

THESE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg

Discipline : Physique Nucléaire

présentée par

Strahinja LUKIĆ

Titre

**Mesure de sections efficaces de réactions (n,xn)
par spectroscopie γ prompte
auprès d'un faisceau à très haut flux instantané**

Soutenue publiquement le 21 octobre 2004 devant la commission d'examen :

G. RUDOLF	Co-Directeur de thèse
S. JOKIC	Co-Directeur de thèse
A. NOURREDDINE	Président et rapporteur interne
M. LEWITOWICZ	Rapporteur externe
K.-H. SCHMIDT	Rapporteur externe
F. GUNSING	Examineur

A mes parents

REMERCIEMENTS

Je tiens en premier lieu à remercier mes directeurs de thèse, M. Gérard Rudolf et M. Stevan Jokić. Ils ont toujours su me conduire dans le travail scientifique et n'ont jamais hésité de m'aider dans des démarches pratiques. Je leur dois ma profonde reconnaissance.

J'exprime également mes sincères remerciements à M. Abdelmjid Nourreddine, M. Marek Lewitowicz, M. Karl-Heinz Schmidt et M. Frank Gunsing de m'avoir fait l'honneur de participer au jury de la thèse.

Un grand merci à mes collègues du groupe de Strasbourg, Mme Paule Baumann et Mlle Maëlle Kerveno pour leur effort de lire le manuscrit et pour beaucoup de suggestions utiles. J'apprécie l'atmosphère cordiale dans laquelle nous travaillions ensemble.

J'ai eu un grand plaisir de travailler avec mes collègues de la collaboration n_TOF, en particulier M. Arjan Plompen, M. Christian Mihailescu, M. Laszlo Olah, M. Catalin Borcea, M. Andreas Pavlik et M. Erwin Jericha.

Grand merci à M. Christophe Kieber pour le soutien technique et la mise à disposition des outils spectroscopiques nécessaires pour le développement des méthodes numériques. Grand merci à l'équipe de M. Patrice Medina : M. Marc Richer, M. Cayetano Santos et Mlle Camille Parisel qui ont développé le module numérique TNT. Il a toujours été stimulant de travailler avec eux.

Je tiens aussi à remercier les membres du personnel administratif de l'IReS, en particulier Mme Béatrice Forrler, Mme Denise Kueny, Mme Marie-Thérèse Block et Mme Erice North.

Ma reconnaissance spéciale au Professeur Ivan Aničin dont la présentation de la physique expérimentale m'a inspiré de choisir ce domaine comme profession.

Enfin, je voudrais remercier les gens avec qui j'ai partagé ces années à Strasbourg et à Belgrade : Yann, Thierry, Tony, James et Cheryl, Nathalie, Sandra, Christine, Thomas, Philippe, Pierre, Hélène, Stéphanie, Timothée, Pascal, Pascale, Esther, Pacôme, Josip, Djuro et Gabi, Steva et Zlata, Sneža Andjelić. Un merci special à Mlle Christine Lévy.

Table des matières

1	Introduction	19
1.1	<i>La surgénération</i>	19
1.2	<i>Système hybride.....</i>	20
1.3	<i>Besoin de données fondamentales.....</i>	21
1.3.1	<i>Réactions (n,xn).....</i>	21
1.4	<i>Méthodes expérimentales</i>	23
1.5	<i>La spectroscopie γ prompte auprès des faisceaux à très haut flux instantané.....</i>	24
	<i>REFERENCES :</i>	27
2	Modèles théoriques.....	31
2.1	<i>Modèle du noyau composé et de l'interaction directe</i>	31
2.1.1	<i>Noyau composé.....</i>	31
2.1.2	<i>L'interaction directe</i>	32
2.2	<i>Le prééquilibre</i>	32
2.3	<i>Modèle optique.....</i>	32
2.4	<i>Caractéristiques essentielles des sections efficaces (n,xn)</i>	33
2.5	<i>Le code théorique TALYS.....</i>	33
2.6	<i>Analyse de la production mesurée du rayonnement γ provenant des réactions (n,xn)</i>	35
	<i>REFERENCES :</i>	36
3	Dispositif expérimental	39
3.1	<i>Faisceau délivré par GELINA.....</i>	39
3.2	<i>La salle de mesure.....</i>	42
3.3	<i>Le détecteur</i>	43
3.4	<i>Diffusion de neutrons rapides dans le détecteur.....</i>	45
3.5	<i>Le flash.....</i>	46
	<i>REFERENCES :</i>	48
4	Méthodes numériques de traitement d'impulsions.....	51
4.1	<i>Filtres numériques.....</i>	51
4.2	<i>Formes des signaux des détecteurs HPGe.....</i>	53

4.3	<i>Mesure du temps de détection</i>	54
4.3.1	Méthode du seuil	54
4.3.2	Méthode de compensation de l'amplitude et du temps de montée	55
4.4	<i>Calcul de l'énergie déposée - méthode de différence des valeurs moyennes corrigées</i>	57
4.4.1	Valeurs Moyennes Corrigées – tests avec les sources	60
4.5	<i>Calcul de l'énergie déposée – élimination du défaut balistique</i>	63
4.5.1	Défaut balistique	63
4.5.2	Estimation de l'erreur induite par le défaut balistique	64
4.5.3	Annulation de la décroissance exponentielle	66
4.5.4	Estimation de la suppression du défaut balistique	68
4.5.5	Mise en forme trapézoïdale	69
4.5.6	Méthode trapézoïdale – application PC	74
4.5.7	Méthode trapézoïdale – tests avec les sources	74
4.6	<i>Estimation du défaut balistique dans les tests</i>	76
4.7	<i>Application des méthodes développées à notre expérience</i>	79
4.8	<i>La prise des données numériques</i>	80
4.9	<i>Traitement des données</i>	83
	<i>REFERENCES :</i>	85
5	Résultats	89
5.1	<i>Spectre intégral en énergie γ</i>	89
5.2	<i>Principe de l'extraction des sections efficaces à partir des spectres γ</i>	96
5.2.1	Correction des pertes dues à l'empilement	97
5.2.2	Sections efficaces relatives	98
5.2.3	Etats isomériques	99
5.3	<i>Normalisation des courbes expérimentales</i>	100
5.3.1	Normalisation de la courbe pour la transition du premier état excité du ^{208}Pb	101
5.3.2	Normalisation des courbes pour les autres transitions	102
5.3.3	Facteur d'auto-absorption des rayons γ dans la cible	103
5.3.4	Efficacités intrinsèques de détection du rayonnement γ par CLOVER	106
5.4	<i>Transitions caractéristiques de ^{208}Pb</i>	108
5.4.1	Transition du premier état excité de ^{208}Pb	109
5.4.2	Section efficace totale de la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb	114
5.5	<i>Transition du premier état excité de ^{206}Pb</i>	117
5.5.1	Influence de l'état isomérique	118
5.5.2	Comparaison aux calculs de TALYS	121
5.5.3	Comparaison aux autres expériences	122
5.5.4	Contribution de la diffusion inélastique sur ^{206}Pb	124
5.5.5	Contribution de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$	126
5.5.6	Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n)$	128
5.6	<i>Transitions d'autres états excités de ^{206}Pb</i>	129

5.6.1	Transitions de l'état 2^+ à 1466,8 keV	130
5.6.2	Transition de l'état 1^+ à 1703,5 keV	131
5.6.3	Transitions de l'état 4^+ à 1684,0 keV et 3^+ à 1340,5 keV	132
5.7	<i>Transitions caractéristiques de ^{207}Pb</i>	135
5.7.1	Transition du premier état excité de ^{207}Pb	137
5.7.2	Contribution de la diffusion inélastique sur ^{207}Pb	139
5.7.3	Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$	141
5.7.4	Transition de l'état $3/2^-$ à 897,8 keV	143
	<i>REFERENCES :</i>	145
6	Conclusions	151
7	Appendices	157
7.1	<i>Relation temps de vol – énergie des neutrons</i>	157
7.2	<i>Défaut balistique résiduel dans le cas général</i>	157
7.3	<i>Incertitude du rapport des taux d'auto-absorption</i>	161
7.3.1	Atténuation du faisceau	161
7.3.2	Effet de bord	162
7.3.3	Incertitude totale	163
7.4	<i>Valeurs numériques des sections efficaces mesurées dans ce travail</i>	163
7.4.1	Réactions menant vers le noyau ^{208}Pb	164
7.4.2	Réactions menant vers le noyau ^{206}Pb	164
7.4.3	Réactions menant vers le noyau ^{207}Pb	167

Table des figures

Figure 1.1: Comparaison des différentes évaluations des sections efficaces pour la diffusion inélastique (haut) et la réaction $(n,2n)$ (bas) sur le ^{208}Pb . [10][11][12].....	22
Figure 2.1 : Section efficace des réactions $^{208}\text{Pb}(n,xn)$ jusqu'à $x=4$	33
Figure 2.2 : Schéma de calcul des sections efficaces par le code TALYS [7].....	34
Figure 3.1 : Schème de la salle de production des neutrons avec la cible rotative d'uranium, le collimateur double Pb/Cu, l'obturateur du faisceau de neutrons et l'entrée de la piste de vol évacuée et protégée par une fenêtre en mylar.	39
Figure 3.2 : Piste de vol numéro 3 avec les cabanes qui servent de salles d'expérience. La cabane en avant est celle utilisée pour notre expérience.	40
Figure 3.3 : La forme du flux différentiel de neutrons mesuré par la chambre de fission.....	41
Figure 3.4 : Les collimateurs, les filtres et la chambre de fission dans la salle à 100 m.....	41
Figure 3.5 : Collimateur dans la salle à 200 m.....	42
Figure 3.6 : Le détecteur CLOVER avec son cryostat (gauche) et la configuration des 4 cristaux d'un détecteur CLOVER (droite).	43
Figure 3.7 : La cible de plomb avec les détecteurs et le collimateur.	44
Figure 3.8 : Raies triangulaires créées par la diffusion inélastique de neutrons sur les noyaux du germanium dans le volume du détecteur (Haut). Raie triangulaire à 693 keV utilisée pour l'estimation de la dose de neutrons reçue par le détecteur (Bas).	45
Figure 3.9 : Spectre en temps des rayons γ . Le pic provenant du flash γ est visible à gauche (0,662 μs), tandis que les rayons γ induits par les neutrons forment une bosse visible de 3 à 20 μs	46
Figure 4.1 : Signal échantillonné à la sortie du préamplificateur du type RC d'un détecteur HPGe coaxial (un segment du détecteur CLOVER) irradié par des sources ^{60}Co et ^{152}Eu . Le temps de décroissance du signal était de 50 μs , et le taux de comptage était de 20 k coups/s. Une brève saturation est visible à 110 μs	53
Figure 4.2 : Illustration de la dépendance du temps de la forme de l'impulsion dans la méthode du seuil L'exemple montre quatre impulsions des hauteurs similaires, provenant d'un détecteur HPGe coaxial.....	55
Figure 4.3 : Schéma de propagation de données dans la méthode ARC.....	55
Figure 4.4 : Illustration de la méthode ARC. Comparaison du signal original avec le signal synthétisé.....	56
Figure 4.5 : La raie du flash γ dans le spectre en temps des rayons γ , pendant notre expérience, calculé à l'aide de la méthode ARC pour les rayons γ de 100 keV à 5 MeV. Grâce à	

l'interpolation du signal synthétisé, les canaux en temps sont d'une largeur égale à la moitié de la période de l'échantillonnage.	57
Figure 4.6 : Concept de base dans le calcul de la hauteur des impulsions. Les valeurs moyennes calculées dans les fenêtres illustrées par les surfaces grises sont soustraites l'une de l'autre.	58
Figure 4.7 : Illustration du calcul de la hauteur de l'impulsion par la méthode des valeurs moyennes corrigées. La valeur moyenne dans la fenêtre avant la montée est multipliée par $e^{-t_d/\tau}$ et soustraite de la valeur moyenne dans la fenêtre après la montée.....	59
Figure 4.8 : Schéma de la propagation des données dans la méthode des valeurs moyennes corrigées.	60
Figure 4.9 : Résultats de tests de la méthode des valeurs moyennes corrigées à $4,6 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$	61
Figure 4.10 : Résultats de tests de la méthode des valeurs moyennes corrigées à $20,7 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de la fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$	62
Figure 4.11 : Schéma électronique du préamplificateur de charge.	64
Figure 4.12 : Schéma de propagation des données dans l'algorithme d'élimination de la décroissance exponentielle.	67
Figure 4.13 : Comparaison du signal échantillonné à la sortie du préamplificateur du détecteur (haut) et le signal résultant de l'annulation de la décroissance exponentielle (bas).	68
Figure 4.14 : Comparaison du signal original (haut) et le signal résultant du traitement qui comprend l'annulation de la décroissance exponentielle et la mise en forme trapézoïdale (haut). Les paramètres de la mise en forme trapézoïdale étaient $9 \mu\text{s}$ pour la durée de la pente et $7 \mu\text{s}$ pour la durée du plateau.	71
Figure 4.15 : Illustration de l'effet des différentes longueurs du plateau sur la hauteur atteinte par l'impulsion trapézoïdale. La durée de la pente est 500 ns pour les deux trapézoïdes, et celle du plateau est 500 ns pour l'un (bas, courbe noire) et 150 ns pour l'autre (bas, courbe grise). Le plateau de 150 ns est trop court et introduit un défaut balistique supplémentaire.	72
Figure 4.16 : Comparaison du plateau de l'impulsion trapézoïdale dans le cas de trois longueurs différentes de la pente trapézoïdale. Les fluctuations des points du plateau sont d'autant plus fortes que la pente est courte. L'impulsion trapézoïdale est obtenue à partir d'une même impulsion originale dans les trois cas. La longueur nominale du plateau est $1 \mu\text{s}$ dans les trois cas.	73

Figure 4.17 : Schéma de propagation des données pour la mise en forme trapézoïdale des impulsions « step ».....	73
Figure 4.18 : Résultats de tests de la méthode trapézoïdale à $4,6 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$	75
Figure 4.19 : Résultats de tests de la méthode trapézoïdale à $20,7 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$	76
Figure 4.20 : Photographie d'une carte numérique TNT avec la plaque protectrice enlevée... 80	
Figure 4.21 : Schéma logique du circuit de sélection. Dans la branche 1 du circuit, le signal logique t_0 , fourni par l'accélérateur, était mis en forme à l'aide d'un élément Gate/Delay (G/D) pour définir la fenêtre de temps de vol recherchée. Les deux circuits discriminateurs numériques dans la branche 2 signalaient la présence d'impulsions dans les séries d'échantillons issues des deux ADCs du module TNT. La coïncidence entre les deux branches du circuit vérifiait que les impulsions étaient détectées pendant la fenêtre choisie des temps de vol.....	81
Figure 4.22 : Schéma logique du circuit déclencheur de l'acquisition. Dans la branche 1 du circuit, l'opération « OU » logique était appliquée entre les signaux de sélection des deux modules TNT. Dans la branche 2 le signal t_0 était retardé de $t_{d1} + t_g$. L'acquisition était déclenchée par la coïncidence entre les deux branches du circuit. Ainsi, le signal de déclenchement était créé avec un retard constant par rapport à t_0	82
Figure 4.23 : Exemple d'une impulsion affectée par des sauts (haut) et le résultat du traitement de cette impulsion par le filtre (bas).....	84
Figure 5.1 : Résolution en énergie des deux raies γ les plus proéminentes dans le spectre intégral.....	89
Figure 5.2 : Résolution en énergie des plusieurs raies γ de 110 à 4085 keV dans le spectre intégral.....	90
Figure 5.6 : Vue partielle du spectre en énergie des rayons γ induits par les neutrons de 2,5 – 3,0 MeV (haut) et de 8,0 – 9,0 MeV (bas).....	97
Figure 5.7 : Facteur de correction de perte de coups en fonction de l'énergie des neutrons....	98
Figure 5.8 : Une fraction des transitions du premier état excité de ^{207}Pb est alimentée par la transition de l'état isomérique $13/2^+$. Cette fraction est retardée et n'est pas émise en corrélation avec le temps de vol du neutron qui a induit la réaction.....	99
Figure 5.9 : Schéma du parcours des rayons γ émis des noyaux de la cible dans la direction du détecteur.....	105

Figure 5.10 : Courbe d'efficacités intrinsèques relatives du CLOVER en mode direct.....	107
Figure 5.11 : Sections efficaces ENDF des réactions $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ et $^{207}\text{Pb}(n, \gamma)$ multipliées par les abondances des isotopes initiaux et comparées sur l'échelle logarithmique.....	108
Figure 5.12 : Schéma des niveaux de ^{208}Pb [30]. Les intensités relatives sont notées pour les niveaux avec plusieurs voies de décroissance.....	109
Figure 5.13 : Section efficace de la production de la transition du premier état excité de ^{208}Pb par la diffusion inélastique de neutrons. La courbe de la section efficace totale pour la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb est présentée en pointillé.....	110
Figure 5.14 : Comparaison des évaluations ENDF/B-IV [10], JENDL-3 [11], BROND-2 [12] et du calcul par TALYS, de la section efficace de la réaction $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ du seuil à 20 MeV.....	110
Figure 5.15 : Comparaison des valeurs ENDF et TALYS des sections efficaces pour l'alimentation des trois premiers états excités par la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb	111
Figure 5.16 : Comparaison des valeurs ENDF et TALYS des sections efficaces pour la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb vers le continuum, et vers le premier état excité.....	112
Figure 5.17 : Comparaison de la section efficace pour la transition du premier état excité vers l'état fondamental dans la réaction $^{208}\text{Pb}(n, n' \gamma)$ obtenue dans ce travail avec les résultats d'autres expériences.....	112
Figure 5.18 : Comparaison de la section efficace pour la transition du premier état excité vers l'état fondamental dans la réaction $^{208}\text{Pb}(n, n' \gamma)$ obtenue dans ce travail avec les données de Vonach et al.....	114
Figure 5.19 : Comparaison de la section efficace $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ estimée à partir des données expérimentales obtenues dans ce travail avec les courbes des bases de données ENDF/B-VI, JENDL-3 et BROND-2.....	115
Figure 5.20 : Comparaison de la section efficace $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ estimée à partir des données expérimentales obtenues dans ce travail avec les autres expériences.....	116
Figure 5.21 : Schéma des niveaux de ^{206}Pb [30] jusqu'à 2200 keV. Pour les niveaux avec plusieurs voies de décroissance, la probabilité de chaque voie est notée en pourcents.	117
Figure 5.22 : Vue partielle du spectre des rayons γ induits par les neutrons d'énergies entre 0,3 et 0,5 MeV. Dans cet intervalle la transition de 803,1 keV (bas) est alimentée exclusivement par la cascade qui suit la transition de 516,2 keV (haut), de l'état isomérique 7^- à 2200 keV. Le rapport des intensités des deux raies est 1. L'efficacité de détection, y compris l'auto absorption, à 803,1 keV représente 90,3% de l'efficacité à 516,2 keV.....	119

Figure 5.23 : Rapport entre la contribution isomérique et l'apport total dans la raie à 803,1 keV dans tous les intervalles de l'énergie des neutrons.	120
Figure 5.24 : La section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel par les neutrons.	121
Figure 5.25 : Comparaison de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité du ^{206}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le plomb naturel. La partie de 0,5 à 3,5 MeV est élargie en bas.	122
Figure 5.26 : Contribution de la diffusion inélastique à la transition de 803,1 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.	124
Figure 5.27 : Comparaison de la section efficace isotopique pour la production de la transition 803,1 keV par la diffusion inélastique avec les résultats d'autres expériences.	125
Figure 5.28 : Contribution de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ à la transition de 803,1 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.	126
Figure 5.29 : Comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité par la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition.	127
Figure 5.30 : Section efficace pour la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ déduite de nos mesures en comparaison avec le calcul par TALYS et les évaluations ENDF/B-IV [10], JENDL-3 [11] et BROND-2 [12].	127
Figure 5.31 : Comparaison de nos résultats pour la section efficace $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ avec la mesure de J. Frehaut et al. [64]	128
Figure 5.32 : Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n)$ à la transition de 803,1 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.	128
Figure 5.33 : Comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition.	129
Figure 5.34 : La section efficace de la production de la transition de l'état 2^+ à 1466,8 keV vers l'état fondamental de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel par les neutrons.	130
Figure 5.35 : La section efficace de la production de la transition de l'état 2^+ à 1466,8 keV vers le premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel.	131
Figure 5.36 : La section efficace de la production de la transition de l'état 1^+ à 1703,5 keV vers l'état fondamental de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel.	132
Figure 5.37 : La section efficace de la production de la transition de l'état 4^+ à 1684,0 keV et de l'état 3^+ à 1340,5 keV vers le premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel.	133
Figure 5.38 : La section efficace de la production de la transition de l'état 4^+ à 1684,0 keV et de l'état 3^+ à 1340,5 keV vers le premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb	

naturel. Les courbes de TALYS ont été ajustées au rapport de branchement de l'état 4^+ à 1684,0 keV de Firestone.....	135
Figure 5.39 : Sections efficaces ENDF des réactions $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ et $^{207}\text{Pb}(n, \gamma)$ pondérées des abondances de leurs isotopes initiaux et comparées sur l'échelle logarithmique.	136
Figure 5.40 : Schéma des niveaux de ^{207}Pb [30] jusqu'à 1633 keV. Les intensités relatives sont notées pour les niveaux avec plusieurs voies de décroissance.	137
Figure 5.41 : La courbe d'excitation de la transition fondamentale du ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel par les neutrons.	138
Figure 5.42 : Comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le plomb naturel.....	139
Figure 5.43 : Contribution de la diffusion inélastique à la transition de 569,7 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.....	140
Figure 5.44 : Comparaison de la section efficace isotopique pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le ^{206}Pb	140
Figure 5.45 : Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n, 2n)$ à la transition de 569,7 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.....	141
Figure 5.46 : Comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la réaction $^{208}\text{Pb}(n, 2n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition.	142
Figure 5.47 : Comparaison de notre résultat pour la section efficace $^{208}\text{Pb}(n, 2n)$ avec les bases de données.	142
Figure 5.48 : Comparaison de nos résultats pour la section efficace $^{208}\text{Pb}(n, 2n)$ avec la mesure de J. Frehaut et al. [64].....	143
Figure 5.49 : Courbe de la section efficace de la production de la transition de l'état $3/2^-$ à 897,8 keV vers l'état fondamental de ^{207}Pb	144
Figure 7.1 : Illustration du courant de collection des charges (haut, ligne noire) et de son approximation par une combinaison des fonctions constantes (haut, ligne grise). Signal à la sortie du préamplificateur (bas).....	159
Figure 7.2 : Illustration des limites physiques sur le signal entre deux échantillons donnés v_{k-1} et v_k . Les lignes discontinues représentent la limite supérieure et la limite inférieure sur le signal. La ligne solide représente un exemple du signal réel.	160
Figure 7.3 : Illustration du calcul du volume de la région de bord où le parcours du rayonnement γ est raccourci.	162

Chapitre 1

Introduction

1 Introduction

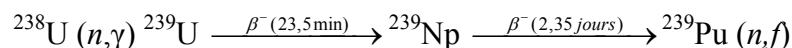
Dans la dernière décennie les perspectives de consommation croissante d'énergie au niveau mondial ont renouvelé l'intérêt pour l'exploitation de l'énergie nucléaire. Pourtant, tout projet d'augmentation de la production de l'énergie nucléaire nécessite la résolution des problèmes inhérents aux technologies existantes. Le cycle actuellement utilisé, basé sur la fission d' ^{235}U , ne peut assurer la production que pour un temps limité. Le problème des déchets radioactifs manque toujours d'une solution satisfaisante en vue de la préservation de l'environnement et de l'acceptation par la société. La sûreté des réacteurs est, aussi, une question importante.

