage du neutronicien*. INSTN, 1987.
- [31] J. CHADWICK *Nature*, vol. 129, p. 312, 1932.
- [32] J. SCHWEIZER, « Neutrons et matériaux : introduction », in *Journal de Physique IV France*, vol. 103, Les Ulis : EDP Sciences, 2003.
- [33] S. MUGHABGHAB, *Atlas of Neutron Resonances*, vol. 1. Elsevier, 5 éd., 2006.
- [34] P. FRÖBRICH et R. LIPPERHEIDE, *Theory of nuclear reactions*. Oxford University Press, 1996.

- [35] E. WIGNER et L. EISENBUD, « Higher angular momenta and long range interaction in resonance reactions », *Physical Review*, vol. 72, p. 29–41, 1947.
- [36] V. GRESSIER, *Nouvelle détermination expérimentale des paramètres de résonances neutroniques de ^{237}Np en dessous de 500 eV*. Thèse doctorat, Université de Paris XI-Orsay, 1999.
- [37] E. DUPONT, *Mesures à haute résolution et étude de la réaction de diffusion inélastique de neutrons sur le ^{56}Fe* . Thèse doctorat, Université de Provence, 1998.
- [38] C. BRIENNE-RAEPSAET, *Nouvelle détermination expérimentale des paramètres de résonances neutroniques de ^{99}Tc* . Thèse doctorat, Université d'Aix-Marseille I, 1999.
- [39] R. MACFARLANE, « NJOY97, Code System for Producing Pointwise and Multilevel group Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B Data », Rap. tech. PSR-368, LANL, 1997.
- [40] P. RIBON, « CALENDF et les programmes associés », Rap. tech. DMT/94-332, CEA, 1994.
- [41] N. LARSON, « Updated Users Guide for SAMMY : Multilevel R-Matrix Fits to Neutron Data Using Bayes equations », Rap. tech. ORNL/TM-9179/R7/Draft, Oak Ridge National Laboratory, 2006.
- [42] M. MOORE, « Fundamentals and approximations of multilevel resonance theory for reactor physics application », in *Proc. Nuclear theory for applications*, vol. IAEA-SMR-43, (Trieste), 1978.
- [43] F. GUNSING, « Neutron resonance spectroscopy », 2005.
- [44] F. FRÖHNER, « Evaluation and analysis of nuclear resonance data », JEFF Report 18, OECD/NEA, 2000.
- [45] N. LARSON, « Introduction to the Theory and Analysis of Resolved (and Unresolved) Neutron Resonances via SAMMY », Rap. tech. ORNL/M-6576, Oak Ridge National Laboratory, 1998.
- [46] C. M. REICH et M. MOORE, « Multilevel formula for the fission process », *Physical Review*, vol. 111, p. 929–933, 1958.
- [47] P. KAPUR et R. PEIERLS *Proc. Roy. Soc.*, vol. A166, p. 277, 1938.
- [48] D. ADLER et F. ADLER, « Uniqueness of r-matrix parameters in the analysis of low-energy neutron cross sections of fissile nuclei », *Physical Review*, vol. C6, p. 986–1001, 1972.
- [49] R. HWANG *Nucl. Sci. and Eng.*, vol. 52, p. 157, 1973.
- [50] A. LUK'YANOV et N. YANEVA, « Multilevel parametrization of resonance neutron cross sections », *Phys. Part. Nucl.*, vol. 28, p. 331–347, 1997.
- [51] A. GILBERT et A. CAMERON, « A composite nuclear-level density formula with shell corrections », *Canadian Journal of Physics*, vol. 43, p. 1446, 1965.

- [52] E. WIGNER in *International conference on Neutron Physics by Time of Flight*, vol. ORNL report, ORNL-2309, (Gatlinburg, Tennessee), 1957.
- [53] C. PORTER et R. THOMAS, « Fluctuations of nuclear reactions widths », *Physical Review*, vol. 104, p. 483, 1956.
- [54] G. AERTS, *Mesure de la section efficace de capture neutronique du ^{232}Th à n_TOF au CERN*. Thèse doctorat, Université Paris XI-Orsay, 2005.
- [55] J. HARVEY et D. HUGHES, « Spacing of nuclear energy levels », *Physical Review*, vol. 109, p. 471, 1958.
- [56] THE n_TOF COLLABORATION Rap. tech. CERN/INTC 2000-018, CERN, Genève, 2000.
- [57] THE n_TOF COLLABORATION, « Cern n_TOF Facility », Performance Report CERN/INTC 2002-037, CERN, Genève, 2002.
- [58] C. RUBBIA *et al.*, « A high Resolution Spallation driven Facility at the CERN-PS to measure Neutron Cross Sections in the Interval from 1 eV to 250 MeV », CERN CERN-LHC-98-02 (EET), CERN, Genève, 1998.
- [59] THE TARC COLLABORATION, « The TARC experiment (PS211) neutron driven nuclear transmutation by adiabatic resonance crossing », CERN 99-11, CERN, Genève, 1999.
- [60] A. ABANADES *et al.*, « Results from the TARC experiment : spallation neutron phenomenology in lead and neutron-driven nuclear transmutation by adiabatic resonance crossing », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A478, p. 577–730, 2002.
- [61] H. ARNOULD *et al.*, « Experimental verification of neutron phenomenology in lead and transmutation by adiabatic resonance crossing in accelerator driven systems », *Phys. Lett.*, vol. B458, p. 167, 1999.
- [62] V. LACOSTE, *Transmutation de produits de fission à vie longue dans un grand massif de plomb*. Thèse doctorat, Université de Bordeaux 1, 1998.
- [63] V. VLACHOUDIS, *Taux de Capture et de Fission du ^{232}Th , ^{238}U , ^{237}Np et ^{239}Pu par des neutrons de Spallation dans un Grand Massif de Plomb*. Thèse doctorat, Université de Bordeaux 1, 2000.
- [64] R. CAPPI, M. GIOVANNOZZI et G. MÉTRAL, « The proton beams for the time of flight neutron facility at the CERN-PS », in *Proceeding of 7th European Particle Accelerator Conference*, no. CERN-PS/2000-009, (Vienna, Austria), June 2000.
- [65] Y. KADI *et al.*, « The EAMC Monte Carlo Code Package », in *the 5th Meeting on Shielding Aspects of Accelerators, Targets and Irradiation Facilities (SATIF5)*, (Paris), 18-21 July 2000.
- [66] A. FERRARI et P. SALA, « Intermediate and High Energy Physics Models in FLUKA : Improvements, Benchmarks and Applications », in *Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, NDST-97, ICTP*, (Miramare-Trieste, Italy), 19-27 May 1997.