Les solutions sont recherchées dans plusieurs directions, dont en particulier la surgénération de la matière fissile à partir des isotopes dits « fertiles » et la transmutation des déchets. Ces thèmes sont considérées comme une des priorités de la recherche nucléaire dans le cadre des « Framework Programs » actuels de la communauté européenne [1][2]. Les concepts de réacteur à sels fondus, de surgénérateur et de système hybride représentent les technologies proposées dans ce contexte. Le système hybride, qui permet de réunir les idées de surgénération et de transmutation dans une solution technologique, attire une forte attention de la communauté scientifique [2][3]. Lorsque ce travail de thèse a commencé, il existait trois collaborations européennes financées dans ce cadre et dédiées à la production des données nucléaires fondamentales importantes pour les systèmes hybrides. Ce sont MUSE (Multiplication de Source Externe), HINDAS (High and Intermediate Energy Nuclear Data for Accelerator-driven Systems) et n_TOF (Neutron Time Of Flight) [1]. Notre travail a été fait dans le cadre de la collaboration n_TOF.

1.1 La surgénération

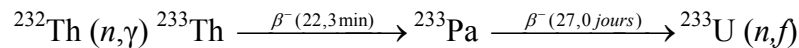
L'abondance de ^{235}U dans l'uranium naturel est de 0,72%. Donc, seulement une faible fraction du minéral d'uranium est utilisée pour la fission dans les réacteurs classiques. Une exploitation plus efficace des ressources naturelles est certainement indispensable dans la perspective d'une production durable de l'énergie nucléaire. Une telle possibilité existe dans la surgénération de la matière fissile à partir des noyaux dits « fertiles ».

Beaucoup d'efforts ont déjà été investis dans la recherche de possibilités d'utiliser le ^{239}Pu , qui est un noyau fissile généré par la capture du neutron sur ^{238}U dans les réacteurs actuels. Le schéma du cycle d' ^{238}U est le suivant :



L'abondance naturelle d' ^{238}U est de 99,27%. Pourtant, le cycle d' ^{238}U ne peut pas être régénérateur dans les réacteurs actuels avec le spectre thermique de neutrons à cause d'une forte résonance de capture sur le ^{239}Pu un peu en dessous de 1 eV [4]. Ce cycle ne peut être utilisé que dans les réacteurs à spectre rapide.

Un autre noyau fertile présent dans la nature est le ^{232}Th . Lors de la capture radiative du neutron, le noyau de ^{232}Th est transformé en ^{233}Th qui, à travers deux décroissances β^- , passe au ^{233}U qui est un noyau fissile. Ce cycle, dénommé Th/U, est tout à fait équivalent au cycle U/Pu :



Le cycle de thorium est utilisable comme régénérateur dans le spectre thermique, ainsi que dans le spectre rapide [4]. L'intérêt pour le cycle du thorium existe depuis longtemps à cause de l'abondance du thorium dans la croûte de la terre trois fois plus importante que celle de l'uranium. En plus, le thorium naturel consiste en 100% de ^{232}Th et constitue donc une source d'énergie à très long terme. Ajoutons encore que le cycle du Th ne produit que très peu d'actinides, alors que ceux-ci constituent l'essentiel des déchets à vie longue dans les réacteurs actuels et dans le cycle U/Pu.

1.2 Système hybride

Un système hybride est composé d'un accélérateur de particules adjoint à un réacteur nucléaire sous-critique [5][6]. Dans un réacteur sous-critique, le nombre de neutrons provenant des fissions ne suffit pas pour susciter un taux de réactions constant en temps. Par soi-même, un tel système s'éteint. Afin de maintenir la réaction, il est nécessaire de combler le manque de neutrons à partir d'une source externe. Dans le système hybride, les neutrons externes sont produits par la spallation lors de l'impact du faisceau de protons sur une cible de matériau lourd tel que, par exemple, le plomb. Dans une expérience effectuée au CERN, il a été établi que, pour un rapport optimal entre la puissance produite et celle investie dans l'accélérateur de protons, l'énergie du faisceau doit être égale ou supérieure à 1 GeV [7].

Le flux des neutrons externes dépend de l'intensité du faisceau, ce qui permet son contrôle précis et pratiquement instantané. Puisque le réacteur est sous-critique, le danger de divergence du taux de réaction est fortement réduit, ce qui rend un tel système beaucoup plus sûr.

Le cycle utilisé est celui de thorium. Ce cycle produit très peu d'actinides par rapport à celui de U/Pu. Le minage de thorium présente, aussi, beaucoup moins de dangers liés à la radiotoxicité [8]. En plus, il peut être utilisé effectivement pour la transmutation du plutonium si celui-ci est introduit dans le combustible [9].

Enfin, le spectre des neutrons produits par la spallation est caractérisé par un flux élevé de neutrons rapides. Dans ces conditions, la dynamique des réactions nucléaires favorise la transmutation par fission des actinides et transuraniens. Les systèmes hybrides apparaissent donc actuellement comme la solution pour la transmutation des déchets les plus difficiles à éliminer, c'est-à-dire l'Américium et le Curium.

1.3 Besoin de données fondamentales

Le dessin et la construction d'un système hybride nécessitent la connaissance d'une large gamme de données nucléaires. La performance des outils de simulation de transport des particules, utilisés pour prédire les caractéristiques du système envisagé, dépend de la précision avec laquelle ces données sont connues. Quant aux réactions des neutrons, les bases de données sont relativement bien remplies au-dessous de 20 MeV et pour les noyaux du cycle de l'uranium. Mais pour les noyaux du cycle du thorium, ainsi que pour les énergies de neutrons plus élevées, la situation est moins satisfaisante. Les données expérimentales sont peu nombreuses et souvent imprécises. Les évaluations sont basées surtout sur les modèles et des désaccords réels existent entre les différentes évaluations. Les évaluations pour les actinides au-delà de 20 MeV n'existent pas.

1.3.1 Réactions (n, xn)

Dans le flux élevé de neutrons rapides d'un système hybride, les réactions avec un seuil élevé deviennent beaucoup plus importantes par rapport aux réacteurs classiques. Le seuil des réactions (n, xn) est de l'ordre $(x-1)E_s$, où E_s est l'énergie de séparation d'un neutron, ou 7-8 MeV pour la plupart de noyaux.¹ Ces réactions modifient le flux et le spectre des neutrons et, par conséquent, la criticité du système. La connaissance précise des sections efficaces de ces réactions est donc indispensable pour maîtriser les processus nucléaires dans le système hybride. En même temps, les données expérimentales sont particulièrement peu nombreuses pour ce type de réactions.

Dans certains cas, il n'existe pas de données expérimentales du tout : c'est le cas par exemple pour la réaction $^{233}\text{U}(n, 2n)$. Cette réaction est pourtant très importante dans le cas du cycle du Thorium, puisque ^{233}U est l'élément fissile. Elle détermine en grande partie la radiotoxicité de ce cycle. Lorsqu'il n'existe aucune donnée mesurée, les bases de données font appel à des modèles, et diffèrent alors fortement entre elles.

Les désaccords entre les évaluations existent des fois même pour les noyaux pour lesquels beaucoup de mesures ont été faites. Tel est le cas des isotopes du plomb. La figure 1.1 compare les évaluations des sections efficaces pour la diffusion inélastique et la réaction ($n, 2n$) sur le ^{208}Pb dans les bases de données ENDF/B-VI [10], JENDL-3 [11] et BROND-2 [12]. Les évaluations pour la diffusion inélastique diffèrent dans la forme ainsi que dans la valeur du maximum de la courbe. Les courbes de ENDF et JENDL comprennent un plateau large entre 5 et 8 MeV, tandis que la courbe de BROND descend uniformément à partir de 5 MeV, n'ayant pas atteint la hauteur de ces deux courbes précédentes. La région de 4 à 14 MeV est, d'ailleurs, la région où il existe très peu de données expérimentales pour la section

¹ A l'exception de la diffusion inélastique qui peut être comprise comme un cas spécial des réactions (n, xn) avec $x=1$.

efficace totale de la diffusion inélastique. Beaucoup plus de mesures ont été faites dans la région autour de 3 MeV, ainsi que dans celle de 14 à 15 MeV, grâce à la disponibilité des faisceaux monoénergétiques créés par les réactions $d(d,n)^3\text{He}$ et $t(d,n)^4\text{He}$.

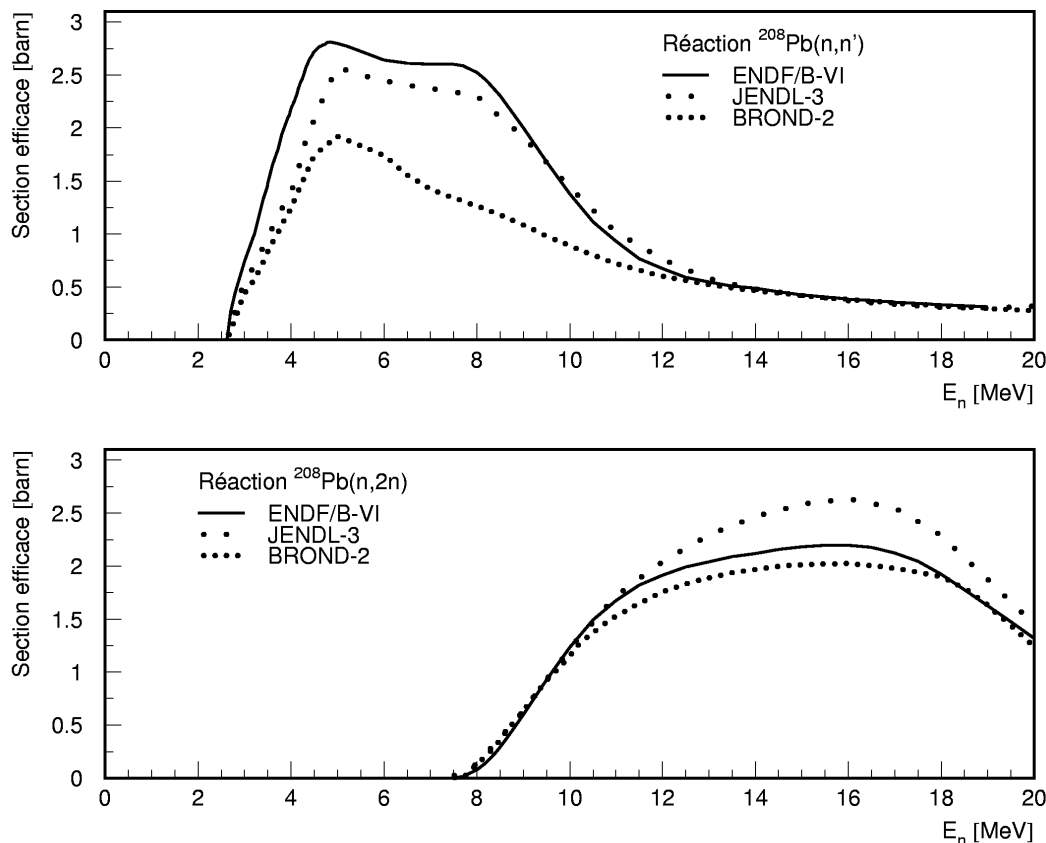


Figure 1.1: Comparaison des différentes évaluations des sections efficaces pour la diffusion inélastique (haut) et la réaction $(n,2n)$ (bas) sur le ^{208}Pb . [10][11][12]

Dans le cas de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ les évaluations s'accordent mieux en forme. Pourtant, les maxima des courbes diffèrent significativement. Par exemple, le maximum de la courbe de JENDL est de 40 % supérieur à celui de BROND.

Il n'existe pas de standard de précision des sections efficaces (n,xn) nécessaire pour la maîtrise des technologies des systèmes hybrides. Néanmoins, la précision des quantités fondamentales devrait être du même ordre de grandeur que la précision souhaitée de la prédiction des paramètres essentiels du système. Par exemple, pour le meilleur bilan énergétique du système hybride, le facteur de criticité doit être proche de l'unité. La valeur le plus souvent proposée est 0,98. Evidemment, il est indispensable de pouvoir prédire ce facteur avec une précision meilleure que 2%. Les sections efficaces des réactions qui influent le plus la criticité, c'est-à-dire (n,f) et (n,γ) , devraient être connues avec une précision du même ordre. Pour ces sections efficaces, l'objectif de la collaboration n_TOF est une précision de quelques pourcents. Pour les réactions (n,xn) , l'objectif est d'abord de mettre au point une méthode

permettant de mesurer la section efficace des réactions sur des isotopes très radioactifs tels que ^{233}U [13].

1.4 Méthodes expérimentales

Il n'y a pas de méthode universelle de mesure des sections efficaces (n, xn) applicable à tous les isotopes. Trois méthodes existantes sont applicables dans différentes situations : la détection des neutrons secondaires, la méthode d'activation et la spectroscopie γ prompte.

La première méthode comprend la mesure de la distribution angulaire et de l'énergie des neutrons secondaires auprès d'un faisceau en principe monoénergétique. C'est la méthode la plus directe, mais certaines corrections sont toujours nécessaires. La contribution due aux neutrons de la partie continue du spectre du faisceau lorsqu'il n'est pas monoénergétique, ainsi que des différentes voies de réaction, notamment les voies avec un paramètre x différent, doit être prise en compte. Une efficacité de détection de 100% est nécessaire. Dans le cas des noyaux fissiles, les neutrons provenant de la fission représentent une difficulté supplémentaire parce qu'il n'est pas possible de les distinguer de ceux provenant des réactions (n, xn).

La méthode d'activation est applicable aux réactions donnant lieu à la production soit d'un isotope instable par rapport à la décroissance β , soit d'un état métastable du noyau résiduel. Cette méthode comprend l'irradiation de la cible étudiée par un faisceau monoénergétique, et la spectroscopie hors ligne du rayonnement γ provenant de la cible. Pour qu'elle soit applicable, il faut un temps de bombardement et un temps de mesure comparables à la durée de vie des isotopes produits. Les isotopes à durée de vie trop faible ou trop longue sont donc exclus.

La spectroscopie γ prompte est la technique où les réactions induites par un faisceau de particules dans une cible sont étudiées à travers les caractéristiques du rayonnement γ émis par la cible lors de l'impact du faisceau. Cette méthode implique souvent des taux de comptage instantanés très élevés. Les transitions caractéristiques pour les isotopes résiduels apparaissent comme les raies dans le spectre. La mesure du temps de la détection des transitions γ promptes donne le temps de vol de neutrons. Ainsi, il est possible de déterminer l'énergie de ceux-ci [14][15][16]. C'est la seule méthode applicable aux faisceaux blancs.

Les paramètres essentiels pour envisager la spectroscopie γ sous faisceau blanc sont la longueur de la piste de vol, la résolution en temps du faisceau et celle du détecteur, la résolution en énergie γ du détecteur, la fréquence du faisceau. La résolution en énergie des neutrons dépend de la longueur de la piste de vol et de la résolution en temps de détection des rayons γ . Un parcours plus long permet d'établir l'énergie des neutrons plus précisément avec une même résolution en temps. D'un autre côté, le flux de neutrons est proportionnel au carré inverse de la distance de la source de neutrons. La longueur de la piste sera, donc, un compromis entre l'objectif d'avoir une bonne résolution en énergie de neutrons et un taux de comptage suffisant pour obtenir la statistique recherchée dans un temps raisonnable. Dans le cas d'un grand nombre de noyaux résiduels avec beaucoup de transitions possibles, une bonne

résolution en énergie des rayons γ est indispensable afin de pouvoir séparer les raies proches l'une à l'autre.

1.5 La spectroscopie γ prompte auprès des faisceaux à très haut flux instantané

Pour effectuer les mesures de section efficace lorsque la cible est très active, le taux de réactions dans la cible doit être suffisamment élevé, ce qui nécessite un faisceau à très haut flux instantané. En contrepartie, ce faisceau sera pulsé à basse fréquence. En effet, si l'acquisition est active uniquement pendant les brèves impulsions du faisceau, la détection de la radioactivité de la cible est fortement réduite. En même temps, le haut taux de comptage instantané n'est pas très favorable pour la spectroscopie γ .

C'est dans ce but que le CERN a développé le faisceau de neutrons baptisé n_TOF. Le faisceau de n_TOF est créé par spallation induite par un faisceau des protons de 20 GeV sur une cible de plomb solide, de 80 cm de large et haut, et de 60 cm de profondeur. Le faisceau des protons est généré par le Proton Synchrotron du CERN [17]. Dans un supercycle de 16,8 s, le PS génère quatre impulsions de 7×10^{12} protons qui sont envoyées vers différentes expériences. Normalement, l'une des impulsions du supercycle est dédiée à n_TOF. Lors de la génération des autres impulsions, une impulsion « parasitique », moins intense que l'impulsion dédiée, peut être aussi envoyée vers la cible de spallation de n_TOF. La durée des impulsions est de 6 ns. Les neutrons parcourent plus de 180 m avant d'arriver à la salle de mesure où la cible étudiée est positionnée dans le faisceau. Le flux des neutrons à travers la cible, lors d'une impulsion dédiée, est de 10^6 n/cm², et le spectre en énergie couvre la gamme de 1 eV à 250 MeV [18][19].

L'une des deux difficultés principales à laquelle se heurte la spectroscopie γ en ligne à n_TOF provient de la fréquence très faible du faisceau. Le temps de vol de neutrons avec une énergie suffisante pour induire les réactions (n, xn) est inférieur à 6 μ s (voir appendice 1). A 250 MeV, le temps de vol est de 1 μ s. Autrement dit, le temps utile est de seulement 5 μ s par impulsion de faisceau, donc de l'ordre d'une seconde par mois de faisceau. Il est, donc, indispensable de pouvoir exploiter le temps utile d'une manière efficace. Pour améliorer l'efficacité de la détection du rayonnement γ on est obligé d'utiliser un grand nombre de détecteurs et on cherche à les positionner à une distance minimale de la cible. Comme la performance des détecteurs basés sur le germanium utilisés pour la spectroscopie γ se détériore avec l'irradiation par les neutrons rapides, il est nécessaire de vérifier que la dose de neutrons reçue par le détecteur pendant l'expérience demeure acceptable.

Lors de l'impact du faisceau de protons sur la cible de plomb, un flash intense de particules, notamment des muons, et de rayons γ parcourt la piste de vol des neutrons à la vitesse de lumière. Ce flash représente la seconde des difficultés principales de la mesure des réactions (n, xn) par la spectroscopie γ prompte à n_TOF. Lorsque le flash interagit avec le détecteur HPGe utilisé pour la spectroscopie γ , celui-ci est aveuglé pendant plusieurs dizaines de μ s et

ne peut pas détecter le rayonnement γ qui intervient, notamment celui provenant des réactions (n, xn).

Afin de surmonter cet obstacle, nous avons tenté d'utiliser des préamplificateurs à reset externe qui pourrait minimiser l'effet du flash. En plus, la collaboration a renforcé les murs de protection à l'entrée de la salle de mesure. Pourtant, nos tests ont démontré que les impulsions induites par le flash dans un détecteur HPGe planaire atteignent une intensité équivalente à une énergie du rayonnement γ allant jusqu'à 150 MeV. Il n'existe aucune possibilité de mesurer avec précision les rayons γ de l'ordre de centaines de keV seulement quelques μ s après un tel dépôt d'énergie dans le germanium. La mise en place de la protection supplémentaire du détecteur est nécessaire. Cependant, si le dépôt d'énergie est diminué mais est néanmoins observé, le système de détection doit être capable de traiter les impulsions très rapprochées en temps. La solution réside, comme va le démontrer ce travail, dans l'utilisation d'une électronique numérique.

Les sections efficaces (n, xn) ont déjà été mesurées par la spectroscopie γ auprès d'un faisceau blanc à Los Alamos National Laboratory [14]. Le problème du flash γ et du temps utile ne se pose pas à Los Alamos où le faisceau a une fréquence élevée mais une intensité instantanée faible. En effet, le taux de rayons γ du flash et des réactions est généralement inférieur à 1 rayon pour 1000 impulsions de faisceau. Les γ du flash et ceux des réactions sont donc très rarement concomitants. Cependant, cette haute fréquence impose d'utiliser une base de vol courte, et donc elle oblige le système d'acquisition d'être actif tout le temps. Avec une cible active, le taux de comptage dû au bruit de fond peut dépasser de un à deux ordres de grandeur le taux dû à la réaction.