- [67] C. BORCEA *et al.*, « Results from the commissioning of the n_TOF spallation neutron source at CERN », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A513, p. 295, 2003.
- [68] C. COCEVA, M. MAGNANI, A. MENGONI et M. FRISONI, « A study of the relative merit of various target and moderator sizes ». n_TOF Monte-Carlo working group note, march 2000.
- [69] THE n_TOF COLLABORATION n_TOF Technical design report CERN/INTC 2000-004, CERN, Genève, 2000.
- [70] A. FASSO *et al.*, « Nuclear data standards for nuclear measurements », Rap. tech. NEANDC-311 "U", INDC(SEC)-101, OECD/NEA, 1992.
- [71] J. PANCIN et THE n_TOF COLLABORATION, « Measurement of the n_TOF beam profile with a micromegas detector », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A524, p. 102, 2004.
- [72] J. PANCIN, *Détection de neutrons avec un détecteur de type micromégas : de la physique nucléaire à l'imagerie*. Thèse doctorat, Université de Bordeaux I, 2004.
- [73] S. ANDRIAMONJE *et al.*, « The MICROMEGAS neutron detector for CERN n_TOF », in *7th International Conference on Advanced Technology and Particle Physics (ICATPP)*, October 2001.
- [74] S. MARRONE *et al.*, « A low background neutron flux monitor for n_TOF facility at CERN », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A517, p. 389, 2004.
- [75] N. COLONNA *et al.*, « The neutron flux from the Si-Monitor in the TOF-02 measurement », note interne, CERN, 2002.
- [76] n_TOF ANALYSIS GROUP, « Bf₃ detector analysis for ²³²Th measurements », note interne, CERN, 2002.
- [77] R. PLAG *et al.*, « An optimized C₆D₆ detector for studies of resonance-dominated (n,γ) cross-sections », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A496, p. 425, 2003.
- [78] S. MARRONE *et al.*, « Pulse shape analysis of liquid scintillators for neutron studies », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A490, p. 299, 2002.
- [79] P. MILAZZO *et al.*, « Measurements of neutron capture cross-sections for ADS-related studies », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. B213, p. 36, 2004.
- [80] S. LUKIÈ, *Mesure de sections efficaces de réactions (n,xn) par spectroscopie γ prompte auprès d'un faisceau à très haut flux instantané*. Thèse doctorat, Université de Strasbourg I, 2004.
- [81] K. WISSHAK *et al.*, « The Karlsruhe 4π Barium Fluoride detector », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A292, p. 595–698, 1990.
- [82] M. HEIL *et al.*, « A 4π BaF₂ detector for (n,γ) cross-section measurements at a spallation neutron source », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A459, p. 229, 2001.
- [83] D. GAYTHER, « International Intercomparison of Fast Neutron Fluence-Rate Measurements Using Fission Chamber Transfer Instrument », *Metrologia*, vol. 27, p. 221, 1990.

- [84] C. PARADELA-DOBARRO, *Measurement of $^{234}\text{U}(n,f)$ with PPAC detectors at n_TOF facility*. Thèse doctorat, Université de Saint Jacques de Compostelle (Espagne), 2005.
- [85] L. FERRANT, *Mesures de sections efficaces de fission induite par neutrons sur des actinides du cycle du thorium à n_TOF*. Thèse doctorat, Université de Paris XI-Orsay, 2005.
- [86] C. STEPHAN *et al.*, « Neutron induced fission cross section measurements », *Journal of Nuclear science and technology, Supplement 2*, vol. 276, 2002.
- [87] L. TASSAN-GOT *et al.*, « Fission of actinides induced by neutrons at n_TOF », *in Int. Conf. Nucl. Data for Sci. and Tech. (ND2004)*, (Santa Fé, New Mexico (USA)), September 2004.
- [88] F. CASAGRANDE, P. CENNINI et X. LI, « The Argon Gas Detectors for the Fission Measurement in FEAT », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A372, p. 307, 1996.
- [89] P. CENNINI *et al.*, « Fission Fragment Detector to be installed at the Measuring Station in the n_TOF Facility », Rap. tech. SL-Note-99-026 EET, CERN, 1999.
- [90] P. CENNINI et V. LACOSTE, « Proposal for a Fission Detector based on the measurement of the ionization produced by the absorption in gas of Fission Fragments », Rap. tech. SL-Note-2000-006 EET, CERN, Genève, 2000.
- [91] THE n_TOF COLLABORATION, « A detailed study of hyperdeformed states of uranium in the $^{234}\text{U}(n,f)$ reaction », Rap. tech. CERN/INTC 2002-022, CERN, Genève, 2002.
- [92] F. CARMINATI *et al.*, « TARC general purpose monte carlo », Rap. tech. CERN-LHC 1996-011 EET, CERN, Genève, 1996.
- [93] A. FASSO *et al.*, « Intermediate Energy Nuclear Data : Models and Codes », *in Proceeding of a specialists meeting*, (Issy Les Moulineaux, France), OECD, 1994.
- [94] P. KOEHLER, « Comparison of white neutron sources for nuclear astrophysics experiments using very small samples », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A460, p. 352, 2001.
- [95] P. KOEHLER, « A determination of energy resolution at LANSCE », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A350, p. 511, 1994.
- [96] C. COCEVA, R. SIMONINI et D. OLSEN, « Calculation of the ORELA neutron moderator spectrum and resolution function », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 211, p. 495, 1983.
- [97] T. POCHE, « Détecteurs nucléaires : Différents types de particules à détecter », *Techniques de l'Ingénieur, Génie Nucléaire*, p. 483, 2006.
- [98] T. POCHE, « Détecteurs nucléaires : Principes physiques de fonctionnement », *Techniques de l'Ingénieur, Génie Nucléaire*, vol. BN 3, p. 480, 2006.
- [99] T. POCHE, « Détecteurs nucléaires : Différentes classes de détecteurs », *Techniques de l'Ingénieur, Génie Nucléaire*, vol. BN 3, p. 481, 2006.

- [100] PHOTONIS, « Photomultiplicateurs », brochure technique, RTC La RadioTechnique-Completec, Paris, 1981.
- [101] M. MOXON et R. RAE in *International Conference on Neutron Time-of-Flight Method*, (Saclay, France), p. 439, 1961.
- [102] E. MACKLIN et J. GIBBONS *Physical Review*, vol. 159, p. 1007, 1967.
- [103] « Kanya ag/sa/ltd. ». <http://www.kanya.ch/>.
- [104] K. KORTH. Am Jägerberg 9, 23 Kiel 17, FRG.
- [105] PHOTONIS, « Product Specification : Photomultiplier tubes : XP4508B ».
- [106] « Acqiris ». <http://www.acqiris.com>.
- [107] « Système Castor du CERN ». <http://castor.web.cern.ch/castor>.
- [108] « ROOT : An Object-Oriented Data Analysis Framework ». <http://root.cern.ch>.
- [109] E. BERTHOUMIEUX, « Preliminary report on BaF₂ Total Absorption Calorimeter test measurement », rap. tech., CEA-Saclay/DAPNIA/SPhN, 2004.
- [110] S. JASTANIAH et P. SELIN, « Digital techniques for n/ γ pulse shape discrimination and capture-gated neutron spectroscopy using liquid scintillators », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A517, p. 202, 2004.
- [111] N. KORNILOV *et al.*, « Neutron spectroscopy with fast waveform digitizer », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A497, p. 467, 2003.
- [112] Q. YUE *et al.*, « Effective dynamic range in measurements with flash analog-to-digital convector », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 511, p. 408, 2003.
- [113] « Institute for Physics and Power Engineering ». <http://www.ippe.obninsk.ru>.
- [114] M. GOTO, *C++ Interpreter - CINT*, vol. ISBN4-789-3085-3. CQ publishing.
- [115] S. BYUN *et al.*, « Efficiency calibration and coincidence summing correction for a 4 π NaI(Tl) detector array », *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. A535, p. 674, 2004.
- [116] R. LINDBERG et G. SANTIN, « GRAS Validation and GEANT4 Electromagnetic Physics Parameters », Rap. tech. www.spennis.oma.be/spennis/workshop/presentations/lindberg.ppt, Space Environment and Effects Section, ESTEC.
- [117] D. HAMILTON, « On directional correlation of successive quanta », *Physical Review*, vol. 58, p. 122, 1940.
- [118] G. GOERTZEL, « Angular correlation of gamma-rays », *Physical Review*, p. 897, 1946.
- [119] C. YANG, « On the angular distribution in nuclear reactions and coincidence measurements », *Physical Review*, vol. 74, p. 764, 1948.
- [120] E. BRADY et M. DEUTCH, « Angular Correlation of Successive Gamma-Rays », *Physical Review*, vol. 78, p. 558, 1950.