L'avantage d'un faisceau pulsé à faible fréquence est justement de permettre une sélection en temps. Vu l'objectif d'étudier essentiellement les réactions sur les actinides, il est important d'augmenter autant que possible le rapport signal/bruit. Le faisceau de n_TOF devrait être capable d'améliorer ce rapport de près de six ordres de grandeur par rapport à Los Alamos.

C'est pour mettre toute cette technique au point que des tests, puis des mesures ont été effectuées auprès de deux autres faisceaux. Ce sont le faisceau quasimonoénergétique généré par l'accélérateur des protons CYCLONE du Cyclone Research Centre (CRC) à Louvain – la Neuve, et le faisceau blanc généré par GELINA (Geel Electron LINear Accelerator) de l'Institute for Reference Measurements and Materials (IRMM), Geel.

La mesure effectuée auprès du faisceau de Louvain – la Neuve a surtout consisté à démontrer que la spectroscopie γ en ligne est applicable auprès d'un faisceau de neutrons intense et de haute énergie, et avec une cible qui fissionne. Ceci a été réalisé en bombardant une cible de ^{232}Th , et en observant bien distinctement les raies des transitions à basse énergie dans ^{228}Th , ^{230}Th et ^{232}Th , alimentées respectivement par les réactions ($n, 5n$), ($n, 3n$) et (n, n') dues à des neutrons de la composante monoénergétique à une énergie voisine de 40 MeV et à ceux de la composante continue [20][21]. Très récemment, la courbe d'excitation de la réaction ($n, 5n$) a été mesurée à 6 énergies autour de 38 MeV.

L'expérience à Geel a servi à mettre au point l'acquisition numérique, et à valider la méthode en mesurant, dans un premier temps, une réaction déjà connue. Elle fait l'objet de ce travail, et est présentée dans les chapitres suivants. Le faisceau à Geel est blanc et pulsé comme celui au CERN, mais moins intense et avec une fréquence plus élevée (800 Hz). La base de vol, que nous avons utilisée, est longue de 200 m, à peu près comme à n_TOF. Le flash est présent aussi, mais moins intense, et l'utilisation des méthodes numériques a permis d'effectuer la mesure. Les sections efficaces des réactions (n,xn) sur le plomb naturel ont été mesurées du seuil de la diffusion inélastique jusqu'à 20 MeV.

Après cette introduction, le deuxième chapitre aborde les modèles théoriques utilisés pour l'analyse des réactions (n,xn). Dans le chapitre 3, le dispositif expérimental est décrit en détail. Le chapitre 4 traite les méthodes numériques utilisées pour surmonter le problème du haut taux de comptage instantané. Dans le cinquième chapitre les résultats sont présentés et discutés et la conclusion présente les perspectives ouvertes par ce travail.

REFERENCES :

- [1] *Nuclear Fission and Radiation Protection Projects Selected for Funding 1999-2002*, Annex II, EURATOM, European Commission – Community Research, 1999 (ftp://ftp.cordis.lu/pub/fp5-euratom/docs/fission_projects2.pdf).
- [2] The European Technical Working Group on ADS, *A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration*, Ente per le Nuove tecnologie, l'Energia e l'Ambiente, April 2001.
- [3] Nuclear Energy Agency – Organization for Economic Cooperation and Development, Comparative Study, *Accelerator Driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles*, Nuclear Energy Agency, <http://www.nea.fr/html/ndd/reports/2002/nea3109.html>
- [4] Le groupe PACS de l'IPN d'Orsay, *Etudes de scénarios: quelles solutions pour le futur du nucléaire ?* <http://ipnweb.in2p3.fr/~pacs/activites/scenarios-systemes/systemes-scenarios.html>
- [5] F. Carminati et al., *An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by a Particle Beam Accelerator*, CERN/AT/93/47 (ET) (1993)
- [6] C. Rubbia et al., *Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier*, CERN/AT/95-44 (ET) (1995)
- [7] S. Andriamonje et al., *Experimental Determination of the Energy Generated in Nuclear Cascades by a High-Energy Beam*, Physics Letters **B348** (1995) 697-709
- [8] C. Rubbia, *The Energy Amplifier*, Proceedings of the 8th “Journées Saturne” – Accelerators applied to the nuclear waste problem, Saclay, France, 5 - 6 May 1994 – p. 115-123
- [9] C. Rubbia et al., *A Realistic Plutonium Elimination Scheme With Fast Energy Amplifiers and Thorium-Plutonium Fuel*, CERN/AT/95-53 (ET) (1995)
- [10] Cross Section Evaluation Working Group, *ENDF/B-VI Summary Documentation*, Report **BNL-NCS-17541 (ENDF-201)** (1991), edited by P.F. Rose, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, USA.
- [11] T. Nakagawa, et al., *Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version 3, Revision 2*, **J. Nucl. Sci. Technol.** **32**, 1259 (1995).
- [12] A. I. Blokhin, et al., *Current Status of Russian Nuclear Data Libraries*, **Nuclear Data For Science and Technology**, Volume 2, p. 695, edited by J. K. Dickens (American Nuclear Society, LaGrange Park, IL, 1994).
- [13] A. Mengoni, *Mid-term Report of n_TOF-ND-ADS Project*, FIKW-CT-2000-00107, European Commission, The 5th Euratom Framework Programme (2002)

- [14] H. Vonach et al., $^{207,208}\text{Pb}(n,xn\gamma)$ reactions for neutron energies from 3 to 200 MeV, *Physical Review* **C50** (1994) 1952.
- [15] L. A. Bernstein et al., *Physical Review* **C57** (1998) R2799.
- [16] R. O. Nelson et al., *Proceedings of the Conference on Nuclear Data for Science and Technology* 59, (Bologna, 1997).
- [17] R. Billinge, *The CERN PS Complex: A Multipurpose Particle Source*, *Proceedings of XIIth International Conference on High Energy Accelerators*, 1983.
- [18] C. Borcea et al., *The Neutron Time of Flight Facility at CERN*, CERN SL-2001-069 (EET), December 2001.
- [19] 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/LHC/98-02 (EET), 30 May 2000
- [20] A. Bol et al., *A novel design for a fast intense neutron beam*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **214** (1983) 169.
- [21] M. Kerveno et al., *(n,xn) Cross Section Measurements by in Beam γ -Ray Spectroscopy*, *Proceedings of The International Workshop on P&T and ADS Development*, Mol (Belgique) 6-8 octobre 2003

Chapitre 2

Modèles Théoriques

2 Modèles théoriques

Dans ce chapitre, les caractéristiques générales des modèles théoriques pour l'analyse des réactions (n, xn) sont introduites. Le code TALYS, utilisé pour l'analyse des résultats expérimentaux dans ce travail, est décrit et ses avantages pour l'analyse des mesures effectuées par spectroscopie γ sont soulignés.

2.1 *Modèle du noyau composé et de l'interaction directe*

Les descriptions les plus élémentaires des réactions nucléaires sont le modèle du noyau composé, proposé par Bohr en 1936 [1], et le modèle de l'interaction directe, de Oppenheimer et Phillips en 1935 [2]. Ces modèles se basent sur les idées des modèles correspondants de la structure nucléaire, respectivement, le modèle de la goutte liquide et le modèle en couches.

2.1.1 Noyau composé

Dans le modèle de la goutte liquide, on suppose que l'interaction forte de courte portée qui existe entre les nucléons produit un mouvement désordonné des nucléons dans la matière nucléaire, avec des collisions fréquentes et un parcours moyen très faible. Par conséquent, on imagine que, lors d'une réaction, la particule incidente subit un grand nombre de collisions et répartit son énergie sur l'ensemble des nucléons du noyau. Ainsi, un noyau composé est formé dans un état excité à partir du noyau initial et de la particule incidente. L'énergie d'excitation se libère, ensuite, par l'émission des particules et du rayonnement γ .

Le modèle du noyau composé permet d'expliquer la présence des résonances dans les courbes de la section efficace totale de réactions des neutrons de basse énergie sur tous les noyaux. Ces résonances correspondent aux états excités du noyau composé formé par la réaction. La largeur naturelle des résonances correspond au temps de vie des états excités de 10^{-19} à 10^{-15} s. Ce temps est grandement supérieur au temps nécessaire pour qu'un neutron traverse le noyau, ce qui renforce l'idée que la particule incidente forme un noyau composé avec la cible.

Lorsque l'énergie de la particule incidente est suffisamment élevée, la désexcitation du noyau composé inclut l'émission des particules, ou « l'évaporation », à l'image des molécules qui s'évaporent d'une goutte liquide chaude.

L'hypothèse de Bohr consiste à supposer que l'étape de formation du noyau composé est indépendante de l'étape de sa désexcitation. Autrement dit, entre les deux étapes, le noyau composé perd la mémoire de la manière dont il a été formé, dans la mesure qui permet de respecter les lois de conservation. Intuitivement, cette idée s'accorde bien avec un temps de vie du noyau composé très long par rapport au temps nécessaire pour que la particule incidente traverse le noyau. Le moment de la particule incidente se « dilue » dans le noyau composé. En conséquence, la distribution angulaire du rayonnement et des particules émises est relativement isotropique, sans préférence forte du sens du moment incident.

2.1.2 L'interaction directe

Dans le modèle de l'interaction directe on imagine que la particule incidente n'interagit qu'avec un seul nucléon à la fois, tandis que le « cœur » du noyau reste inerte ou dans un mouvement simple. Le temps de l'interaction est de l'ordre du temps nécessaire pour que la particule incidente traverse la cible et la distribution angulaire des particules émergentes est très piquée vers l'avant. Ce type d'interaction se manifeste surtout dans les réactions où un nucléon est éjecté ou arraché au noyau.

La notion du « cœur » inerte rappelle immédiatement le modèle en couches où les nucléons sont arrangés en couches, obéissant au principe de Pauli, dans un potentiel moyen. Le principe de Pauli interdit les collisions entre nucléons menant vers un état déjà occupé, et rallonge ainsi le parcours moyen effectif des nucléons. Les caractéristiques essentielles des interactions directes se manifestent aux énergies où la longueur d'onde de la particule incidente est inférieure à l'espacement moyen des nucléons dans la cible, ce qui comprend l'ordre de magnitude de plusieurs dizaines de MeV dans le cas du neutron incident.

2.2 Le prééquilibre

Dans les spectres en énergie des particules émergentes de réactions nucléaires, la composante due à l'évaporation est caractérisée par la basse énergie (< 10 MeV) et par la distribution angulaire presque uniforme, en conséquence de l'hypothèse de Bohr. Par contre, la composante directe est caractérisée par des pics aux énergies proches de l'énergie incidente, et par une distribution angulaire qui favorise fortement les petits angles. Entre ces deux régions, on observe une composante caractérisée par une évolution douce de la section efficace en fonction de l'énergie et par une distribution angulaire intermédiaire. La distribution angulaire de cette composante est orientée vers l'avant, mais beaucoup moins focalisée que celle de l'interaction directe. Il s'en suit que cette région témoigne de la présence d'un mécanisme de réaction où le noyau garde une partie de la mémoire de la voie d'entrée. Ceci implique un temps d'interaction intermédiaire entre celui du modèle du noyau composé et celui de l'interaction directe. Cette composante est généralement attribuée au processus dit « du prééquilibre ». L'idée à la base de l'approche théorique à ce processus est que des particules peuvent être émises au moment de chacune des multiples collisions conduisant vers le noyau composé excité et avant que celui-ci atteigne son équilibre. Du point de vue de calcul, il s'agit d'un problème complexe du système hors d'équilibre thermique.

2.3 Modèle optique

Aujourd'hui la plupart de codes de calcul des réactions nucléaires se basent sur le modèle optique et intègrent les modèles des différents mécanismes de réactions dans une description complexe. Dans ce modèle, toute particule incidente et sortante se trouve dans un potentiel moyen nucléaire. L'interaction directe est décrite à partir de la collision de la particule

incidente avec un nucléon dans ce potentiel. La partie imaginaire du potentiel traite, en première approximation, l'absorption des particules par le noyau. Cette absorption peut être comprise comme l'atténuation de l'onde incidente au profit des mécanismes de réactions aboutissant au noyau composé. Il existe plusieurs modèles utilisés pour traiter l'étape du prééquilibre, parmi lesquelles le modèle d'excitons et le modèle MSD/MSD (Multi-Step Direct / Multi-Step Compound). La méthode Monte-Carlo est aussi utilisée pour calculer aussi bien l'émission du prééquilibre que la phase de décroissance statistique. L'évaporation des particules du noyau composé est traitée par différents modèles statistiques [3].

2.4 Caractéristiques essentielles des sections efficaces (n, xn)

Le seuil des sections efficaces des réactions (n, xn) est approximativement égal à $(x-1)E_s$, où E_s est l'énergie de séparation d'un nucléon de l'isotope cible. La seule exception à cette règle est la diffusion inélastique, qui peut être comprise comme le cas spécial de la réaction (n, xn) avec $x=1$. Le seuil de la diffusion inélastique est égal à l'énergie du premier état excité de l'isotope en question, à l'énergie du recul près. Pour toute réaction (n, xn), la section efficace croît avec l'énergie du neutron incident, atteint un maximum et commence à décroître à l'énergie où s'ouvre et commence à concourir le canal avec un neutron émergent de plus. La figure 2.1 représente l'exemple des sections efficaces des réactions $^{208}\text{Pb}(n, xn)$ jusqu'à $x=4$ de la base de données ENDF/B-VI.8 de 1996 [10].

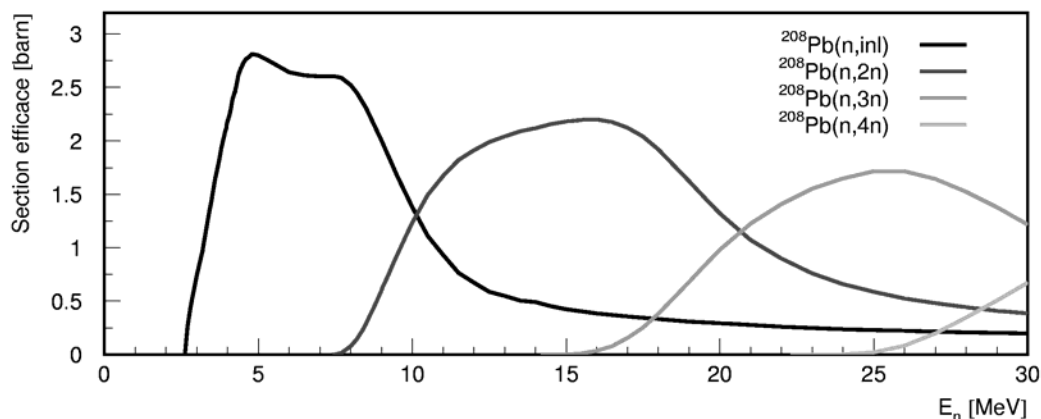


Figure 2.1 : Section efficace des réactions $^{208}\text{Pb}(n, xn)$ jusqu'à $x=4$.

2.5 Le code théorique TALYS

Le code de calcul et de prédiction TALYS, développé par une équipe dirigée par A. J. Koning [5], traite les réactions nucléaires dans le domaine d'énergies de 1 keV à 200 MeV. Dans le cadre du modèle optique, des nombreux modèles de mécanismes des réactions nucléaires sont intégrés pour calculer avec précision les différentes étapes de la réaction nucléaire. Le schéma de calcul de TALYS est représenté dans la figure 2.2. Les modèles optiques pour tous les

nuclides traitent la diffusion élastique et fournissent les sections efficaces pour les interactions directes, ainsi que les coefficients de transmission pour les mécanismes menant vers le noyau composé. Les paramètres de structure nucléaire tels que les abondances, les niveaux discrets, les déformations, les masses, la densité de niveaux, les résonances, les barrières de fission etc. proviennent surtout de la base de données IAEA RIPL [6]. Le mécanisme du noyau composé est traité par la théorie de Hauser-Feshbach, ainsi que par d'autres modèles pour les corrections des fluctuations des largeurs de résonances. La compétition de la fission est comprise pour les noyaux fissiles. La phase de prééquilibre est traitée par le modèle d'excitons et par le modèle MSD/MSD (Multi-Step Direct / Multi-Step Compound). Les réactions multiples dans la phase de prééquilibre incluent la compétition de la fission pour les noyaux fissiles.

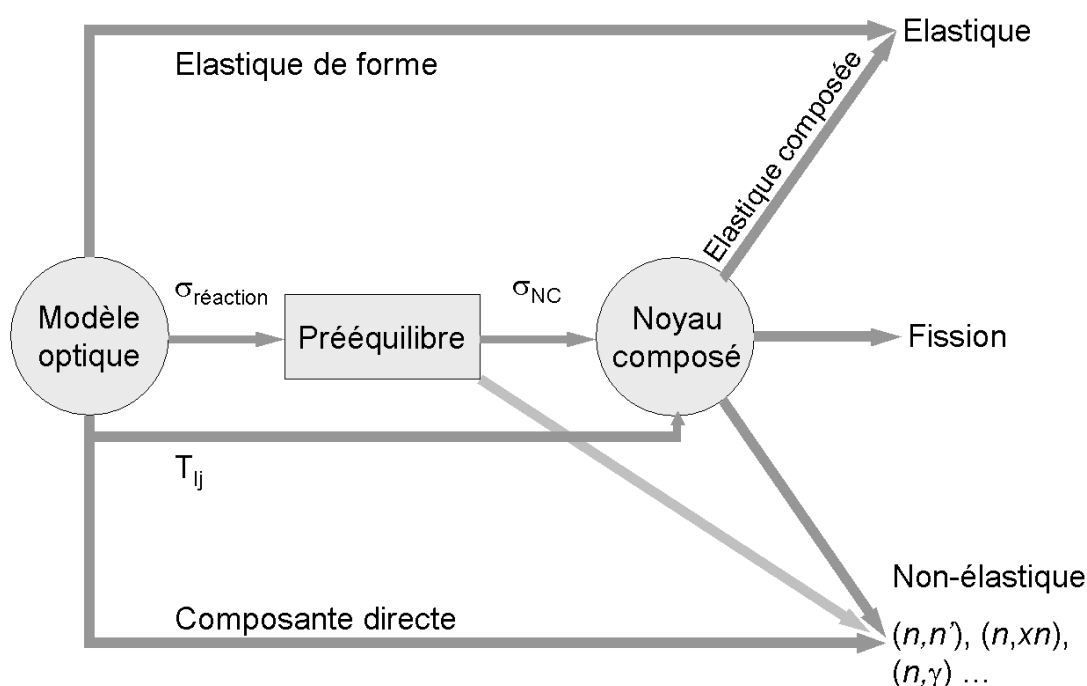


Figure 2.2 : Schéma de calcul des sections efficaces par le code TALYS [7].

Le code est conçu pour la prédiction des caractéristiques des réactions dans les régions qui ne sont pas couvertes par les bases de données expérimentales existantes. A la sortie, les données détaillées sont produites sur tous les canaux ouverts. Les sections efficaces totales, élastiques et inélastiques sont calculées, ainsi que pour tous les canaux exclusifs tels que (n,xn) , (n,p) , (n,na) etc. Les distributions angulaires des particules sortantes, ainsi que les sections efficaces pour la production du rayonnement γ continu et discret sont, aussi, calculées en détail. Des fichiers sont produits avec les spectres, distributions angulaires, sections efficaces etc.

La caractéristique du code TALYS importante pour l'analyse des résultats de mesures effectuées par spectroscopie γ est la possibilité de calculer la production des transitions γ du noyau résiduel. Ceci permet la comparaison directe des résultats expérimentaux aux calculs, ainsi que l'évaluation des sections efficaces totales pour la production des noyaux résiduels à partir des sections efficaces pour les transitions γ .

2.6 Analyse de la production mesurée du rayonnement γ provenant des réactions (n,xn)

En général, lors des réactions (n,xn) , le noyau résiduel reste en état excité, d'où il décroît par une cascade de transitions γ . Cette cascade représente le dernier stage de la désexcitation du noyau composé. Les nombreux niveaux élevés décroissent surtout vers les niveaux les plus bas avant de décroître vers l'état fondamental. En mesurant l'émission du rayonnement γ en fonction de l'énergie des neutrons, on arrive aux sections efficaces partielles pour les transitions en question, c'est-à-dire pour les réactions $(n,xn\gamma)$. A partir des sections efficaces partielles $(n,xn\gamma)$, la section efficace totale pour la production du noyau résiduel doit être déduite à l'aide des calculs théoriques. Ces calculs reviennent à l'estimation de la contribution des cascades qui ne passent pas par les transitions mesurées, ainsi que des réactions (n,xn) lors desquelles le noyau résiduel reste en état fondamental.

Lorsque le noyau résiduel est pair – pair, la transition du premier état excité vers l'état fondamental représente souvent l'aboutissement de plus de 90% des cascades induites. La spectroscopie γ en ligne est particulièrement adéquate dans ce cas. La manière la plus simple d'évaluer la section efficace totale pour la réaction (n,xn) est de calculer le rapport entre la section efficace (n,xn) et la section efficace partielle $(n,xn\gamma)$ et de multiplier la section efficace mesurée $(n,xn\gamma)$ par ce rapport.

L'analyse des données pour les autres transitions que celle du premier état excité peut confirmer la fiabilité du calcul et contribuer à la précision des sections efficaces déduites.