- [121] J. TAIN, F. GUNSING et D. CANO-OTT, « Monte carlo generation of capture cascades ». Presentation at 7th n_TOF Meeting, 13-14 July 2000.
- [122] C. DOMINGO-PARDO, *New radioactive neutron capture measurement of ^{207}Pb and ^{209}Bi* . Thèse doctorat, Universidad de València, 2004.
- [123] M. BHAT, « Evaluated nuclear structure data file (ENSDF) », in *Nuclear Data for Science and Technology*, (Berlin), p. 817, Springer, 1992.
- [124] J. KOPECKY *et al.*, « Test of gamma-ray strength functions in nuclear reaction model calculations », *Physical Review*, vol. C41, p. 1941, 1990.
- [125] J. KOPECKY *et al.*, « Observation of the m1 giant resonance by resonance averaging in ^{106}Pd », *Nucl. Phys. A*, vol. 468, p. 285, 1987.
- [126] W. DILG, W. SCHANTL et H. VONACH, « Level Density Parameters for the back-shifted Fermi gas model in the mass range $40 < A < 250$ », *Nucl. Phys. A*, vol. 217, p. 269, 1973.
- [127] T. von EGIDY *et al.*, « Nuclear Level Densities and level spacing distributions : Part II », *Nucl. Phys. A*, vol. 481, p. 189, 1988.
- [128] « Handbook for calculations of nuclear reaction data », Reference Input Parameter Library IAEA-TECDOC, IAEA, 1998.
- [129] J. CADWELL *et al.*, « Giant resonance for the actinide nuclei : Photoneutron and photofission cross sections for ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U and ^{232}Th », *Physical Review*, vol. C21, p. 1215, 1980.
- [130] G. LORUSSO *et al.*, « Time-energy relation of the n_TOF neutron beam : energy standards revisited », *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res.*, vol. A532, p. 622, 2004.
- [131] J. AZEVEDO-LUCAS *et al.*, « Description of the pulse shape analysis routine for the pickup signal and first preliminary results », note interne, CERN, 2002.
- [132] W. LEO, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer Verlag, 1994.
- [133] C. GUERRERO *et al.*, « Status of the data analysis of the n_TOF-2004 (n, γ) cross section measurements of ^{237}Np , ^{240}Pu and ^{243}Am », in *The n_TOF meeting on the status of the data analysis*, (Valencia, Spain), June. 13-14 2005.
- [134] C. COCEVA *et al.*, « On the figure of merit in neutron time-of-flight experiments », *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res.*, vol. A489, p. 346, 2002.
- [135] A. BIGNAMI *et al.*, « Euratom report », 1974.
- [136] C. COCEVA *et al.*, « CAMOT : A Monte Carlo Neutron Transport Code for Simulations of Pulsed Neutron Source. ». Monte-Carlo working group note, 2000.
- [137] A. FASSÓ *et al.* in *Proceeding of 1st Workshop on simulating Accelerator Radiation Environments (SARE1)*, Santa Fé, New Mexico, 1993, (Santa Fé), 1993.

- [138] B. MORETTI, *Molybdenum Neutron Transmission Measurements and the Development of Enhanced Resolution Neutron Target*. Thèse doctorat, Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, New York, 1996.
- [139] D. BERNARD *et al.*, « Actinide Neutron Induced cross sections : Analysis of the OSMOSE LWR-UO₂ experiment in minerve », in *PHYSOR-2006 ANS Topical Meeting on Reactor Physics*, (Vancouver, BC, Canada), 2006.
- [140] G. JAMES *et al.*, « Intermediate structure studies of ²³⁴U cross sections », *Physical Review*, vol. C15, p. 2083, 1977.
- [141] J. RAYNAL, « ECIS code », Rap. tech. IAEA SMR-9/8, IAEA, 1970.
- [142] J. BRIESMEITER, « MCNP-a general monte carlo N-particle transport code », Rap. tech. Version 4B, LA-12625-M, LANL, 1997.
- [143] L. WATERS, « MCNPX User's Manual Version 2.1.5 », Rap. tech. jaUR-99-1995, Los Alamos National Laboratory, New Mexico, 1999.

Table des figures

I.1	Principe de la réaction en chaîne de fissions. Dans un réacteur nucléaire, la réaction en chaîne est contrôlée pour maintenir un rythme de fissions constant [4].	8
I.2	Bilan matière en chargement et après un an de fonctionnement	10
I.3	Principe des ADS (Accelerator Driven System), ou « Réacteurs Hybrides »	12
I.4	La radiotoxicité induite par la production d'un GWth.an par différentes filières de réacteurs [12].	14
I.5	Chaînes de formation et de décroissance des cycles thorium et uranium	15
I.6	Processus d'utilisation des données nucléaires.	17
I.7	Les évaluations les plus récentes de la section efficace de l' ^{234}U . ENDF/B-VI.8 en noir, JENDL-3.3 en rouge et JEFF-3.1 en vert.	19
II.1	Schéma simplifié des niveaux d'énergies dans le noyau composé avec les différents types de niveaux (liés et non liés) et d'échelles en énergie. . .	24
II.2	Schéma de regroupement des différentes sections efficaces neutroniques partielles.	26
II.3	Variation de sections efficaces partielles et totale évaluées, prises de JEFF-3.1 pour l' ^{234}U	27
II.4	Schéma de principe de la théorie de la matrice-R [29]	29
II.5	Rerésentation schématique de la fonction d'onde Ψ_c d'une voie c en fonction de distance de séparation r . On distingue deux régions, dans la région interne ($r < a_c$) la fonction d'onde est description des niveaux de décroissance un noyau composé. Pour la région externe ($r > a_c$) la fonction d'onde est reliée aux fonctions de Bessel. La distance $r = a_c$ est un point de continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée [43]. . . .	32
II.6	Nombre cumulé de résonances avec $\ell = 0$ pour chaque spin de ^{237}Np en fonction de l'énergie. La pente de la droite obtenue par ajustement correspond à $\frac{1}{\langle D \rangle}$ [36].	40
II.7	Distribution expérimentale observée des espacements de ^{232}Th et comparaison à la loi de Wigner calculée pour $\langle D \rangle = 17,2$ eV [54].	42
III.1	Vue générale de l'installation n_TOF du PS à l'aire expérimentale avec un détail sur l'aire expérimentale et sur la cible de spallation [56] et [57].	45

III.2	Ligne de faisceau de protons.	46
III.3	La cible spallation de l'installation n_TOF.	48
III.4	Photo de la cible de spallation avec le système de refroidissement.	48
III.5	La distribution de température dans la cible de plomb dont l'eau à pour vitesse de 6 l/s et une température de 30°C	51
III.6	Tube de faisceau de n_TOF après la cible de spallation (toutes les longueurs sont données à partir du centre de la cible).	52
III.7	Les photos de différentes zones du tube de n_TOF.	53
III.8	Représentation schématique de la succession des signaux intervenant dans la mesure du temps de vol des neutrons à n_TOF, pour chaque impulsion de protons.	57
III.9	Simulation Monte-Carlo de la résolution en énergie à 185 m.	58
III.10	Flux non normalisé de neutron dans (EAR-1) mesuré avec les différentes techniques expérimentales. Une comparaison est présentée avec les simulations Monte Carlo.	60
III.11	Flux de neutron mesuré (en rouge) par les chambres à fission de PTB utilisant l' ²³⁵ U comparé avec celui simulé dans la zone expérimentale (en noir).	60
IV.1	Les différents types de détecteurs.	65
IV.2	Principe général du détecteur à scintillation.	66
IV.3	Schéma de principe du fonctionnement des détecteurs à scintillation.	66
IV.4	La première partie présente le diagramme des bandes d'énergies dans les cristaux inorganiques. La deuxième partie montre la création de niveaux discrets dans la bande interdite par l'incorporation d'impuretés dans le cristal.	67
IV.5	Coupe d'un tube photomultiplicateur, source Photonis [100]	69
IV.6	Le calorimètre d'absorption totale dessiné avec AutoCAD. Il se compose de 40 modules de BaF ₂ formant une coquille sphérique de diamètre intérieur de 20 cm et de 15 cm d'épaisseur.	74
IV.7	L'armature après une installation préliminaire au Van de Graaff de Karlsruhe.	75
IV.8	La structure en nids d'abeilles est montée dans le support externe. Chaque cellule comporte trois boulons pour tenir les modules du détecteur. Noter que chaque cellule de forme pentagonale est au centre entouré par cinq hexagones.	76
IV.9	Forme des deux types de cristaux de BaF ₂ pour le détecteur 4π de n_TOF.	76
IV.10	Prototype des cristaux de BaF ₂ pour le détecteur 4π de n_TOF.	77

IV.11 (gauche) Aperçu d'un module pentagonal. Le cristal à l'intérieur de la capsule en fibre de carbone (jaune) est fixé au support cylindrique du tube de PM. La collerette au fond du support sert à fixé le module dans la sphère en nids d'abeilles (grise). La position du module peut être ajustée par l'intermédiaire de ressorts plats colorés en vert. Le module se termine par le pont diviseur de tension (rose). (Droite) le module hexagonal.	77
IV.12 Courbe de sensibilité spectrale de la photocathode utilisée dans le PM de type XP4508B [105].	79
IV.13 L'assemblage des modules de détecteur. Application de deux couches de réflecteur de teflon de 0,1 mm, de papier d'aluminium formé, et de couverture finale avec la capsule de fibre de carbone chargée par ^{10}B , de montage du support de PM, de PM, et d'un complément avec les feuilles de μ -métal et l'isolateur de Kapton.	80
IV.14 Le diagramme de câblage du nouveau diviseur de tension adopté.	82
IV.15 Le signal bleu et noir montrent la réponse du détecteur pour un événement de muon cosmique avant et après les modifications, respectivement. Avec la nouvelle conception nous ne voyons aucune bosse sur la queue du signal. La ligne rouge montre une courbe exponentielle avec la décroissance en temps du scintillateur.	83
IV.16 Comparaison de la transmission de neutron par une couche épaisse de 5 cm de différents matériaux absorbeurs de neutrons. Comparé à ^6LiH , l'efficacité des sels étudiés de Li (acide caprique et acide dodécaneodioïque) sont moins efficaces (figure gauche) mais montrent une transmission aux rayons γ similaire (figure droite).	84
IV.17 Les cannings en aluminium de 0,5 mm d'épaisseur forment une coquille sphérique autour de l'échantillon. Après avoir été rempli d'absorbeur, les deux modules ont été fermés par un couvercle plat.	85
IV.18 Gauche : Le canning d'Al ouvert avec le matériel d'absorbeur à l'intérieur. Droite : Les modules combinés d'absorbeur avec la place de tube de faisceau de neutron. Toutes les pièces sont soudées.	85
IV.19 Diagramme schématique présentant le déroulement de l'acquisition des données jusqu'à leur réduction.	87
IV.20 Signaux numérisés de BaF_2 mesurés (noir) et la reconstruction correspondante après l'analyse de forme du signal.	89
IV.21 (Gauche) Une photo de l'échantillon de ^{234}U et de son support. (droite) Emplacement de l'échantillon au centre du TAC.	91
IV.22 (Gauche) L'échantillon : 1) Titane, 2) Aluminium, 3) $^{234}\text{U}_3\text{O}_8$. (Droite) Cadre en PCB (fibre de verre : « Printed circuit Board »).	92
V.1 La discrimination de forme des signaux	96
V.2 Spectre en énergie γ (rouge) et α (noir)	96