REFERENCES :

- [1] N. Bohr, *Neutron Capture and Nuclear Constitution*, Nature **344** (1936) 137
- [2] J. R. Oppenheimer, M. Phillips, *Note on the Transmutation Function for Deuterons*, Physical Review **48** (1935) 500
- [3] L. Valentin, *Noyaux et particules*, Hermann, (1989)
- [4] Cross Section Evaluation Working Group, *ENDF/B-VI Summary Documentation*, Report **BNL-NCS-17541 (ENDF-201)** (1991), edited by P.F. Rose, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, USA. Evaluation de août 1996.
- [5] A. J. Koning, *Upgrading JEFF-3 With TALYS*, Réunion JEFF du 24 au 26 avril 2002, Aix-en-Provence, France
- [6] T. Belgya et al., *Reference Input Parameter Library RIPL-2 – Handbook for Calculations of Nuclear Reaction Data*, Final report of a coordinated research project, IAEA – TECDOC, <http://www-nds.iaea.org/ripl/>, 2004
- [7] S. Hilaire, Communication privée.

Chapitre 3

Dispositif Expérimental

3 Dispositif expérimental

Dans ce chapitre le dispositif utilisé pour la mesure des sections efficaces est décrit. La production du faisceau de neutrons est expliquée, et ses caractéristiques sont présentées. La salle de mesure et la cible de plomb sont décrites par la suite, ainsi que le détecteur HPGe CLOVER utilisé pour la spectroscopie γ . La dose des neutrons rapides reçue par le détecteur est estimée. Les difficultés de la spectroscopie γ en présence du flash γ sont abordés, et leur solution par les méthodes numériques est brièvement introduite afin d'être décrite en détail dans le chapitre suivant.

3.1 Faisceau délivré par GELINA

Les mesures ont été effectuées à l'IRMM (Institute for Reference Measurements and Materials) Geel, en Belgique, avec un faisceau de neutrons généré par GELINA (Geel Electron LINear Accelerator) au mois de mars 2003.

GELINA est un accélérateur linéaire d'électrons de 70-140 MeV utilisé pour produire les neutrons dans une cible rotative d'uranium [22]. Les rayons γ de freinage d'électrons (« Bremsstrahlung ») dans la cible provoquent les réactions photo-nucléaires (γ, n) et (γ, f) par lesquelles les neutrons sont émis. La cible est entourée du modérateur pour atténuer le flux de

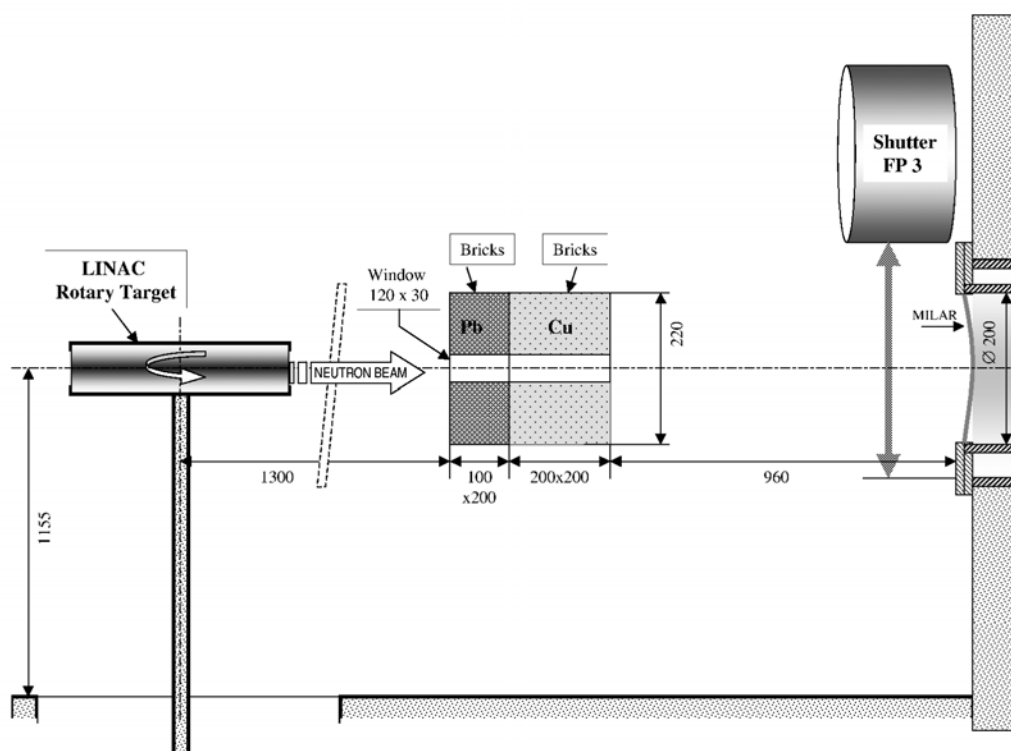


Figure 3.1 : Schéma de la salle de production des neutrons avec la cible rotative d'uranium, le collimateur double Pb/Cu, l'obturateur du faisceau de neutrons et l'entrée de la piste de vol évacuée et protégée par une fenêtre en mylar.



Figure 3.2 : Piste de vol numéro 3 avec les cabanes qui servent de salles d'expérience. La cabane en avant est celle utilisée pour notre expérience.

neutrons dans les directions autres que la direction horizontale. Un collimateur double Pb/Cu est placé entre la cible d'uranium et l'entrée de la piste de vol (Figure 3.1). Ce collimateur assure que seuls les neutrons émanant directement de la cible, qui ne sont pas retardés par le modérateur, pénètrent la piste de vol.

Plusieurs faisceaux de neutrons sont ainsi produits dans différentes directions. Les 16 pistes de vol sont disposées radialement autour de la source et se prolongent à l'extérieur de la salle de la cible. Le long des pistes de vol, des cabanes qui servent de salles d'expérience sont installées à des distances différentes, entre 8 m et 400 m (Figure 3.2).

Le faisceau d'électrons est pulsé, avec une fréquence de 800 Hz. La durée de la bouffée d'électrons est d'une nanoseconde grâce au système de compression magnétique [23]. Cette durée courte permet une excellente résolution en temps de vol et, par conséquent, en énergie des neutrons. L'impact des électrons sur la cible d'uranium induit une impulsion électrique dans un « pick up » magnétique. Cette impulsion repère le moment « t_0 » de la création des neutrons et est transmise aux salles d'expérience et aux salles de contrôle pour faciliter la mesure du temps de vol des neutrons.

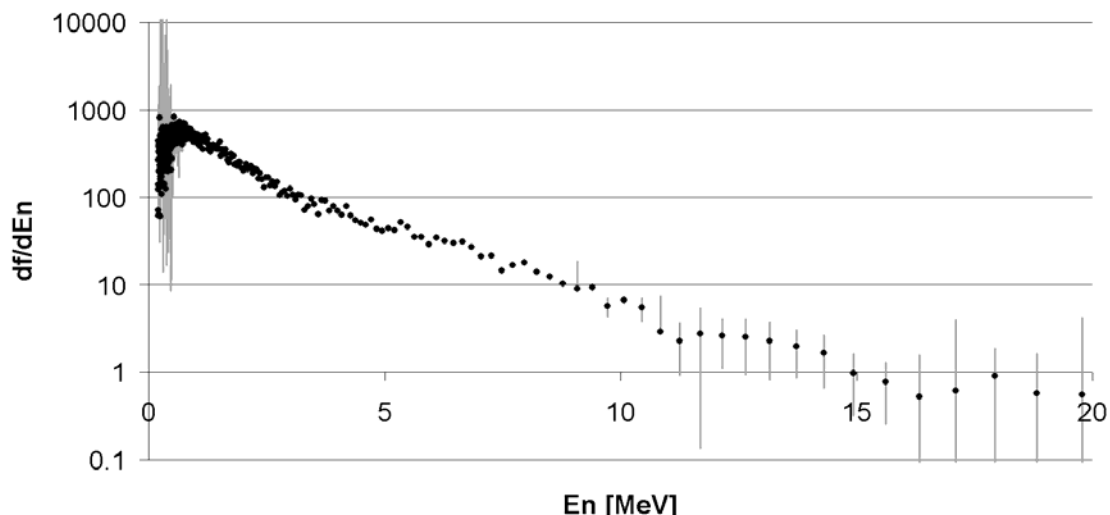


Figure 3.3 : La forme du flux différentiel de neutrons mesuré par la chambre de fission

Le spectre d'énergie de neutrons atteint son maximum dans l'intervalle de 1 à 2 MeV. A 20 MeV, le flux de neutrons est réduit de trois ordres de grandeur par rapport à celui à 2 MeV. La figure 3.3 représente la forme du flux des neutrons mesurée à l'aide d'une chambre de fission placée dans la salle d'expérience à 100 m de la source des neutrons (Figure 3.4). Si on souhaite mesurer les interactions de neutrons de basses énergies, il est possible de modifier la forme du flux à l'aide d'un modérateur placé dans le passage de neutrons.

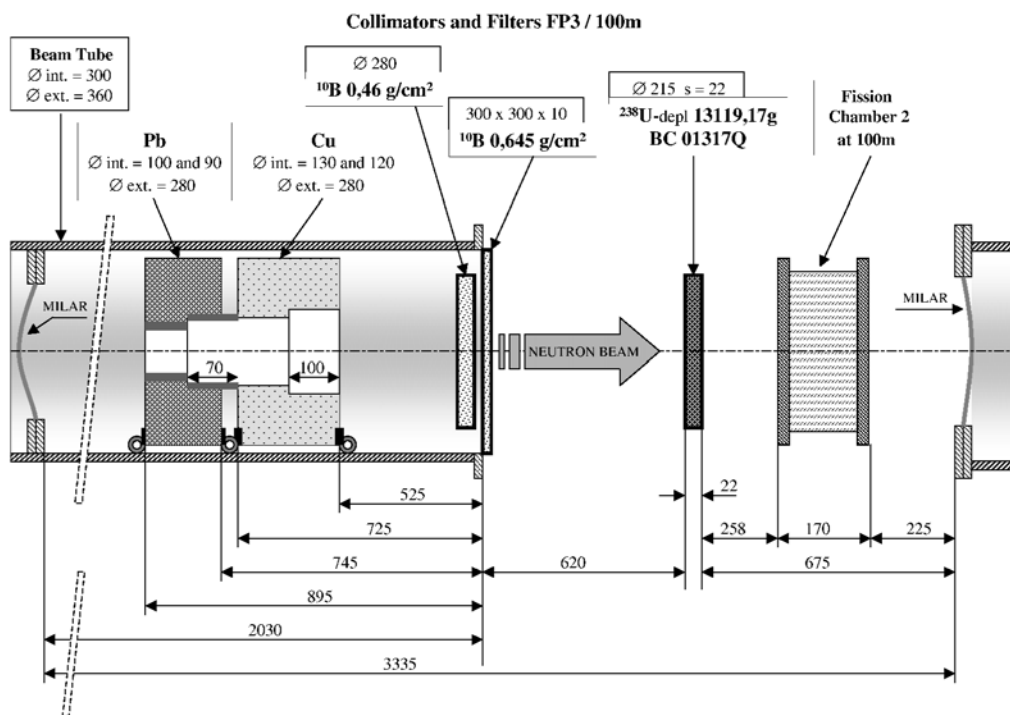


Figure 3.4 : Les collimateurs, les filtres et la chambre de fission dans la salle à 100 m.

Les filtres en ^{10}B visibles dans la figure servent à absorber les neutrons avec l'énergie

inférieure à 130 eV dont le temps de vol est supérieur à la période du faisceau et qui se mélangeraient avec les neutrons rapides de l'impulsion suivante. La transmission des neutrons avec l'énergie inférieure à 130 eV à travers ce filtre est de 1,9%, tandis que la transmission des neutrons avec l'énergie supérieure à 1 MeV est de plus de 80% [24].

La fonction du filtre en uranium sera expliquée dans la section 3.5.

3.2 La salle de mesure

La salle utilisée pour notre expérience, était située à 200 m de la source des neutrons, sur la piste numéro 3. Le diamètre du collimateur à travers lequel le faisceau est introduit dans la salle est 6 cm. Le collimateur est fait en cuivre, paraffine et plomb (Figure 3.5). Un mur additionnel en briques de plomb, avec l'ouverture pour le passage de neutrons, est placé après le collimateur pour arrêter le rayonnement γ créé par les neutrons dans le collimateur.

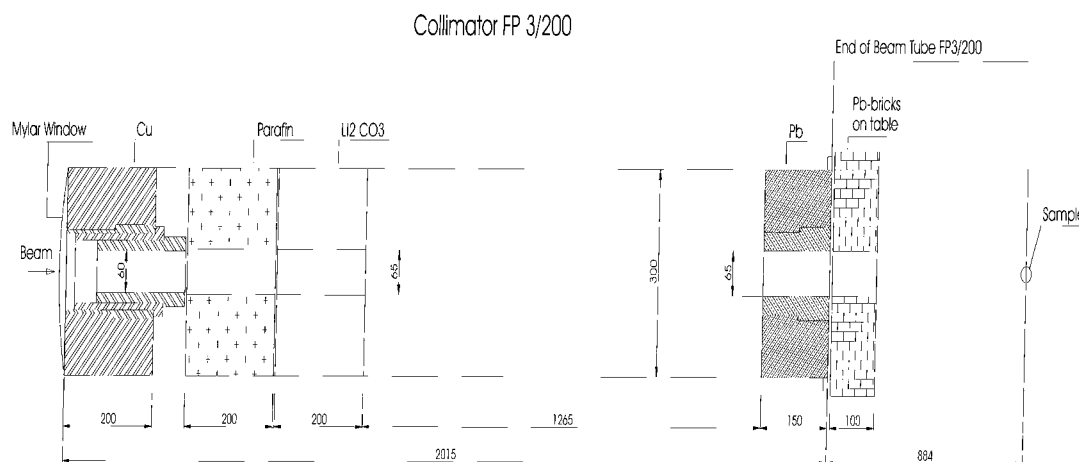


Figure 3.5 : Collimateur dans la salle à 200 m.

La distance de 200 m permet d'établir l'énergie des neutrons avec une bonne précision en utilisant la méthode du temps de vol. Par exemple, une incertitude de 20 ns dans le temps de vol implique une incertitude de 0,25 MeV sur l'énergie de neutrons de 20 MeV et de 0,003 MeV sur l'énergie de neutrons de 1 MeV. Le flux de neutrons y est toujours suffisamment fort pour que le détecteur qui était utilisé pour cette expérience, détecte 20 rayons γ par seconde induits dans la cible par les neutrons.

Le diamètre de la cible de plomb naturel que nous avons utilisée était de 6 cm, et son épaisseur de 6 mm. La composition isotopique du plomb naturel est représentée dans le tableau 3.1.

Tableau 3.1 : Composition isotopique du plomb naturel

Isotope	^{204}Pb	^{206}Pb	^{207}Pb	^{208}Pb
%	1,4	24,1	22,1	52,4

3.3 Le détecteur

Le détecteur CLOVER [25] est un assemblage de quatre cristaux HPGe coaxiaux montés très proche l'un de l'autre dans une capsule en aluminium sous vide (Figure 3.6). Pour minimiser le matériel qui les entoure, les cristaux sont tenus par l'arrière, par les barres métalliques. Les mêmes barres servent de contact thermique avec l'azote liquide pour refroidir les cristaux. La distance entre les cristaux est d'environ 0,2 mm. Si l'énergie d'un rayon incident est déposée dans plusieurs cristaux par l'effet Compton, elle peut être retrouvée à partir des fractions déposées dans chaque cristal. Ainsi l'efficacité pour la déposition de l'énergie totale est supérieure à la somme des efficacités des quatre cristaux. En même temps, la segmentation diminue la perte des événements due à l'empilement des impulsions lors de l'impact du faisceau.

Les transitions γ analysées dans cette expérience comprennent des transitions magnétiques dipolaires (M1), et les transitions électriques quadripolaires (E2) et octupolaires (E3). La distribution angulaire des transitions octupolaires peut être exprimée comme la série de Legendre contenant les éléments jusqu'au sixième ordre. L'intégration précise de la distribution angulaire dans une mesure absolue nécessiterait deux détecteurs à deux angles correspondant aux zéros du polynôme de Legendre du quatrième ordre ($\sim 30^\circ$ et $\sim 70^\circ$) [24]. Puisque notre objectif n'était qu'une mesure relative avec la statistique et la précision limitée,

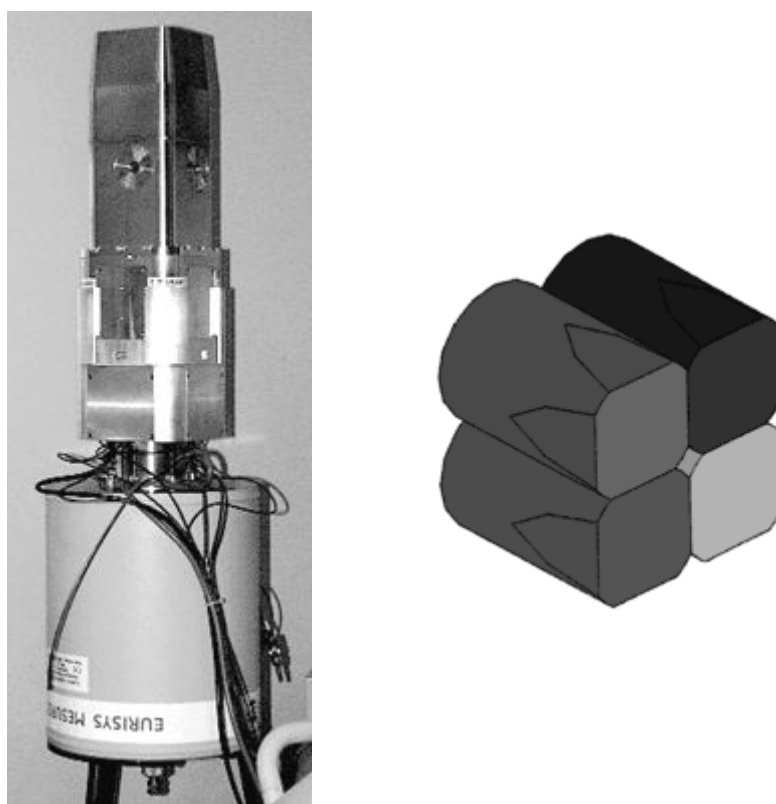


Figure 3.6 : Le détecteur CLOVER avec son cryostat (gauche) et la configuration des 4 cristaux d'un détecteur CLOVER (droite).

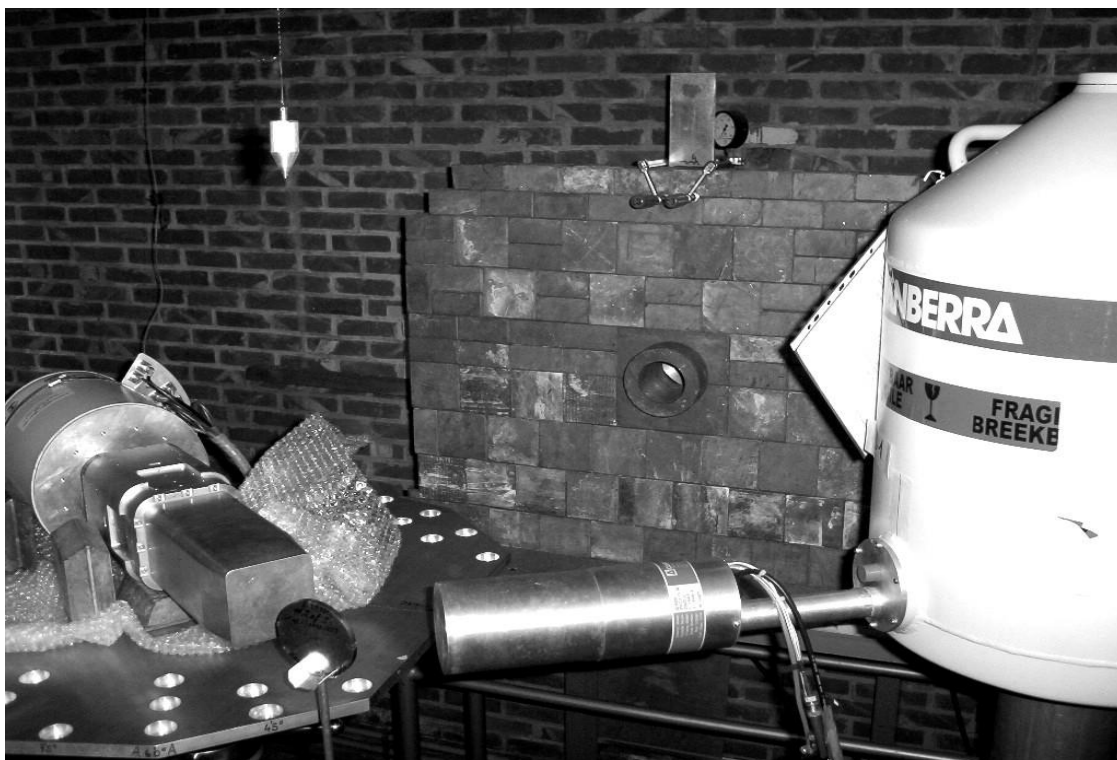


Figure 3.7 : La cible de plomb avec les détecteurs et le collimateur.

nous avons utilisé un seul détecteur, placé sous un angle de 135° par rapport au faisceau. Pour une transition particulière, l'intégration de la distribution angulaire est contenue dans la normalisation de la courbe relative à l'aide du calcul théorique. Des erreurs systématiques dues à l'anisotropie des transitions peuvent être attendues uniquement lors de la comparaison des courbes des transitions avec des multipolarités différentes. Nous reviendrons à ce point lors de la discussion des résultats.

La distance entre le détecteur et la cible était de 12 cm. Cette distance permet d'avoir une bonne efficacité tout en évitant d'exposer le germanium au flux de neutrons élevé. La figure 3.7 représente la photographie de la cible de plomb avec deux détecteurs HPGe dont l'un était utilisé pour ce travail. La cible est montée sur un support et centrée par rapport au faisceau. Le détecteur CLOVER utilisé pour ce travail se trouve à gauche, juste derrière la cible, sur une table octogonale. Le détecteur à droite est un HPGe gros volume qui n'était pas utilisé dans cette expérience. Au fond de la salle se trouve le mur en briques de plomb avec l'ouverture pour le passage des neutrons. Le collimateur se trouve derrière le mur de plomb.