V.3	Problème de saturation du signal entre 10 keV et 10 MeV.	97
V.4	Spectre d'amplitude du signal lent (rouge) ajusté par un ajustement Gaussien (noir) pour les énergies γ 662 et 898 keV.	99
V.5	Spectres en énergie γ des 40 BaF ₂ superposés	99
V.6	Linéarité de l'étalonnage en énergie en utilisant la composante lente du signal (noir) et l'intégrale du signal (rouge).	100
V.7	Spectres d'amplitude lent et de l'intégral du signal pour 250 MHz (noir) et 500 MHz (rouge) comme fréquences d'échantillonnages pour le détecteur 16 avec une source radioactive mixte (⁸⁸ Y + ¹³⁷ Cs).	101
V.8	Spectre d'énergie α (rouge) utilisé pour contrôler la stabilité en énergie.	102
V.9	L'énergie moyenne du pic α à 7,83 MeV calculée chaque 1000 impulsions.	102
V.10	La dérive ou décalage de temps de coïncidence en temps au cours du temps d'acquisition (16 ms) dont le détecteur de référence est N° 14.	104
V.11	La coïncidence en temps entre les modules du TAC.	106
V.12	La résolution globale du TAC.	107
V.13	Une représentation schématique d'un pic d'énergie totale.	109
V.14	L'efficacité expérimentale au pic avec et sans absorbeur de neutrons.	109
V.15	Matrice de l'énergie totale en fonction temps à partir de laquelle nous avons extrait le bruit de fond.	111
V.16	Réponse du TAC aux résonances isolées de l' ¹⁹⁷ Au.	112
V.17	Réponse du TAC aux résonances isolées de l' ²³⁴ U.	113
V.18	Réponse du TAC pour ¹⁹⁷ Au(n, γ) en fonction du taux de comptage.	114
V.19	Données brutes de la mesure ¹⁹⁷ Au(n, γ) dans la gamme en énergie totale γ [1 MeV, 7,5 MeV].	114
V.20	L'influence de l'absorbeur de neutrons sur la réponse du TAC aux neutrons. Les spectres sans (en rouge) et avec (en noir) absorbeur sont présentés.	116
VI.1	Vue 3D d'une coupe longitudinale d'un seul module du TAC montrant les différents constituants inclus dans la simulation GEANT4.	118
VI.2	<u>Gauche</u> : un hémisphère du TAC. Cette figure montre le tube de faisceau de neutrons et l'absorbeur de neutrons. <u>Droite</u> : Le TAC comme il est implémenté avec GEANT4 afin de simuler sa réponse.	119
VI.3	Comparaison entre modèle physique EM standard et EM à basse énergie avec le rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons avec une source ⁶⁰ Co.	121
VI.4	Comparaison entre les différentes valeurs de « Cut-off » avec le rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons avec une source ⁶⁰ Co.	121
VI.5	Comparaison entre les différentes valeurs de « StepMax » avec le rayon interne = 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons avec une source ²⁴ Na.	122

VI.6	<u>Gauche</u> : Schéma des niveaux de décroissance du ^{60}Co . <u>Droite</u> : Réponse du TAC au ^{60}Co avec et sans corrélation angulaire pour un rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons.	123
VI.7	<u>Gauche</u> : Schéma des niveaux de décroissance de ^{24}Na et <u>Droite</u> : Réponse du TAC au ^{24}Na avec et sans corrélation angulaire pour un rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons.	124
VI.8	<u>Gauche</u> : Schéma des niveaux de décroissance de ^{88}Y . <u>Droite</u> : Réponse du TAC au ^{88}Y avec (rouge) et sans corrélation angulaire (noir) pour un rayon interne de 10,90 cm et sans absorbeur de neutrons.	124
VI.9	Réponse du TAC sans absorbeur de neutrons :(Gauche) ^{137}Cs avec $R_{TAC} = 10,90$ cm. (Droite) ^{60}Co avec $R_{TAC} = 11,10$ cm.	126
VI.10	Réponse du TAC sans absorbeur de neutrons au :(Gauche) ^{24}Na avec $R_{TAC} = 11,20$ cm. (Droite) ^{88}Y avec $R_{TAC} = 11,15$ cm.	126
VI.11	Variation de la réponse du TAC sans absorbeur de neutrons aux différentes valeurs de rayon interne :(Gauche) ^{137}Cs et (Droite) ^{60}Co	127
VI.12	Variation de la réponse du TAC sans absorbeur de neutrons aux différentes valeurs de rayon interne (Gauche) ^{24}Na et (Droite) ^{88}Y	127
VI.13	A droite : Comparaison des spectres γ simulés du ^{60}Co avec (rouge) et sans (noir) absorbeur de neutrons. A gauche : Comparaison de deux spectres γ simulés du ^{60}Co après ajustement de la densité de l'absorbeur de neutrons (rouge à 70% de la valeur nominale, violet à 100% de la valeur nominale), avec le spectre expérimental.	128
VI.14	Schéma de génération des cascades Monte Carlo.	129
VI.15	Réponse du TAC à la première résonance de ^{197}Au aux différents critères de sélection, pour les paramètres de transitions recommandés.	135
VI.16	Coefficients de transmission des rayons-gammas de l' ^{197}Au qui correspondent aux paramètres (gauche) existant dans la littérature et (droite) ajustés pour reproduire les données expérimentales.	136
VI.17	Réponse du TAC à la première résonance de ^{197}Au aux différents critères de sélection, pour les paramètres de transitions trouvés par ajustement aux données expérimentales.	138
VI.18	Coefficients de transmission des rayons-gammas de l' ^{234}U	139
VI.19	Réponse du TAC à la 1 ^{ère} résonance de ^{234}U aux différents critères de sélection, pour les paramètres de transitions qui existent dans la littérature.	140
VI.20	Efficacité de détection simulée des différents critères de sélection d'événements (gauche) Pour l' ^{197}Au et (droite) pour l' ^{234}U	142
VI.21	Comparaison entre la perte en efficacité, due au taux de comptage, de détection simulée de l' ^{197}Au et l' ^{234}U	142
VII.1	Choix du critère de sélection des événements.	146

VII.2 Spectre d'intervalle de temps entre deux événements consécutifs pour un détecteur donné. (Noir) réponse expérimentale, (rouge) réponse attendu, (bleu) réponse avec temps mort ajusté.	147
VII.3 Un ajustement par un polynôme de second degré appliqué sur le facteur de correction de temps mort simulé de l' ^{234}U dont la condition est $N_{clust\gamma} \geq 2$ (voir §VII.1.2).	147
VII.4 Allure du facteur de correction de temps mort en fonction du temps de vol des neutrons. De par sa définition, l'allure de ce spectre dépend du spectre de temps de vol sur lequel est effectué la correction, d'où l'apparition des résonances.	148
VII.5 Allure du facteur de correction d'empilement en fonction du temps de vol des neutrons. De par sa définition, l'allure de ce spectre dépend du spectre de temps de vol sur lequel est effectué la correction, d'où l'apparition des résonances.	149
VII.6 Spectre brut de capture de ^{234}U	151
VII.7 Les différents spectres utilisés pour extraire le bruit de fond.	152
VII.8 Flux de neutrons de 0,03 eV à 100 keV.	155
VII.9 Fraction des neutrons incidents sur un échantillon de 10 mm de diamètre [133].	155
VII.10 Ajustement de la région thermique (à gauche) et la première résonance (à droite) en prenant comme paramètres d'entrées de ceux de la bibliothèque ENDF/B-VI.8 (en rouge) et JENDL3.3 (en bleu).	160
VII.11 Ajustement dans la région à basse énergie entre 0,03 et 10 eV. Une comparaison entre les données ENDF/B-VI.8 en rouge et nos résultats d'ajustement avec SAMMY en bleu.	162
VII.12 Comparaison entre les données expérimentales (en noir), de ENDF/B-VI.8 (en rouge) et celles d'ajustement de SAMMY (en bleu) du rendement de capture neutronique de ^{234}U jusqu'au 200 eV.	163
VII.13 Panel de résonances ajustés sur quatre domaines en énergie de neutrons.	164
VII.14 Kernel de capture radiative en fonction de la largeur neutronique.	166
VII.15 Distribution intégrale des largeurs neutroniques réduites (en fonction de $g\Gamma_n^0$) et comparaison avec la loi de Porter et Thomas (en rouge).	167
VII.16 Nombre cumulé des résonances identifiées en fonction de l'énergie et comparaison avec la droite ajustée.	168
VII.17 Distribution expérimentale des espacements D comparée à la distribution théorique de Wigner calculée pour $\langle D \rangle = 11,7 \pm 0,9$ eV.	169
VII.18 Histogramme de la valeur cumulée de $g\Gamma_n^0$ en fonction des énergies inférieures à 1500 eV, comparée à la droite ajustée.	170
VII.19 Comparaison de notre section efficace de capture avec les bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 (JEFF3.1)	173
VII.20 Comparaison de nos données avec celles de Muradyan <i>et al.</i> [24] et des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 (JEFF3.1)	175

B.1	Coupe transversale du dispositif inclus dans la simulation MCNP. . . .	188
B.2	Coupe longitudinale d'un seul module du TAC inclus dans la simulation MCNP.	188
B.3	Coupe transversale de l'absorbeur de neutrons du TAC inclus dans la simulation MCNP.	189
B.4	Coupe transversale de la porte cible incluse dans la simulation MCNP.	189

Liste des tableaux

I.1	Evolution de la production annuelle des énergies primaires en Gtep (10^9 tonnes équivalent pétrole) et en pourcentage [1].	6
I.2	Réserves disponibles en Gtep [2], et en années d'exploitation au taux actuel de consommation pour les différents combustibles.	7
I.3	Inventaire des produits présents dans le combustible d'un réacteur de type REP, au chargement et après un an de fonctionnement [5].	9
II.1	Combinaisons possibles du moment angulaire orbital ℓ et du spin de la voie s donnant le moment angulaire total, la parité π et le facteur statistique de spin g_J pour le cas de $n+^{234}\text{U}$	31
II.2	Les facteur de pénétrabilité P_ℓ , de décalage de niveau S_ℓ et de phase du potentiel de diffusion Φ_ℓ en fonction de $\rho = k_c a_c$ [45].	35
III.1	Comparaison de n_TOF avec d'autres installations	61
IV.1	Propriétés physique et chimique de l'absorbeur de neutron.	83
IV.2	Les sources radioactives utilisées pour l'étalonnage.	90
IV.3	Description des caractéristiques physiques des cibles.	92
IV.4	Les caractéristiques des capsules.	93
IV.5	Les caractéristiques des cibles pour les mesures de référence et de bruit de fond.	94
IV.6	Liste des différentes expériences de capture avec les caractéristiques de chaque mesure.	94
V.1	Les paramètres d'ajustement Gaussien pris d'un run du détecteur 1 . . .	98
V.2	Résonances isolées de la réponse du TAC pour l' ^{197}Au	112
V.3	Résonances isolées de la réponse du TAC pour l' ^{234}U	113
VI.1	Paramétrisations de la fonction de force des rayons γ . La possibilité d'ajouter une deuxième résonance (pygmée) pour les transitions E1 est valable.	130
VI.2	Paramétrisations de la densité de niveau à déterminer avec le programme de génération de cascades.	131