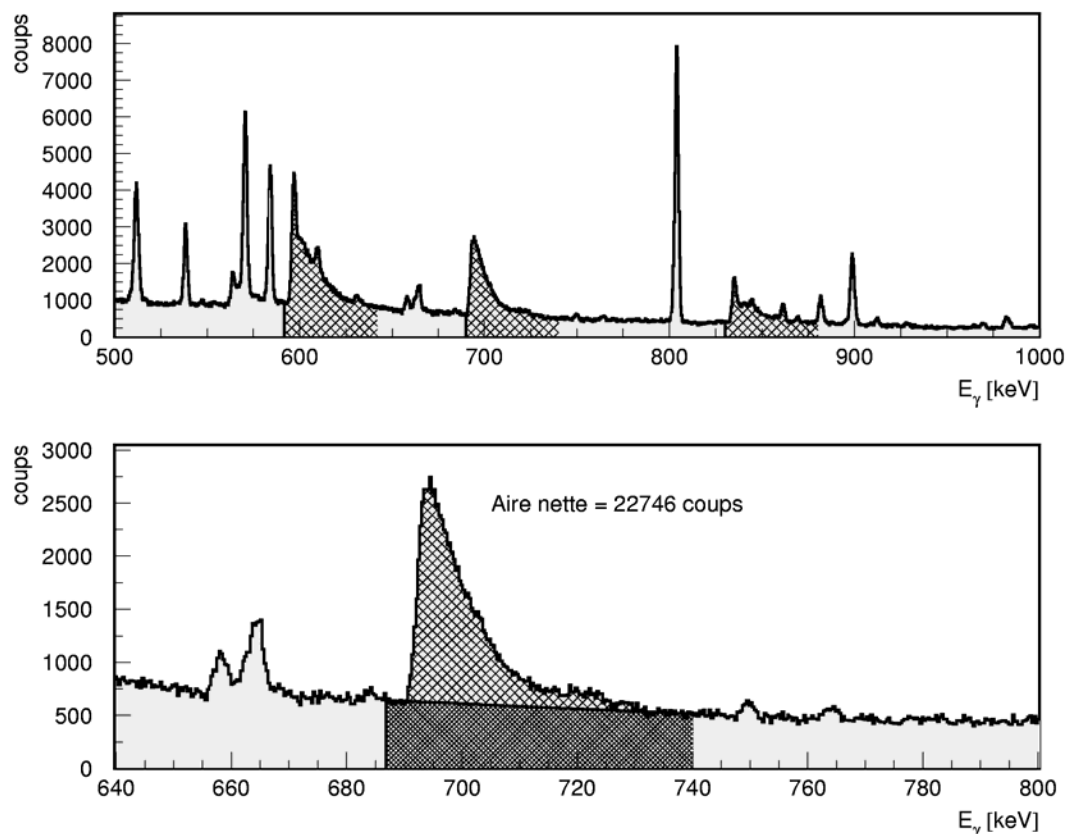


Figure 3.8 : Raies triangulaires créées par la diffusion inélastique de neutrons sur les noyaux du germanium dans le volume du détecteur (Haut). Raie triangulaire à 693 keV utilisée pour l'estimation de la dose de neutrons reçue par le détecteur (Bas).

3.4 Diffusion de neutrons rapides dans le détecteur

La diffusion de neutrons rapides ($E_n > 1$ MeV) sur les noyaux de germanium crée des défauts du réseau cristallin dont l'accumulation provoque la perte de résolution et d'efficacité du détecteur. La réduction des performances est normalement observée après une irradiation intégrale de 10^9 neutrons/cm² [26] [27].

Lors des diffusions inélastiques de neutrons dans le cristal, les noyaux de germanium se désexcitent par l'émission de rayons γ caractéristiques. En même temps, lors de son recul, le noyau produit davantage de charge qui se rajoute à la charge produite par le rayon γ de désexcitation. Ainsi la raie d'effet photoélectrique de ces rayons γ subit un élargissement vers les énergies supérieures et acquiert une forme triangulaire (Figure 3.8) [28].

Le nombre total de neutrons par cm² qui ont traversé la jonction de la diode Ge, pendant l'acquisition, peut être calculé à partir de l'aire de la raie triangulaire à 693 keV (Figure 3.8 – bas) selon la formule simple [28] :

$$N_{tot/cm^2} \approx 300 \frac{N_{693}}{V} \quad (3.1)$$

Ici, N_{693} est le nombre de coups dans la raie de 693 keV, et V est le volume actif du détecteur en cm^3 . Dans le détecteur utilisé dans notre expérience, la dose était de $1,6 \times 10^4$ neutrons par cm^2 pendant 85 heures d'acquisition. La dose que le détecteur pourrait accumuler pendant plusieurs dizaines ou centaines d'heures d'une expérience prolongée, demeure très inférieure à la dose où la détérioration de la performance du détecteur peut être aperçue.

3.5 Le flash

A chaque impulsion du faisceau, les rayons γ produits par le freinage des électrons parcourent la piste de vol à la vitesse de la lumière et précèdent les neutrons dans la salle d'expérience. Ils sont diffusés par la cible et détectés par les détecteurs. Ce « flash γ » permet d'effectuer le calibrage absolu de la mesure du temps de vol. Dans le spectre en temps des rayons γ par rapport au temps t_0 , le flash γ est représenté par un pic distinct correspondant au temps de vol de la lumière à travers la piste de vol de neutrons (Figure 3.9). Puisque le signal t_0 est transmis aux salles d'expérience et aux chambres de contrôle avec un retard introduit par les câbles, les valeurs des temps de détection mesurés par rapport au t_0 seront affectées par ce retard. La position du pic du flash γ permet de déterminer le retard et de calibrer ainsi la mesure du temps de vol.

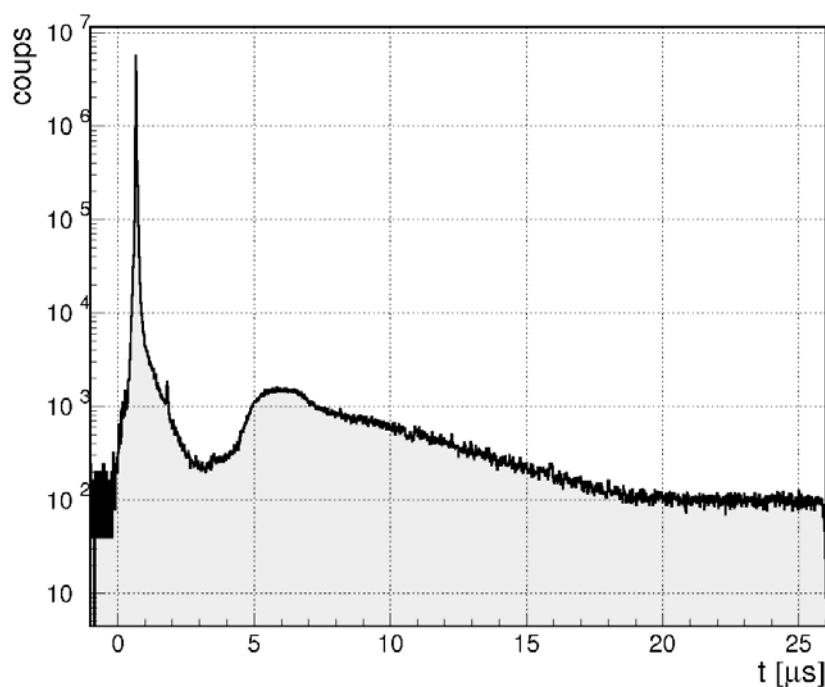


Figure 3.9 : Spectre en temps des rayons γ . Le pic provenant du flash γ est visible à gauche (0,662 μs), tandis que les rayons γ induits par les neutrons forment une bosse visible de 3 à 20 μs .

En même temps, le flash pose des difficultés techniques à la spectroscopie des rayons γ induits par les neutrons les plus rapides dont les impulsions sont empilées sur les queues des impulsions provenant du flash. Par exemple, les neutrons de 15 MeV arrivent 3 μs après le flash (voir appendice 1). Avec l'électronique classique, chaque fois qu'un rayon du flash γ est détecté, tous les rayons γ dans les 5 à 10 μs suivantes sont perdus, même avec un temps de mise en forme très court. Pour réduire l'intensité du flash γ , un filtre en uranium naturel de 36,8 g/cm^2 est posé dans la salle d'expérience à 100 mètres (Figure 3.4). La transmission du rayonnement γ de 500 keV par ce filtre est de $1,1 \times 10^{-3}$, tandis que la transmission des neutrons de 1 à 20 MeV varie de 0,47 à 0,58 [24]. Dans ces conditions, le flash γ était détecté une fois sur dix paquets du faisceau dans chacun des cristaux de CLOVER, ou une fois sur quatre paquets du faisceau dans l'ensemble du détecteur.

Comme l'objectif principal de cette expérience était la mesure des sections efficaces des réactions ($n,2n$), un temps mort de 5 μs était inacceptable. Le temps mort de 5 μs correspond à l'énergie de neutrons de 6 MeV (voir appendice 1), ce qui est au-dessous du seuil des réactions ($n,2n$). Même si la perte d'impulsions serait de l'ordre de 10%, il nous a été important de trouver une solution pour réduire considérablement le temps mort par impulsion afin que la méthode soit applicable avec un flash plus intense comme, par exemple, à n_TOF. La solution a été trouvée dans l'utilisation des techniques numériques de traitement du signal du détecteur. Le chapitre suivant décrit les principes essentiels, ainsi que les méthodes développées et l'instrumentation utilisée dans notre travail.

REFERENCES :

- [22] J-M. Salomé et R. Cools, *Neutron producing targets at GELINA*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **179** (1981) 13-19
- [23] D. Tronc et al., *A new pulse compression system for intense relativistic electron beams*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **228** (1985) 217-227
- [24] L. C. Mihailescu et al., *A new HPGe Setup at GELINA for Measurement of Gamma-Ray Production Cross-Sections from Inelastic Neutron Scattering*, Accepté pour publication dans Nuclear Instruments and Methods A.
- [25] <http://www.canberra.com/products/1112.asp>
- [26] H. W. Kraner et al., *Fast Neutron Radiation Damage of High-Purity Germanium Detectors*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **22** (1975) 149
- [27] T. W. Raudorf et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-31** (1984) 253
- [28] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd edition, John Wiley & Sons, New York, 2000

Chapitre 4

Méthodes numériques de traitement d'impulsions

4 Méthodes numériques de traitement d'impulsions

Les méthodes numériques de traitement d'impulsions comprennent l'échantillonnage des signaux des détecteurs directement à la sortie du préamplificateur au taux qui peut atteindre plusieurs dizaines ou centaines de millions d'échantillons par seconde et le traitement des données ainsi obtenues afin d'en extraire les quantités d'intérêt telles que la hauteur et le temps de détection des impulsions.

Dans sa conception, la technique de la spectroscopie numérique est très parallèle à celle de la spectroscopie analogique. Les séries d'échantillons sont traitées dans deux « voies », qu'on peut nommer la voie « rapide » et la voie « lente », comme dans la technique classique. Dans la voie rapide les impulsions sont intégrées pour filtrer le bruit, différenciées pour obtenir des impulsions courtes, le temps d'arrivée des impulsions est extrait et le contrôle d'empilement est effectué. Dans la voie lente les impulsions sont mises en forme, le bruit est filtré, et la hauteur des impulsions est mesurée. Toutes ces opérations sont effectuées numériquement sur les échantillons.

Les méthodes numériques offrent plusieurs avantages sur les méthodes analogiques. Une fois échantillonnés, les signaux ne subissent pas de détériorations ultérieures. Le traitement numérique n'introduit pas de bruit. Ensuite, les filtres numériques sont plutôt faciles à concevoir et offrent davantage de souplesse. Le choix de formes qui peuvent être données aux impulsions est beaucoup plus large. Finalement, si le système est saturé, le temps de son rétablissement dépend du préamplificateur plutôt que du circuit de la mise en forme qui est, en règle générale, assez lent [1][2].

Dans ce travail, les méthodes numériques ont été développées et utilisées surtout parce que la flexibilité des filtres de mise en forme numérique permet de réaliser un excellent compromis entre le haut taux de comptage et la résolution en énergie. Dans le développement des méthodes, l'inspiration a été souvent trouvée dans les conceptions classiques utilisées avec les méthodes analogiques, telles que la compensation de l'amplitude et du temps de montée (Amplitude and Risetime Compensation – ARC, [28], [4]) pour le calcul du temps. Le travail existant dans le domaine du traitement numérique a été, aussi, consulté ([5]–[10]). Des différentes idées et méthodes existantes ont été testées et, dans certains cas, adaptées et utilisées.

4.1 *Filtres numériques*

Le traitement des signaux numériques décrit dans ce travail a été fait hors ligne, à l'aide des logiciels que nous avons développés dans ce but. Pourtant, la discussion des algorithmes du traitement sera toujours orientée vers une conception adaptée à l'application en ligne avec l'objectif de contribuer au développement des modules de traitement en ligne. Ces objectifs nous contraignent à utiliser les filtres linéaires, et de les appliquer d'une manière réursive.

L'échantillonnage du signal résulte en une série v_n de valeurs numériques de la tension à la sortie du détecteur. En général, un filtre numérique transforme la série v_n en une série u_n à l'aide de la combinaison d'opérations caractéristiques du filtre.

Un filtre est *linéaire* si la réponse à une somme de plusieurs séries entrantes est égale à la somme des réponses correspondantes à chacune des séries entrantes [2] :

$$\begin{aligned} v_n^1 &\rightarrow u_n^1 \\ v_n^2 &\rightarrow u_n^2 \\ &\Rightarrow \\ a_1 v_n^1 + a_2 v_n^2 &\rightarrow a_1 u_n^1 + a_2 u_n^2 \end{aligned} \tag{4.1}$$

Un filtre est *invariant en temps* si la réponse à une série entrante ne dépend pas d'un décalage éventuel de la série entrante d'un certain nombre de points [2] :

$$\begin{aligned} v_n &\rightarrow u_n \\ v_{n-k} &\rightarrow u_{n-k} \end{aligned} \tag{4.2}$$

Tout filtre numérique qui satisfait la condition de linéarité et de l'invariance de temps peut être représenté par une convolution discrète de la série d'échantillons avec une série h_n (*fonction de réponse du filtre*) [2].

$$u_n = h_n * v_n = \sum_{k=-\infty}^{k=n} h_{n-k} v_k \tag{4.3}$$

La fonction h_n est caractéristique du filtre et elle le décrit complètement (ibid.). Si la série entrante est la série « delta »,

$$\delta_n = \begin{cases} 1 & ; \quad n = 0 \\ 0 & ; \quad n \neq 0 \end{cases} \tag{4.4}$$

la réponse du filtre, $h_n * \delta_n$, est égale à la série h_n , d'où la série h_n tire le nom *fonction de réponse du filtre*.

Les filtres numériques peuvent souvent être conçus de la manière qui permet leur application récursive, où u_{n+1} est obtenu à partir de u_n et d'un nombre limité des éléments récents de la série v_n par un petit nombre d'opérations arithmétiques. Le petit nombre d'opérations arithmétiques est souhaitable en vue d'une application en ligne à l'aide des circuits de calcul dédiés.

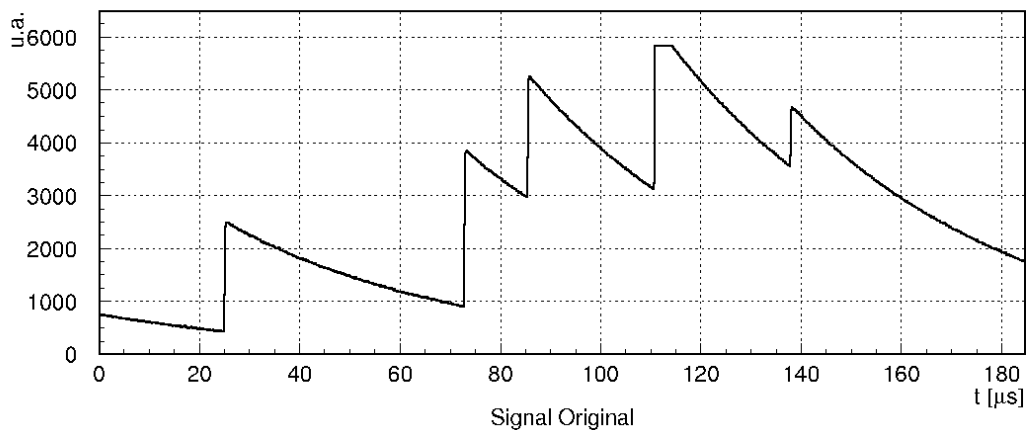


Figure 4.1 : Signal échantillonné à la sortie du préamplificateur du type RC d'un détecteur HPGe coaxial (un segment du détecteur CLOVER) irradié par des sources ^{60}Co et ^{152}Eu . Le temps de décroissance du signal était de $50 \mu\text{s}$, et le taux de comptage était de 20 k coups/s . Une brève saturation est visible à $110 \mu\text{s}$.

Même lors du traitement hors ligne effectué dans ce travail, l'application récursive est importante au vu des quantités énormes de données produites par l'échantillonnage des signaux. Les taux habituels sont de plusieurs dizaines de million de valeurs par seconde, ou plusieurs dizaines de milliers de valeurs par impulsion γ . Un traitement le plus rapide possible est, évidemment, souhaitable.

4.2 Formes des signaux des détecteurs HPGe

Un exemple du signal échantillonné à l'aide d'un module ADC rapide à la sortie du préamplificateur de type RC d'un cristal du détecteur HPGe CLOVER utilisé dans notre expérience est représenté dans la figure 4.1. Le temps de décroissance du signal est de $50 \mu\text{s}$, et le taux de comptage de 20.000 coups par seconde. Une brève saturation est visible à $110 \mu\text{s}$.

Les détails de forme les plus importants pour le traitement sont la durée et la forme de la montée, ainsi que la durée et la forme de la décroissance des impulsions. La décroissance des impulsions suit la loi exponentielle $v(t) = Ae^{-\frac{t}{\tau}}$ avec le temps de décroissance τ qui se situe, habituellement, autour de $50 \mu\text{s}$. La montée de l'impulsion varie en forme en fonction du lieu de l'interaction du rayonnement, selon la dynamique du transport des porteurs de charge dans le volume utile du détecteur. Pour un détecteur HPGe coaxial, tel qu'un cristal du CLOVER, les variations de forme sont très prononcées à cause du champ électrique non uniforme dans son volume qui implique une vitesse de propagation de porteurs de charge variable dans les différentes parties du volume utile. Le temps nécessaire pour qu'une impulsion atteigne sa pleine hauteur se situe, pour un détecteur coaxial, autour de 500 ns , mais subit de fortes variations et peut dépasser $1 \mu\text{s}$. Plusieurs formes de la montée dans un détecteur coaxial sont représentées dans la figure 4.2. A noter particulièrement la longueur exceptionnelle de la montée de l'une des impulsions. Des impulsions à la montée si longue proviennent des

interactions du rayonnement dans la proximité des bords du volume actif, où le champ électrique local est particulièrement faible et la collection de charge est ralentie [28].

4.3 Mesure du temps de détection

Le temps d'interaction du rayonnement avec le détecteur représente l'une des quantités physiques les plus importantes pour une large gamme d'applications. Dans l'expérience qui sera décrite dans les chapitres suivants, le temps de détection des rayons γ sera utilisé pour déterminer le temps de vol et, donc, l'énergie des neutrons qui les ont induits.

Dans l'approche la plus simple, l'algorithme d'extraction du temps d'interaction doit déterminer le point dans la série d'échantillons où la montée de l'impulsion commence. Si une encore meilleure précision est nécessaire, on essaie de calculer le moment entre les points échantillonnés qui correspond au commencement de la montée dans le signal original, avant l'échantillonnage.

4.3.1 Méthode du seuil

La méthode la plus directe pour déterminer le début d'une impulsion est de repérer le point où le signal dépasse un seuil prédéfini. Avant de pouvoir définir un seuil valable pour toute la série de données, il est nécessaire d'éliminer l'offset du signal. La façon de le faire, convenable pour le traitement en ligne est d'effectuer une différentiation selon l'équation suivante :

$$d_n = v_n - v_{n-l} \quad (4.5)$$

Ici, l représente le retard de la différentiation exprimé en nombre d'échantillons. Comme seule la montée de l'impulsion est importante pour la détermination du temps, il convient de choisir une valeur de l comparable au temps de montée habituel des impulsions.

Le problème bien connu de la méthode du seuil est que son résultat dépend de la pente initiale de l'impulsion. Ce problème peut être surmonté dans le cas d'un détecteur dont les montées d'impulsions ne varient pas beaucoup en forme. Il suffit alors d'établir la dépendance du temps mesuré en fonction de la hauteur de l'impulsion et d'effectuer la correction correspondante. Dans le cas d'un signal dont la forme de la montée présente des variations fortes, comme c'est le cas avec les détecteurs à germanium coaxiaux, la correction est impossible parce que les impulsions correspondant à une même énergie donnent des résultats différents, dépendant du point d'interaction. Cet effet est illustré dans la figure 4.2 sur l'exemple des impulsions provenant d'un détecteur HPGe CLOVER.

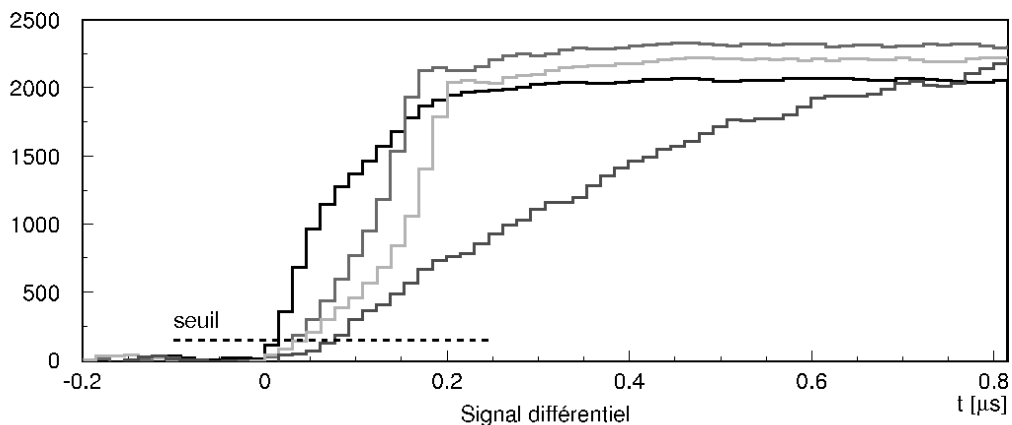


Figure 4.2 : Illustration de la dépendance du temps de la forme de l'impulsion dans la méthode du seuil. L'exemple montre quatre impulsions des hauteurs similaires, provenant d'un détecteur HPGe coaxial.

4.3.2 Méthode de compensation de l'amplitude et du temps de montée

La méthode de compensation de l'amplitude et du temps de montée ou « Amplitude and Risetime Compensation » (ARC, [4][28]) se base sur l'idée de repérer l'endroit où l'impulsion monte d'une manière linéaire, indépendamment de l'intensité de la pente, et sur une longueur suffisamment courte pour que seul le début de la montée soit pris en compte, avant que les variations de forme prennent effet. La technique est similaire à celle du « Constant Fraction Discriminator » (CFD). Pour y arriver, le signal est envoyé dans deux voies. Dans l'une des voies le signal est inversé tandis que dans l'autre voie il est retardé d'un temps de l'ordre de 10 % de la durée de montée de l'impulsion et multiplié par une constante k supérieure à l'unité (d'habitude 2 – 3).

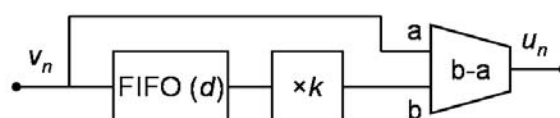


Figure 4.3 : Schéma de propagation de données dans la méthode ARC.

La figure 4.3 représente le schéma de propagation de données dans la méthode ARC numérique. L'élément dénoté « FIFO » représente la mémoire cyclique « First In – First Out » utilisée pour créer le retard de d échantillons. L'élément dénoté « $\times k$ » effectue la multiplication par la constante k . L'élément dénoté « b-a » calcule la différence des deux voies. Le signal synthétisé présente un lobe négatif au début et devient positif en passant par zéro (Figure 4.4). Le moment où le signal synthétisé croise le zéro représente la référence du temps d'interaction. Ce moment correspond, en effet, au moment où, pendant un temps fixe et égal au retard de la deuxième voie, le signal original croît d'un facteur égal au rapport d'intensités du signal dans les deux voies. Si une mesure plus fine que la période de l'échantillonnage est nécessaire, une interpolation du signal synthétisé peut être réalisée entre les points avant et après le passage par zéro.

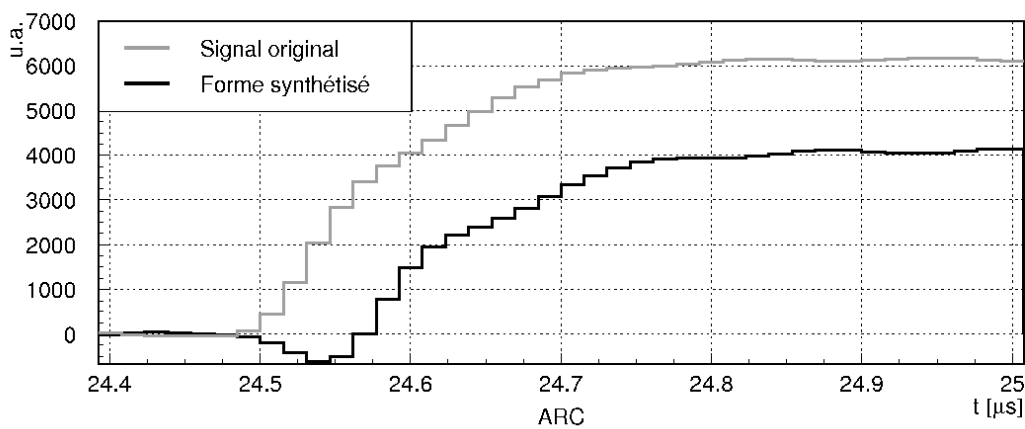


Figure 4.4 : Illustration de la méthode ARC. Comparaison du signal original avec le signal synthétisé.

La méthode ARC est très sensible au bruit électronique présent dans le signal échantillonné. Avant de l'utiliser pour calculer le temps des rayons γ , il est nécessaire d'effectuer une discrimination des impulsions afin de réduire la possibilité que la méthode ARC comprenne le bruit comme des impulsions. Pour réaliser la discrimination, le signal est, d'abord, intégré dans une deuxième voie, à l'aide d'une fenêtre mouvante de 500 ns :

$$w_n = \sum_{i=0}^l v_{n-i} \quad (4.6)$$

Ici, l est le nombre d'échantillons dans 500 ns. Ensuite, la méthode du seuil est appliquée à la série w_n . Lorsque la présence d'une impulsion est établie dans la série w_n , la méthode ARC peut être appliquée à la série v_n pour calculer le temps de l'impulsion avec précision.

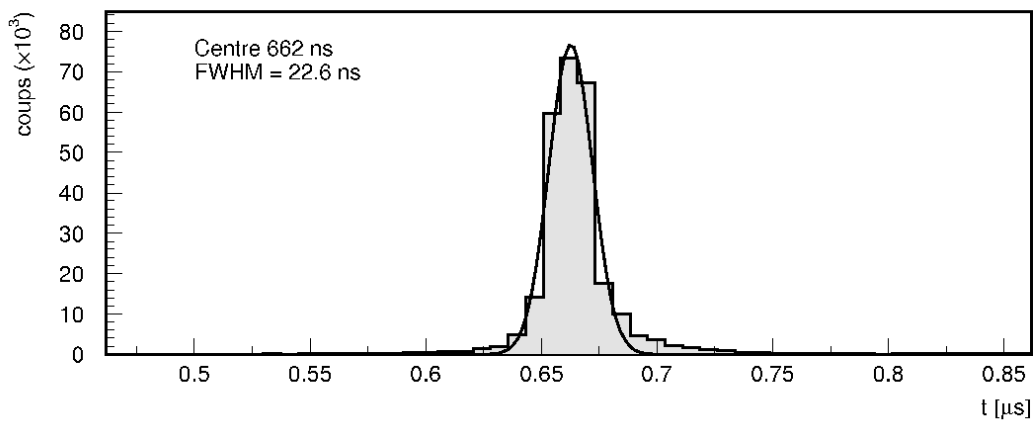


Figure 4.5 : La raie du flash γ dans le spectre en temps des rayons γ , pendant notre expérience, calculé à l'aide de la méthode ARC pour les rayons γ de 100 keV à 5 MeV. Grâce à l'interpolation du signal synthétisé, les canaux en temps sont d'une largeur égale à la moitié de la période de l'échantillonnage.

La figure 4.5 représente le pic du flash γ dans le spectre en temps des rayons γ obtenu à l'aide de la méthode ARC sous le faisceau. Le signal synthétisé a été interpolé entre les points avant et après le passage par zéro pour obtenir une précision deux fois plus fine que la période de l'échantillonnage. Les données proviennent d'un cristal du détecteur CLOVER pendant l'expérience.

Comme le démontre la figure 4.5, la résolution en temps est de 22 ns. Avec une bonne chaîne analogique, il est possible de descendre en dessous de 10 ns. Notre résultat est cependant satisfaisant pour deux raisons :

- comme nous l'avons vu, cette résolution en temps correspond, pour une base de vol de 200 m, à une résolution en énergie de neutron de 0,25 MeV à 20 MeV, ce qui est largement suffisant pour notre mesure
- L'échantillonnage était effectué avec un pas en temps de 15 ns. La résolution est donc de 1,5 fois le pas en temps. Des méthodes plus élaborées peuvent sans doute permettre d'obtenir une résolution inférieure au pas, mais il ne faut pas oublier que l'algorithme doit pouvoir être introduit dans la carte et tourner en temps réel, donc être relativement simple.

4.4 Calcul de l'énergie déposée - méthode de différence des valeurs moyennes corrigées

Dans la spectroscopie avec les détecteurs à germanium, la quantité physique qui donne l'information sur l'énergie déposée est la charge collectée sur les électrodes du détecteur. A la sortie du préamplificateur, où l'impulsion est échantillonnée, cette charge peut être déduite à partir de l'amplitude des impulsions.

La façon la plus directe d'extraire la hauteur des impulsions serait de calculer la différence entre la valeur moyenne des points après et avant la montée de l'impulsion. Il est nécessaire de choisir deux fenêtres de même largeur avant et après la montée, de calculer la valeur moyenne des points dans chacune d'elles, et de les soustraire l'une de l'autre (Figure 4.6). Ce concept de base sera utilisé même avec les méthodes plus sophistiquées de calcul de la hauteur des impulsions.

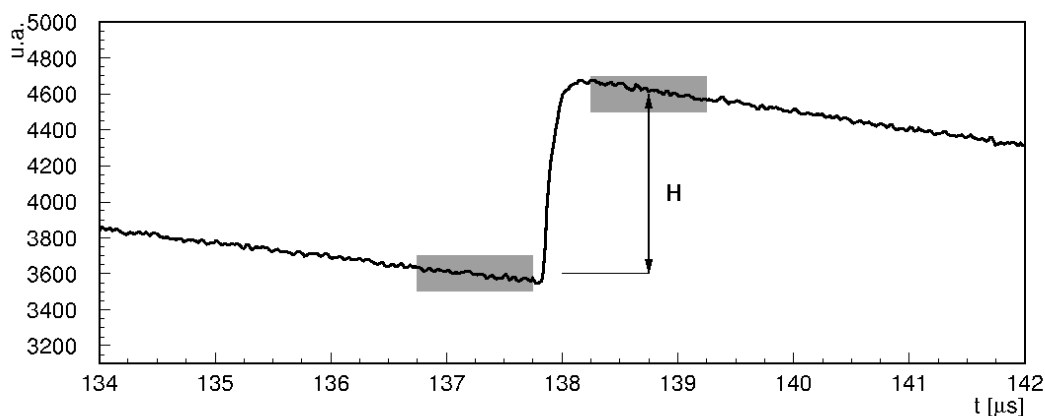


Figure 4.6 : Concept de base dans le calcul de la hauteur des impulsions. Les valeurs moyennes calculées dans les fenêtres illustrées par les surfaces grises sont soustraites l'une de l'autre.

Pourtant, tel qu'il est, ce concept sous-estime la hauteur de l'impulsion, parce que le signal décroît pendant le temps qui sépare les deux fenêtres. Cette erreur sera d'autant plus importante dans les cas où les impulsions sont empilées, ce qui introduira une dispersion des hauteurs calculées. Le temps de montée de 500 ns d'un HPGe coaxial nécessite de laisser au moins 500 ns entre les fenêtres, sans compter les largeurs des fenêtres qui augmentent la séparation effective de leurs centres. Avec le temps de décroissance de 50 μs , cela signifie une sous-estimation de la hauteur de l'ordre de 1% minimum et, par conséquent, la dispersion du même ordre de grandeur. Pour comparaison, notons que les dispersions habituelles des hauteurs des impulsions mesurées avec les détecteurs HPGe coaxiaux sont inférieures à 0,2%. Il est, donc, nécessaire de corriger les valeurs des plateaux en tenant compte de la décroissance exponentielle.

Une façon d'effectuer cette correction est illustrée dans la figure 4.7. La valeur moyenne dans la fenêtre avant la montée est multipliée par une constante qui décrit la décroissance que le signal subit pendant le temps égal à la distance entre les fenêtres.

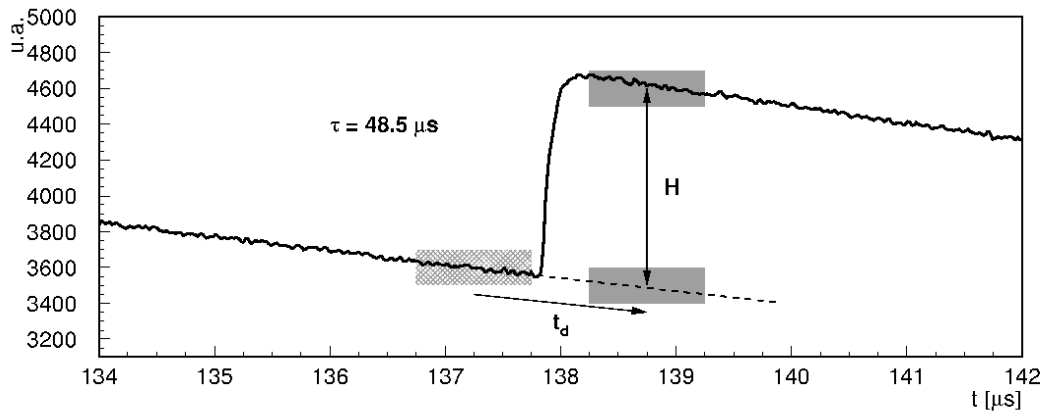


Figure 4.7 : Illustration du calcul de la hauteur de l'impulsion par la méthode des valeurs moyennes corrigées. La valeur moyenne dans la fenêtre avant la montée est multipliée par $e^{-t_d/\tau}$ et soustraite de la valeur moyenne dans la fenêtre après la montée.

Cette constante est $e^{-\frac{t_d}{\tau}}$, où t_d représente la distance en temps entre les centres des deux fenêtres et τ , le temps de décroissance du signal. Après cette multiplication, les valeurs moyennes des deux fenêtres sont soustraites l'une de l'autre pour obtenir la hauteur de l'impulsion corrigée. Le paramètre τ noté dans la figure a été obtenu en ajustant une loi exponentielle à la courbe entre 130.0 et 137.5 μs . La ligne barrée représente l'extrapolation de cette loi au-delà de la montée de l'impulsion.

Pour effectuer cette méthode en ligne, il convient de calculer la différence corrigée comme la série :

$$u_n = w_n^l - w_{n-k}^l e^{-\frac{kT_s}{\tau}} \quad (k > l), \quad (4.7)$$

où w_n^l représente la valeur moyenne dans une fenêtre de largeur l :

$$w_n^l = \frac{1}{l} \sum_{i=0}^{l-1} v_{n-i} \quad (4.8)$$

La constante T_s représente la période d'échantillonnage et le paramètre k représente le retard entre les fenêtres, exprimé en nombre d'échantillons, en sorte que $kT_s = t_d$. La différence $k-l$ représente l'espace entre les fenêtres. Il est, évidemment, important que cet espace soit suffisant pour que la montée de l'impulsion originale puisse intervenir entre les fenêtres.

Il reste à choisir la valeur de la série u_n qui correspond au moment où les fenêtres se trouvent en bonne position. Pour cela, il est nécessaire de faire appel à la méthode utilisée pour la discrimination des impulsions et pour la détermination du temps d'interaction.

Il est possible de concevoir un algorithme récursif pour la méthode des différences des moyennes corrigées. Pour la valeur moyenne de la série v_n dans une fenêtre de l points, l'expression récursive est :

$$w_n^l = w_{n-1}^l + \frac{1}{l}(v_n - v_{n-l}) \quad (4.9)$$

La division par l n'est pas indispensable parce qu'elle représente une constante multiplicative commune pour tous les termes de l'expression de la hauteur des impulsions qui nécessite un calibrage final en énergie. L'équation (4.7) est déjà simple et sa combinaison avec l'équation (4.9) est convenable pour l'application en ligne.

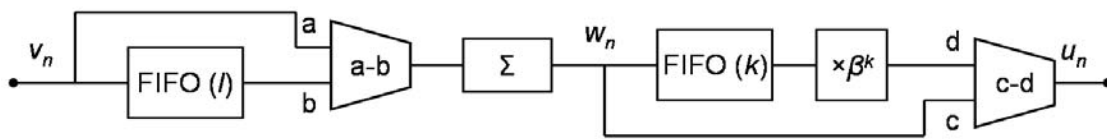


Figure 4.8 : Schéma de la propagation des données dans la méthode des valeurs moyennes corrigées.

La figure 4.8 représente le schéma de propagation de données dans la méthode des valeurs moyennes corrigées. L'élément dénoté « Σ » calcule continuellement la somme des valeurs entrantes. L'élément « $\times \beta^k$ » effectue la multiplication par la constante $\beta^k = e^{-\frac{kT_s}{\tau}}$.

Avant de calculer la somme « Σ », le signal est différencié avec un retard l à l'aide d'un élément FIFO de longueur l . Ainsi, toute valeur a rajoutée à la somme en est soustraite l pas plus tard. Dans le schéma, la valeur soustraite est dénotée b . Il s'ensuit que la somme calculée est la somme des l derniers échantillons. C'est la somme w_n des éléments dans la fenêtre mouvante. La série w_n est, ensuite, différenciée avec un retard k et avec la correction par multiplication de la valeur dans la voie retardée par le facteur β^k .

La méthode des valeurs moyennes corrigées peut être appliquée lorsque les impulsions sont suffisamment séparées l'une de l'autre en temps pour qu'une fenêtre entière puisse être positionnée entre eux, au début de la décroissance de la précédente, sans toucher la montée de la suivante. Le temps entre les deux événements détectés doit, donc, être égal ou supérieur au retard k entre les deux fenêtres. Les impulsions plus proches l'une de l'autre doivent être rejetées.

4.4.1 Valeurs Moyennes Corrigées – tests avec les sources

Plusieurs tests avec des sources ont été effectués afin d'évaluer les performances de la méthode et de démontrer l'influence des paramètres de la méthode sur la résolution en énergie. Un détecteur HPGe CLOVER a été irradié par les sources γ ^{60}Co et ^{152}Eu combinées, avec un taux de comptage de $4,6 \times 10^3$ coups/s et, ensuite, de $20,7 \times 10^3$ coups/s afin de tester les performances au faible taux ainsi qu'au fort taux de comptage. Pour les deux taux de comptage, le signal du détecteur a été échantillonné et enregistré sur un disque dur afin d'être

traité numériquement à l'aide du logiciel que nous avons écrit pour la méthode des valeurs moyennes corrigées. Ainsi, le traitement avec des paramètres différents a été appliqué toujours aux mêmes séries d'échantillons. Pour tous les jeux de paramètres la largeur à mi-hauteur (FWHM) a été déterminée pour la raie à 121,78 keV de ^{152}Eu pour quantifier la résolution aux basses énergies, ainsi que pour la raie à 1332,5 keV de ^{60}Co pour quantifier la résolution aux hautes énergies. Les spectres provenant d'un seul cristal ont été utilisés.

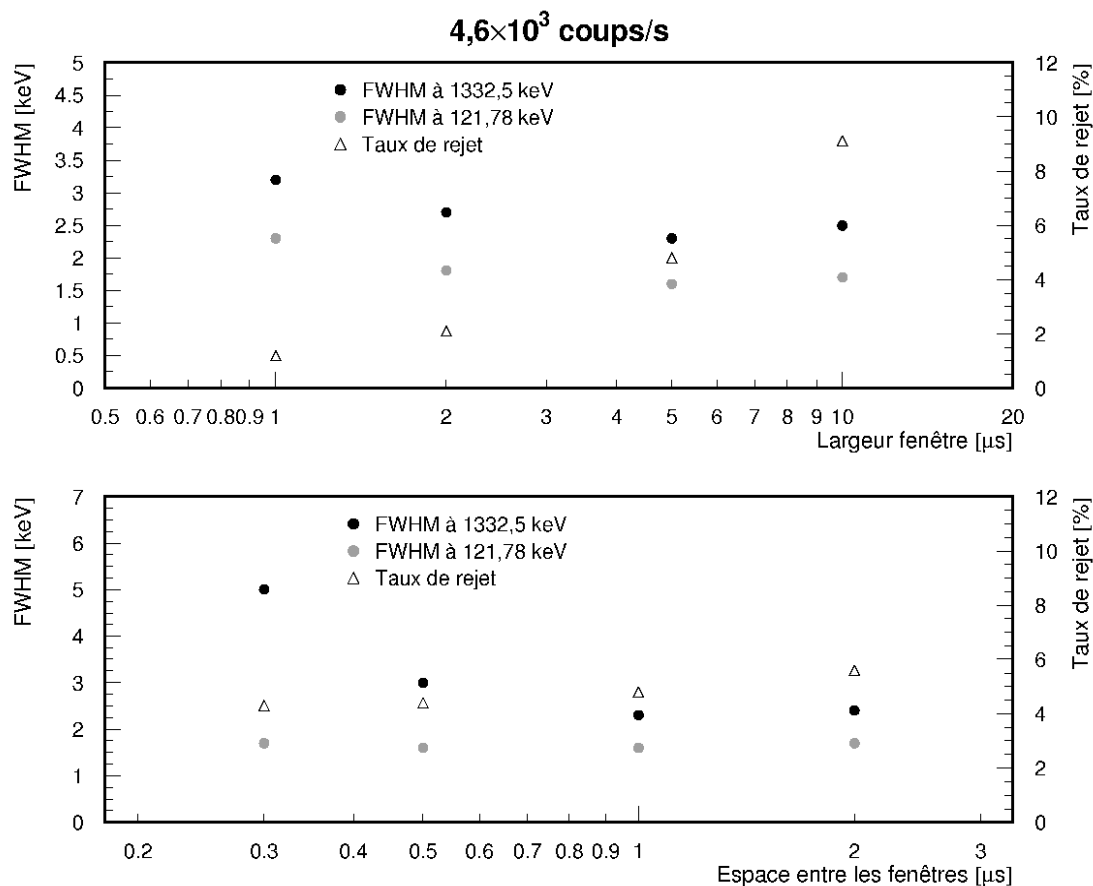


Figure 4.9 : Résultats de tests de la méthode des valeurs moyennes corrigées à $4,6 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de 1,0 μs . Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de fenêtre fixe de 5,0 μs .