VI.3 Les paramètres utiles pour la reproduction de réponse du TAC à l' ^{197}Au et l' ^{234}U	133
VI.4 Les paramètres recommandés pour ^{197}Au [124].	134
VI.5 Les paramètres utilisés de ^{197}Au	136
VI.6 Les paramètres recommandés de ^{234}U	137
VII.1 Les paramètres appropriés pour l'usage avec des données expérimentales de n_TOF au CERN, valables de 1 eV à 1 MeV.	159
VII.2 Comparaison des paramètres de résonance négative avec ENDF/B-VI.8.	161
VII.3 Comparaison des paramètres de la première résonance avec ENDF/B- VI.8.	162
VII.4 Comparaison de la largeur radiative moyenne avec les évaluations.	165
VII.5 Comparaison de nos données avec les bibliothèques pour la section ef- ficace moyenne dans un spectre thermique, $\langle\sigma_c\rangle_{therm}$, et pour l'intégrale de résonance.	174
VII.6 Comparaison de nos données avec celles de Muradyan <i>et al.</i> [24] et des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JENDL3.3 (JEFF3.1)	175
A.1 Coefficients de calibration en énergie de chacun des quarante détecteurs pris du run N° 7257 avec deux sources radioactives mises ensemble de ^{88}Y et ^{137}Cs	183
A.1 continuation	184
A.2 Coefficients de calibration en temps de chacun des quarante détecteurs pris d'un run de calibration d'une source radioactive multi-gammas nécessaire pour avoir la coïncidence (dans ce cas c'est le ^{60}Co).	184
A.2 continuation	185
A.2 continuation	186
C.1 L'abondance naturelle du Titane.	191
C.2 Caractéristiques des matériaux constituant le TAC.	192
D.1 Paramètres de résonances du ^{234}U issus de l'ajustement par SAMMY. La largeur radiative Γ_γ a été fixée à 38,2 meV. Les incertitudes associées sont uniquement de nature statistique.	193
D.1 continuation	194
D.1 continuation	195
D.1 continuation	196
D.1 continuation	197

Résumé

Dans le cadre des études pour les réacteurs du futur, un programme de recherche se concentre sur l'utilisation du cycle thorium. Le principal avantage de ce cycle, comparé à celui de l'uranium est la minimisation de la production d'actinides mineurs, dont l'impact radiologique à long terme est le problème majeur du secteur électronucléaire. Afin d'avoir des calculs plus réalistes pour ce type de filière, une amélioration en terme de précision des bases de données nucléaires est nécessaire, en particulier, la section efficace de la réaction $^{234}\text{U}(n,\gamma)$. Dans le cadre d'une collaboration internationale, une nouvelle mesure a été effectuée auprès de l'installation n_TOF au CERN en utilisant la méthode de temps de vol neutronique. Pour ce sujet le détecteur de capture utilisé est un calorimètre d'absorption totale 4π à base de BaF_2 . Pour déterminer l'efficacité de détection et comprendre la réponse du calorimètre nous avons utilisé des simulations Monte Carlo, grâce aux codes GEANT4 et MCNPX. Nous avons effectué la soustraction de bruit de fond et des corrections du temps mort et empilements. Ensuite les paramètres de résonances, entre 0,03 eV et 1,5 keV, présentés dans ce travail ont été déduits à l'aide du code SAMMY, basé sur la théorie de matrice-R. Outre les paramètres de résonances, l'étude de leur valeur moyenne et de leur distribution a fait l'objet de ce travail.

Mots-clés : Forum de Génération IV, cycle thorium, collaboration n_TOF, CERN, réaction de capture neutronique, section efficace, calorimètre d'absorption totale 4π de BaF_2 simulation Monte Carlo GEANT4 et MCNPX, théorie de la matrice-R, SAMMY, spectroscopie gamma.

Abstract

Accurate and reliable neutron capture cross sections are needed in many research areas, including stellar nucleosynthesis, advanced nuclear fuel cycles, waste transmutation, and other applied programs. In particular, the accurate knowledge of $^{234}\text{U}(n,\gamma)$ reaction cross section is required for the design and realization of nuclear power plants based on the thorium fuel cycle. We have measured the neutron capture cross section of ^{234}U , with a 4π BaF_2 Total Absorption Calorimeter (TAC), at the recently constructed neutron time-of-flight facility n_TOF at CERN in the energy range from 0.03 eV to 1 MeV. Monte-Carlo simulations with GEANT4 and MCNPX of the detector response have been performed. After the background subtraction and correction with dead time and pile-up, the capture yield from 0.03 eV up to 1.5 keV was derived. The analysis of the capture yield in terms of R-matrix resonance parameters is discussed. In addition to the resonance parameters, a study of their mean value and distribution is included in this work.

Keywords : Generation IV International Forum, thorium cycle, n_TOF collaboration, CERN, neutron capture reaction, cross section, BaF_2 4π Total Absorption Calorimeter, Monte Carlo simulation with GEANT4 and MCNPX, R-matrix theory, SAMMY, gamma spectroscopy.