La figure 4.9 résume les résultats pour le test à $4,6 \times 10^3$ coups/s. Au départ, l'espace entre les fenêtres a été fixé à 1,0 μs , et la largeur des fenêtres a été variée de 1,0 à 10,0 μs . La meilleure résolution a été obtenue avec la largeur de 5,0 μs , pour les deux raies considérées. La variation de la résolution avec la largeur des fenêtres est la plus importante pour la raie à 1333 keV. Ensuite, l'espace entre les fenêtres a été varié de 0,3 à 2,0 μs avec la largeur des fenêtres fixe de 5,0 μs . L'espace entre les fenêtres n'a eu pratiquement aucune influence sur la résolution de la raie à 122 keV. Ceci peut s'expliquer par la collection de charge plus rapide dans le cas des énergies basses, puisque la quantité de charge créée est, alors, moins importante. Par contre, l'influence de l'espace sur la raie à 1333 keV est très forte. A 0,3 μs , la raie est très déformée, avec une queue vers les hautes énergies et la résolution

grossièrement estimée à 5 keV. A $0,5 \mu\text{s}$ la forme de la raie est régulière, mais la résolution, 3,0 keV, est moins bonne qu'à $1,0 \mu\text{s}$. A $1,0 \mu\text{s}$ la résolution est 2,3 keV, ce qui s'approche, à 20 % près, de la résolution obtenue avec des meilleurs systèmes analogiques. Une augmentation de l'espace à $2,0 \mu\text{s}$ n'apporte pas d'amélioration de la résolution.

Vu le taux de rejet inférieur à 5 %, le jeu de paramètres $5,0 \mu\text{s}$ pour la largeur des fenêtres et $1,0 \mu\text{s}$ pour l'espace entre les fenêtres représente le meilleur choix à taux de comptage modéré.

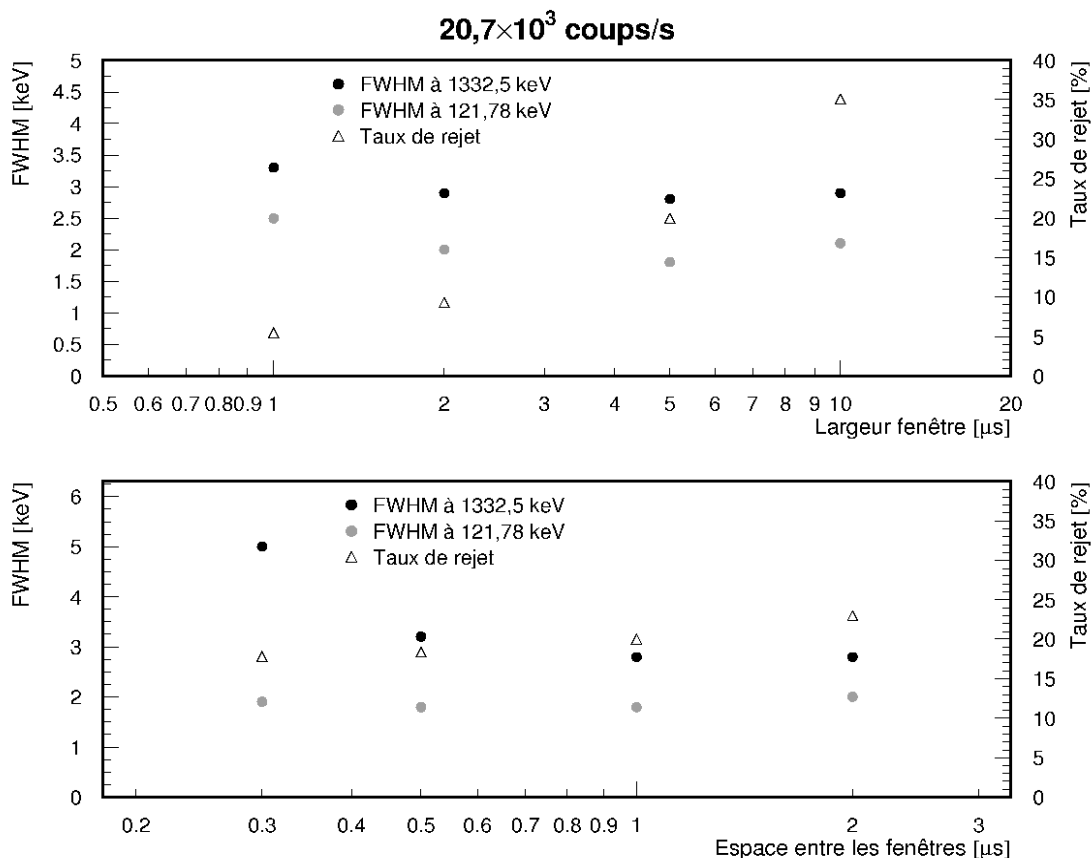


Figure 4.10 : Résultats de tests de la méthode des valeurs moyennes corrigées à $20,7 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de la fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$.

La figure 4.10 résume les résultats pour le test à $20,7 \times 10^3$ coups/s. La manière de procéder était la même comme pour le test à $4,6 \times 10^3$ coups/s. La perte de résolution due au fort taux de comptage demeure légère pour toutes les combinaisons des paramètres. Pour les applications au fort taux de comptage, la considération de la résolution et du taux de rejet impose plutôt le choix $2,0 \mu\text{s}$ pour la largeur des fenêtres et $1,0 \mu\text{s}$ pour l'espace. Le taux de rejet inférieur à 10 % avec la résolution de 2,9 keV à 20×10^3 coups/s démontre clairement l'un des avantages principaux de la spectroscopie numérique – la possibilité d'un bon compromis entre la résolution en énergie et le taux de rejet dans les conditions de fort taux de comptage. Ce résultat sera encore amélioré dans la section suivante.

4.5 Calcul de l'énergie déposée – élimination du défaut balistique

En tenant compte de la décroissance du signal entre les deux fenêtres, la méthode des valeurs moyennes corrigées permet d'obtenir une résolution en énergie comparable à celle des systèmes traditionnels et de traiter les forts taux de comptage avec un faible taux de rejet. Le facteur de décroissance utilisé dépend uniquement de la distance des fenêtres en temps, et non pas de la forme détaillée de la montée de l'impulsion intervenante entre les fenêtres. Pourtant, les détails de cette forme, notamment la longueur de la montée, influent sur la hauteur de l'impulsion. Cette influence, bien que faible, n'est pas négligeable, surtout au vu de la haute résolution en énergie recherchée. Dans ce qui suit, cette influence sera expliquée, une méthode de traitement sera proposée tenant compte de cet effet et les tests seront présentés afin de comparer les performances de cette méthode à celles de la méthode des valeurs moyennes corrigées.

4.5.1 Défaut balistique

Le schéma électronique simplifié du préamplificateur de charge, tel qu'il est habituellement utilisé pour les détecteurs à germanium est représenté dans la figure 4.11 [28]. La collection des charges créées par le rayonnement dans le cristal du détecteur induit un courant dans le circuit diode – préamplificateur. Ce courant charge la capacité C_f (Figure 4.11) du préamplificateur. Le condensateur se décharge à travers la résistance R_f . Dans cette description simple, le signal à la sortie du détecteur peut être exprimé par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dv}{dt} = -\frac{v}{\tau} + f(t) \quad (4.10)$$

Le terme $f(t)$ décrit la collection des charges et est non nulle seulement pendant la collection.

Le terme $-\frac{v}{\tau}$ décrit la décharge à travers la résistance R_f . Le temps de décroissance du signal est τ . Le courant de décharge est proportionnel à la tension, i. e. au niveau de charge dans le condensateur, à tout moment, *y compris pendant la collection de charge*. Une partie de la charge produite sera, donc, dissipée pendant la collection et le niveau de charge atteint par le condensateur restera légèrement inférieur à celui qui serait créé en absence de la résistance R_f . L'expression couramment utilisée pour cette différence est le « défaut balistique ».

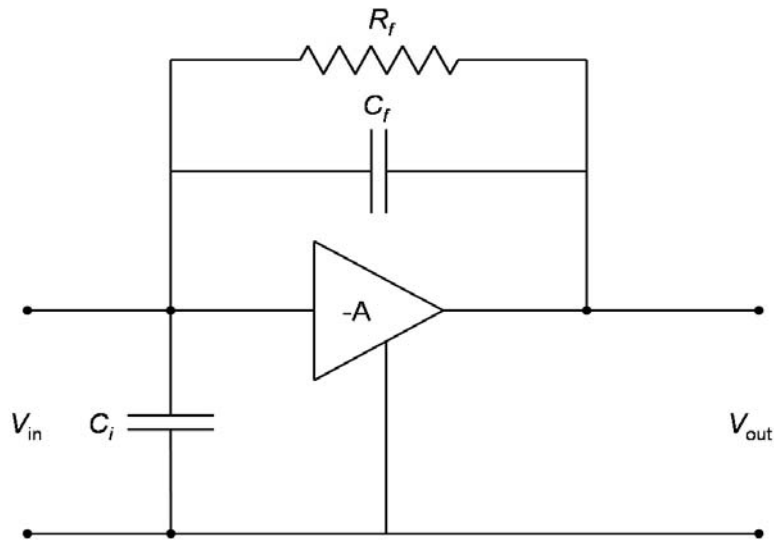


Figure 4.11 : Schéma électronique du préamplificateur de charge.

Comme le temps de collection varie d'un événement à l'autre, le défaut balistique varie, aussi, ce qui introduit une dispersion des hauteurs des impulsions. Les paramètres du préamplificateur sont habituellement choisis de sorte que le temps de décroissance des impulsions soit long, pour minimiser cet effet. L'effet reste, pourtant, présent et dans ce qui suit il sera montré qu'il n'est pas négligeable. Une façon de l'éliminer serait de compenser la décroissance exponentielle point par point, dans la série d'échantillons, à l'aide d'un algorithme numérique avant d'en extraire les hauteurs des impulsions.

4.5.2 Estimation de l'erreur induite par le défaut balistique

Par souci de simplicité, imaginons que le courant induit par la collection de charge est constant pendant la collection et nul avant et après. Choisissons la valeur $\frac{1}{a}$ pour le courant, afin que son intégrale soit égale à l'unité. L'équation différentielle du signal à la sortie du préamplificateur devient,

$$\frac{dv_o(t)}{dt} = \begin{cases} 0 & ; \quad t < 0 \\ \frac{1}{a} - \frac{v_o}{\tau} & ; \quad 0 \leq t < a \\ -\frac{v_o}{\tau} & ; \quad a \leq t \end{cases} \quad (4.11)$$

Le facteur de gain du préamplificateur a été choisi de sorte que les expressions à suivre restent les plus simples possibles. La solution de l'équation (4.11) est

$$v_o(t) = \begin{cases} 0 & ; \quad t < 0 \\ \frac{\tau}{a}(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}) & ; \quad 0 \leq t < a \\ \frac{\tau}{a}(1 - e^{-\frac{a}{\tau}})e^{-\frac{t-a}{\tau}} & ; \quad a \leq t \end{cases} \quad (4.12)$$

Dénotons par $v_o^*(t)$ la solution de l'équation (4.11) dans la limite $\tau \rightarrow \infty$ (absence de la résistance R_f),

$$v_o^*(t) = \begin{cases} 0 & ; \quad t < 0 \\ \frac{t}{a} & ; \quad 0 \leq t < a \\ 1 & ; \quad a \leq t \end{cases} \quad (4.13)$$

Le défaut balistique est égal à la différence entre les valeurs maximales des signaux $v_o^*(t)$ et $v_o(t)$,

$$\Delta_{bal} = 1 - \frac{\tau}{a}(1 - e^{-\frac{a}{\tau}}) \approx \frac{1}{2} \frac{a}{\tau} \quad (4.14)$$

Lors de la dernière approximation, il a été supposé que le temps de montée de l'impulsion a est très inférieur à son temps de décroissance τ ($a \ll \tau$).

Pour donner une estimation de l'ordre de magnitude de la dispersion des hauteurs des impulsions introduite par le défaut balistique il est utile de considérer le cas d'un détecteur coaxial, avec $\tau = 50 \mu\text{s}$. Supposons que la distribution des temps de montée est gaussienne, centrée à 400 ns, et que sa largeur à mi-hauteur est 200 ns. Alors, les valeurs des défauts balistiques sont distribués autour de 0.4% de la hauteur de l'impulsion, avec la largeur à mi-hauteur de 0.2%. La contribution de ces 0.2% à l'élargissement d'une raie γ à 1 MeV serait de l'ordre de 2 keV.

4.5.3 Annulation de la décroissance exponentielle

Si la résistance R_f était absente du circuit, la charge collectée lors de la détection du rayonnement ne se déchargerait pas.² Dénotons par $s(t)$ le signal à la sortie du préamplificateur dans ce cas hypothétique. Alors, l'équation (4.10) devient,

$$\frac{ds}{dt} = f(t) \quad (4.15)$$

L'échantillonnage du signal $v(t)$ résulte en série v_n . Nous voudrions la transformer à la série s_n qui correspondrait au signal $s(t)$. On procède par l'intégration des équations (4.10) et (4.15) dans les limites d'intégration définies par les instants successifs d'échantillonnage séparés par la période T_s .

$$v_k - v_{k-1} = -\frac{1}{\tau} \int_{(k-1)T_s}^{kT_s} v dt + \int_{(k-1)T_s}^{kT_s} f(t) dt \quad (4.16)$$

et

$$s_k - s_{k-1} = \int_{(k-1)T_s}^{kT_s} f(t) dt \quad (4.17)$$

La comparaison des sommes de termes (4.16) et (4.17) de $k = -\infty$ à $k=n$ donne,

$$s_n = v_n + \frac{1}{\tau} \sum_{k=-\infty}^{k=n} \int_{(k-1)T_s}^{kT_s} v dt \quad (4.18)$$

Toute l'information disponible pour estimer l'intégral $I = \int_{(k-1)T_s}^{kT_s} v dt$ est comprise dans les

valeurs instantanées v_{k-1} et v_k du signal v aux deux bouts de l'intervalle d'intégration. L'objectif de construire un filtre linéaire en v_{k-1} et v_k impose une solution approximative. En négligeant la forme de $f(t)$ dans l'intervalle d'intégration, avec la supposition que $f(t)$ n'influe sur le signal que, brusquement, au moment $t=kT_s$, on obtient pour la valeur $v(t)$ du signal dans l'intervalle d'intégration,

$$v(t) \approx v_{k-1} e^{-\frac{t-(k-1)T_s}{\tau}} \quad (4.19)$$

² Les préamplificateurs à reset fonctionnent comme ça. La charge s'accumule sur le condensateur C_f jusqu'à ce qu'elle n'atteigne un certain niveau. Une impulsion négative est alors envoyée dans le circuit pour remettre le niveau à zéro.

La valeur $v(t)$ est ainsi légèrement³ sous-estimée pendant la collection de charge. En dehors du temps de collection de charge, où le signal décroît sans autre influence, l'expression (4.19) est exacte. Ainsi on obtient $I = \tau v_{n-1} (1 - e^{-\frac{T_s}{\tau}})$, et (4.18) devient,

$$s_n = v_n + \alpha \sum_{k=-\infty}^{k=n-1} v_k \tag{4.20}$$

où $\alpha = 1 - e^{-\frac{T_s}{\tau}}$.

La fonction de réponse du filtre est,

$$h_n = \begin{cases} 0 & ; \quad n < 0 \\ 1 & ; \quad n = 0 \\ \alpha & ; \quad n > 0 \end{cases} \tag{4.21}$$

Le signal s_n contient les impulsions de forme « step » qui, approximativement, ne sont pas affectées par le défaut balistique. La manière récursive de calculer la série s_n est déjà apparente. Il suffit d'ajouter tout nouvel élément de la série v_n à une variable qui représentera la somme dans l'équation (4.20). Après cette addition il reste une multiplication et une addition pour arriver au prochain élément s_n . Ce calcul peut être effectué en ligne selon le schéma de propagation des données représentée dans la figure 4.12.

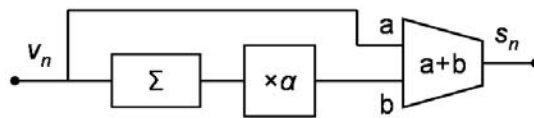


Figure 4.12 : Schéma de propagation des données dans l'algorithme d'élimination de la décroissance exponentielle.

La figure 4.13 illustre l'annulation de la décroissance exponentielle sur l'exemple du signal représenté dans la figure 4.1.

³ Ici on suppose que la décroissance du signal est très faible pendant une période de l'échantillonnage. En fait, il sera démontré que le rapport entre la période de l'échantillonnage et le temps de la décroissance du signal détermine la qualité de la correction.

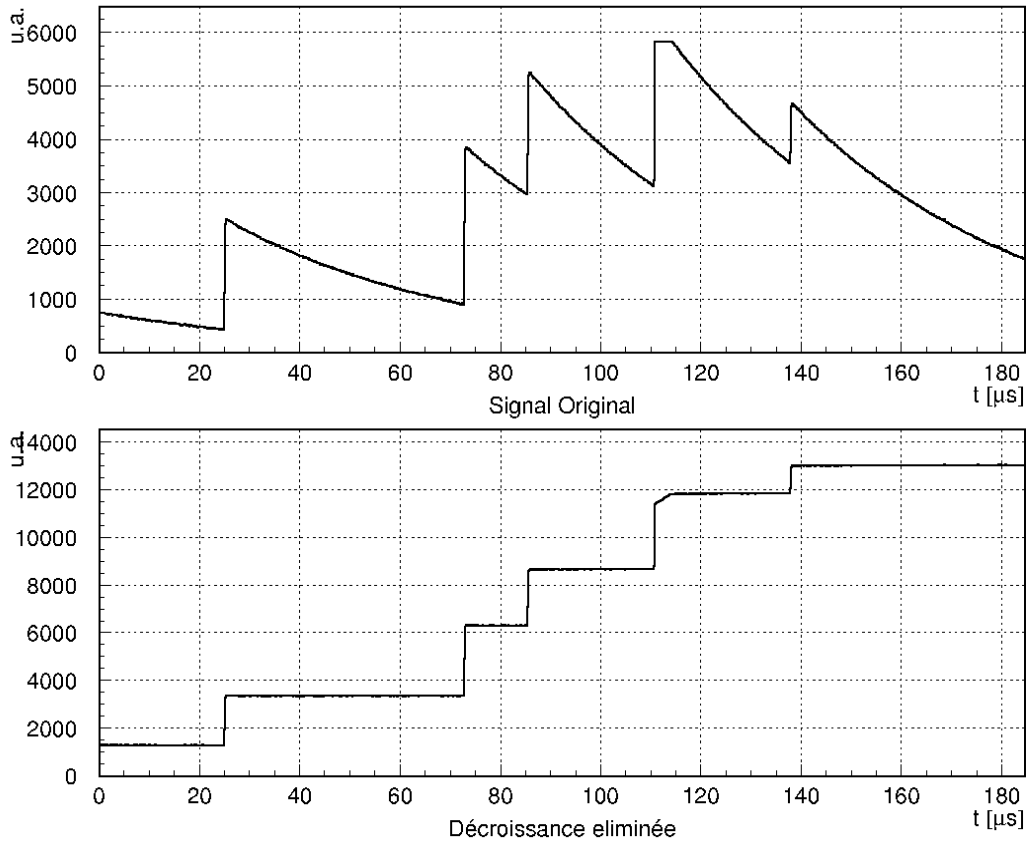


Figure 4.13 : Comparaison du signal échantillonné à la sortie du préamplificateur du détecteur (haut) et le signal résultant de l'annulation de la décroissance exponentielle (bas).

4.5.4 Estimation de la suppression du défaut balistique

Dans la série s_n , calculée selon l'équation (4.20), le défaut balistique est essentiellement éliminé. Pourtant, une partie du défaut balistique reste présente, à cause de l'approximation (4.19). Dans cette section l'ordre de magnitude de ce résidu va être estimé.

L'échantillonnage du signal (4.12) donne la série,

$$v_n = \begin{cases} 0 & ; \quad n < 0 \\ \frac{\tau}{a} (1 - e^{-\frac{nT_s}{\tau}}) & ; \quad 0 \leq n < \frac{a}{T_s} \\ \frac{\tau}{a} (1 - e^{-\frac{a}{\tau}}) e^{-\frac{nT_s - a}{\tau}} & ; \quad \frac{a}{T_s} \leq n \end{cases} \quad (4.22)$$

Après l'application de l'algorithme de compensation de la décroissance exponentielle, (4.22) devient,

$$s_n = \begin{cases} 0 & ; \quad n < 0 \\ \frac{\tau \alpha n}{a} & ; \quad 0 \leq n < \frac{a}{T_s} \\ \frac{\tau \alpha (m+1)}{a} - \frac{\tau}{a} \left(1 - e^{-\left(\frac{a}{T_s} - m - 1\right) \frac{T_s}{\tau}}\right) & ; \quad \frac{a}{T_s} \leq n \end{cases} \quad (4.23)$$

où $m = \text{int}\left(\frac{a}{T_s}\right)$ est la partie entière de la quantité réelle $\frac{a}{T_s}$.

Evidemment, dans l'intervalle $0 \leq n < \frac{a}{T_s}$ la dépendance linéaire (supposée) de u_n par rapport au temps est restaurée, et pour les valeurs de n supérieures à $\frac{a}{T_s}$, u_n ne dépend plus de n . Dans cette région, à l'aide des approximations, on obtient,

$$s_n \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{T_s}{\tau} \quad (4.24)$$

L'erreur relative résiduelle de l'estimation de la hauteur de l'impulsion est, donc, de l'ordre de $\frac{1}{2} \frac{T_s}{\tau}$, et *ne dépend pas du temps de montée de l'impulsion*. La dispersion de la valeur exprimée dans l'équation (4.24) est zéro.

Dans cette estimation, le courant de collection est approximé par une fonction constante en temps (4.11). En réalité, le courant de collection est une fonction complexe qui varie d'une impulsion à l'autre. Une faible dispersion due au défaut balistique reste, donc, présente. Dans l'appendice 2, nous démontrons que cette dispersion est inférieure au rapport $\frac{T_s}{\tau}$.

4.5.5 Mise en forme trapézoïdale

Pour calculer la hauteur des impulsions « step », nous utiliserons le concept de base décrit au début de la section 4.4. Deux fenêtres seront définies, l'une avant et l'autre après la montée de l'impulsion, la valeur moyenne sera calculée dans les deux fenêtres et les deux valeurs moyennes seront soustraites l'une de l'autre. Puisque la décroissance exponentielle des impulsions est déjà éliminée, il n'est pas nécessaire de corriger ces valeurs.

Pour calculer « en ligne » la différence entre les deux fenêtres, nous utiliserons une équation similaire à l'équation (4.7). Il s'agit de la différence des valeurs moyennes des points dans deux fenêtres mouvantes, décalées l'une par rapport à l'autre d'un retard fixe. La série de différences s'exprime comme :

$$u_n = w_n^l - w_{n-k}^l \quad (k > l) \quad (4.25)$$

Ici, w_n^l représente la valeur moyenne dans une fenêtre de largeur l , calculée selon l'équation (4.9), avec la série s_n au lieu de v_n . Le paramètre k représente le décalage des deux fenêtres l'une par rapport à l'autre. L'espace entre les fenêtres prévu pour que la montée puisse intervenir s'exprime comme $k-l$.

Les impulsions dans la série u_n ont une forme trapézoïdale dont la valeur du plateau est égale à l'amplitude des impulsions « step ». Donc, l'énergie du rayon détecté est donnée par la valeur du plateau de l'impulsion trapézoïdale.

La figure 4.14 montre le résultat de la suite de l'élimination de décroissance exponentielle et de la mise en forme trapézoïdale appliquée à la série représentée dans la figure 4.1.

La longueur de la pente (ou, également, de la descente) du trapézoïde est donnée par le paramètre l , et la longueur du plateau est donnée par la différence $k-l$. Les valeurs entières l et k sont les paramètres principaux de la forme trapézoïdale. Leur choix détermine les performances de la méthode. Si le taux de comptage est fort, les impulsions seront souvent proches l'une de l'autre en temps, et les trapézoïdes doivent être suffisamment courts pour permettre la séparation de la plupart d'entre eux. Dans la figure 4.14 ces paramètres étaient $9 \mu\text{s}$ pour la montée et $7 \mu\text{s}$ pour le plateau pour illustrer les cas de séparation et de l'empilement des impulsions trapézoïdales. L'impulsion à $25 \mu\text{s}$ en bas de la figure 4.14 est bien séparée des autres. Par contre, les deux impulsions à 73 et $85 \mu\text{s}$ sont si proches en temps que le plateau de chacune d'elles est déformé par l'influence de l'autre impulsion. Les impulsions à 110 et $138 \mu\text{s}$ ne sont pas complètement séparées des autres, mais leurs plateaux ne sont pas affectés. Ceci illustre le critère du rejet des impulsions empilées lors du traitement. Les impulsions dont les côtes sont chevauchées, mais dont les plateaux ne sont pas affectés ne sont pas considérées comme empilées. Seules les impulsions dont le plateau est influencé par une autre impulsion doivent être rejetées. Avec les paramètres illustrés dans la figure 4.14, il faut donc qu'il y ait au moins $16 \mu\text{s}$ entre deux impulsions pour qu'il n'y ait pas d'empilement.

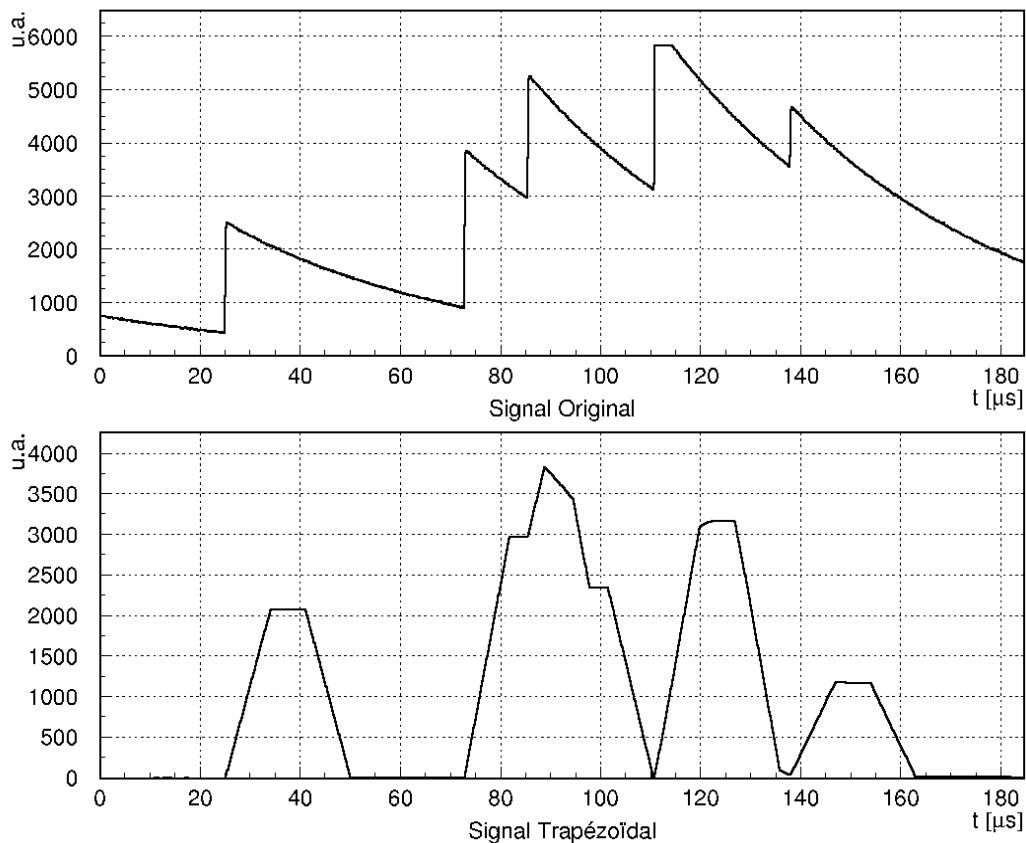


Figure 4.14 : Comparaison du signal original (haut) et le signal résultant du traitement qui comprend l'annulation de la décroissance exponentielle et la mise en forme trapézoïdale (haut). Les paramètres de la mise en forme trapézoïdale étaient 9 μs pour la durée de la pente et 7 μs pour la durée du plateau.

Donc, pour éviter l'empilement, donc, il convient de choisir des petites valeurs des paramètres l et k . En même temps, ces paramètres ont leur influence particulière sur la résolution de la mesure de l'énergie. La différence $k-l$ doit être suffisamment grande pour que la montée de l'impulsion puisse intervenir entièrement entre les fenêtres. Le temps de montée fini des impulsions réelles produites par le détecteur introduit une déformation des impulsions trapézoïdales après la mise en forme de sorte qu'elles atteignent leur pleine hauteur avec un retard égal au temps de montée original par rapport au « début » du plateau du trapézoïde.

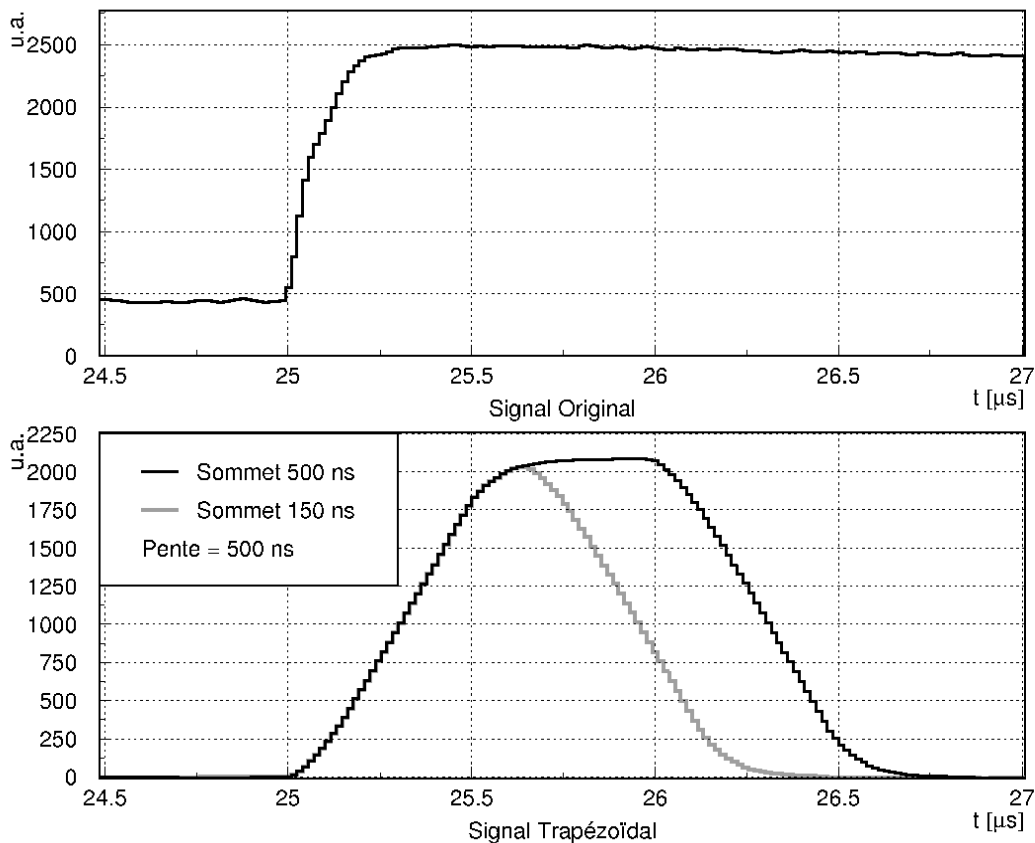


Figure 4.15 : Illustration de l'effet des différentes longueurs du plateau sur la hauteur atteinte par l'impulsion trapézoïdale. La durée de la pente est 500 ns pour les deux trapézoïdes, et celle du plateau est 500 ns pour l'un (bas, courbe noire) et 150 ns pour l'autre (bas, courbe grise). Le plateau de 150 ns est trop court et introduit un défaut balistique supplémentaire.

La figure 4.15 illustre cette déformation. Les paramètres de la mise en forme trapézoïdale sont 500 ns pour la pente, et 500 ns, ou 150 ns pour le plateau des deux séries représentées en bas de la figure par la courbe noire et grise, respectivement. L'impulsion commence à 25,0 μs . Donc, dans le cas idéal de la montée instantanée de l'impulsion originale, le plateau du trapézoïde devrait commencer à 25,5 μs . Pourtant, puisque l'impulsion originale n'atteint sa pleine hauteur que, environ, 500 ns après son début, le trapézoïde n'atteint la sienne que vers la fin du plateau de 500 ns. Les 500 ns sont, donc, une valeur limite inférieure pour le plateau. Le plateau de 150 ns ne permet même pas au trapézoïde d'atteindre sa pleine hauteur.

Ainsi, si la longueur du plateau du trapézoïde est inférieure au temps de montée de l'impulsion originale, un défaut balistique supplémentaire se produit. Il est, donc, nécessaire de choisir une longueur de plateau suffisante et de choisir un ou plusieurs points vers la fin du plateau pour la mesure de la hauteur de l'impulsion.

Le paramètre l représente le nombre de points, dans la fenêtre avant et après la montée des impulsions, sur lesquels la valeur moyenne est calculée. Ce nombre doit être suffisamment grand pour bien filtrer le bruit électronique du système détecteur – préamplificateur – ADC. Le bruit électronique produit des fluctuations dans le plateau de l'impulsion trapézoïdale.

Puisque l'énergie du rayonnement est déterminée à partir d'un ou de plusieurs points du plateau, il est évidemment nécessaire de minimiser ces fluctuations.

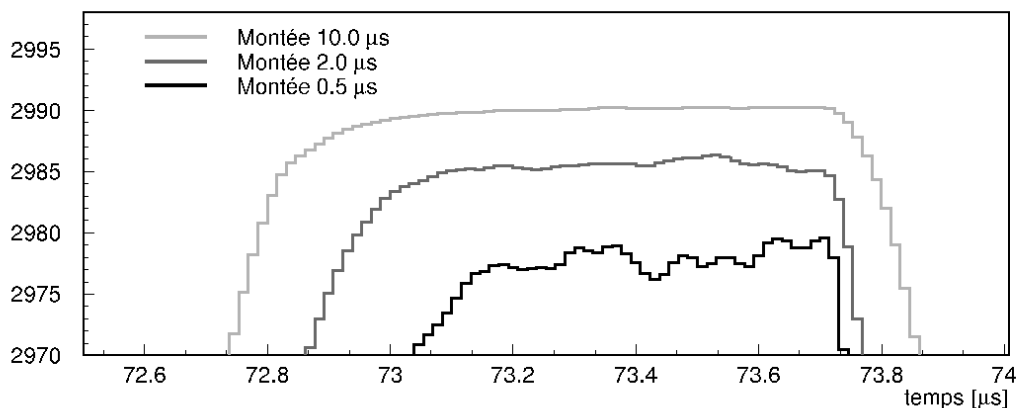


Figure 4.16 : Comparaison du plateau de l'impulsion trapézoïdale dans le cas de trois longueurs différentes de la pente trapézoïdale. Les fluctuations des points du plateau sont d'autant plus fortes que la pente est courte. L'impulsion trapézoïdale est obtenue à partir d'une même impulsion originale dans les trois cas. La longueur nominale du plateau est $1 \mu\text{s}$ dans les trois cas.

Pour illustrer cette idée, la figure 4.16 représente le plateau de l'impulsion trapézoïdale dans le cas de trois longueurs différentes de la pente. Les trois impulsions trapézoïdales sont obtenues à partir d'une même impulsion originale. Par rapport à la hauteur de 3000 unités, les fluctuations du plateau sont faibles, seulement 0,1% de la hauteur dans le cas de la pente de $0,5 \mu\text{s}$. Dans le cas des montées plus longues, la contribution de ces fluctuations à la dispersion des hauteurs des impulsions devient très faible. Le choix des paramètres l et k comprend, donc, un compromis entre les conditions imposées par le taux de comptage, et la demande de la résolution en énergie.

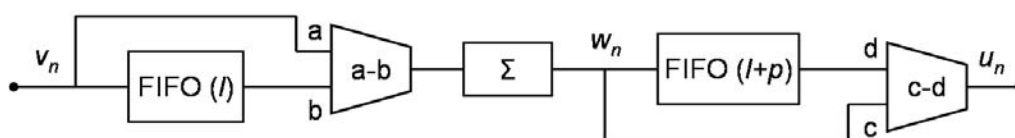


Figure 4.17 : Schéma de propagation des données pour la mise en forme trapézoïdale des impulsions « step ».

La figure 4.17 représente la propagation des données dans l'algorithme (4.25) de mise en forme trapézoïdale des impulsions « step ». Ce schéma est similaire à celle de la méthode des valeurs moyennes corrigées, la seule différence étant l'absence de multiplication par le facteur β^k de la méthode des moyennes corrigées.

La mise en forme trapézoïdale fait partie du répertoire des filtres les plus souvent utilisés pour mesurer les hauteurs des impulsions avec précision dans la spectroscopie numérique [5] – [9]. La séquence de filtres numériques présentés ici (l'élimination de la décroissance exponentielle et la mise en forme trapézoïdale) est équivalente au filtre de mise en forme trapézoïdale présenté par Jordanov et al. dans les refs. [5] et [6].

4.5.6 Méthode trapézoïdale – application PC

Nous avons écrit un logiciel en C++ pour appliquer la méthode des valeurs moyennes corrigées et celle d'élimination du défaut balistique aux signaux échantillonnés par carte TNT. Le logiciel fonctionne sous forme d'application console sous système d'exploitation Microsoft Windows. Les paramètres de traitement, ainsi que le nom du fichier entrant contenant les séries d'échantillons et le nom du fichier sortant contenant le histogramme des hauteurs d'impulsions, sont transmis au logiciel via la ligne de commandes. Les paramètres de traitement comprennent les paramètres d'échantillonnage, tels que le nombre d'échantillons par seconde et la longueur des séquences de données, les paramètres du signal échantillonné, tels que son temps de décroissance et sa polarité, ainsi que les paramètres de la méthode tels que la largeur des fenêtres et leur décalage en temps.

4.5.7 Méthode trapézoïdale – tests avec les sources

Les données numériques enregistrées pour le test décrit dans la section 4.4.1 ont été traitées par la méthode d'élimination du défaut balistique afin de vérifier ses avantages par rapport à la méthode des valeurs moyennes corrigées.

Les paramètres de la mise en forme trapézoïdale ont été variés de la même manière que les paramètres de la méthode des valeurs moyennes corrigées, en tenant compte du fait que le paramètre l de l'équation (4.25) correspond au paramètre l de l'équation (4.9) (largeur des fenêtres) et le paramètre k (plateau du trapézoïde) de l'équation (4.25) correspond au paramètre k de l'équation (4.7). Il faut remarquer que les paramètres équivalents des deux méthodes produisent le même taux de rejet. Ceci est la conséquence du fait que le critère de rejet est essentiellement le même pour les deux méthodes. Dans les deux méthodes, les impulsions sont rejetées si leur séparation en temps est inférieure au retard k entre les deux fenêtres.

La figure 4.18 résume les résultats pour le test à $4,6 \times 10^3$ coups/s. Pour la raie à 1332,5 keV la résolution est systématiquement meilleure qu'avec la méthode des valeurs moyennes corrigées tandis que, pour la raie à 121,78 keV, il n'y a pas de différences significatives entre les deux méthodes. La raison en est que le défaut balistique affecte surtout les événements de haute énergie. Le meilleur choix des paramètres est le même comme dans la méthode des valeurs moyennes corrigées : 5,0 μ s pour la durée de pente et 1,0 μ s pour la durée de plateau du trapézoïde. Avec ce choix de paramètres, la résolution à 1332,5 keV est pratiquement identique (1,9 keV FWHM) à celle obtenue avec les systèmes classiques, ce qui confirme l'efficacité de l'élimination du défaut balistique.

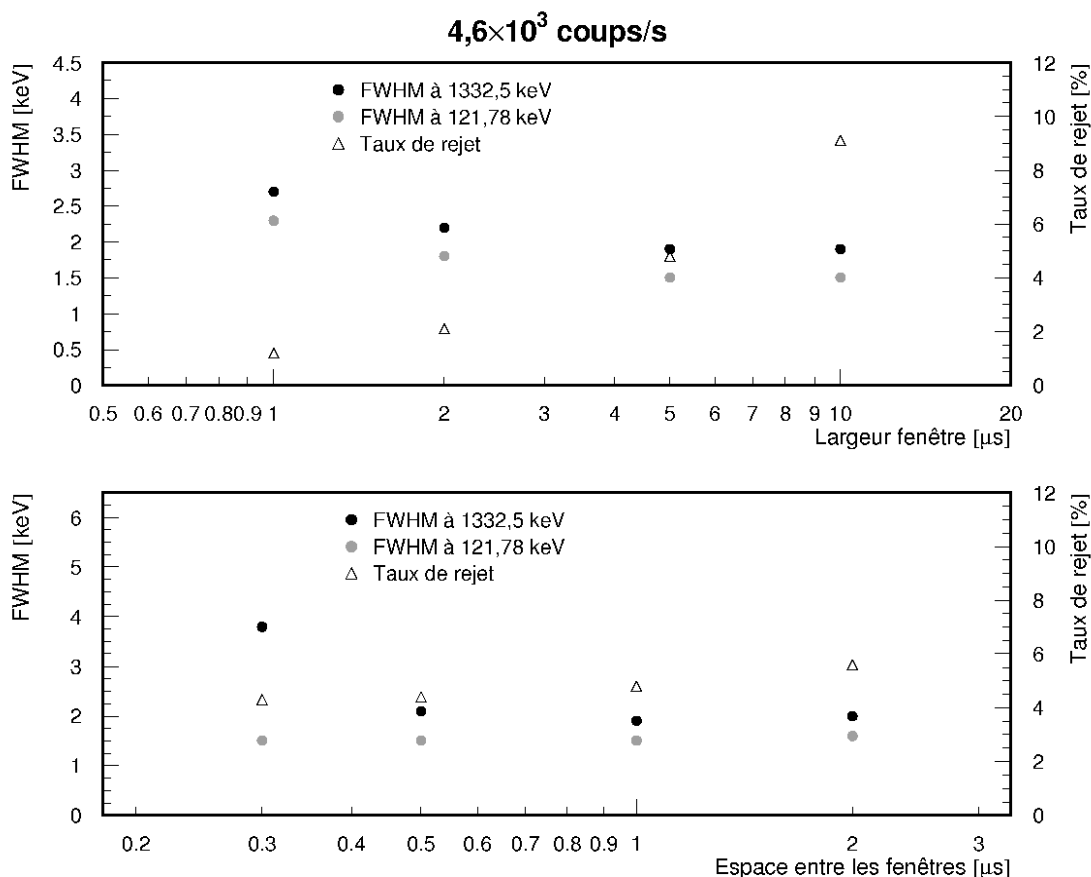


Figure 4.18 : Résultats de tests de la méthode trapézoïdale à $4,6 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$.

La figure 4.19 résume les résultats du test à $20,7 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$. A ce taux de comptage, la méthode d'élimination du défaut balistique apporte toujours une amélioration significative de la résolution à 1332,5 keV. La combinaison de paramètres $2,0 \mu\text{s}$ pour la pente et $1,0 \mu\text{s}$ pour le plateau permet d'obtenir la résolution de 2,4 keV FWHM à 1332,5 keV à 20×10^3 coups/s, avec un taux de rejet de seulement 9,3%.

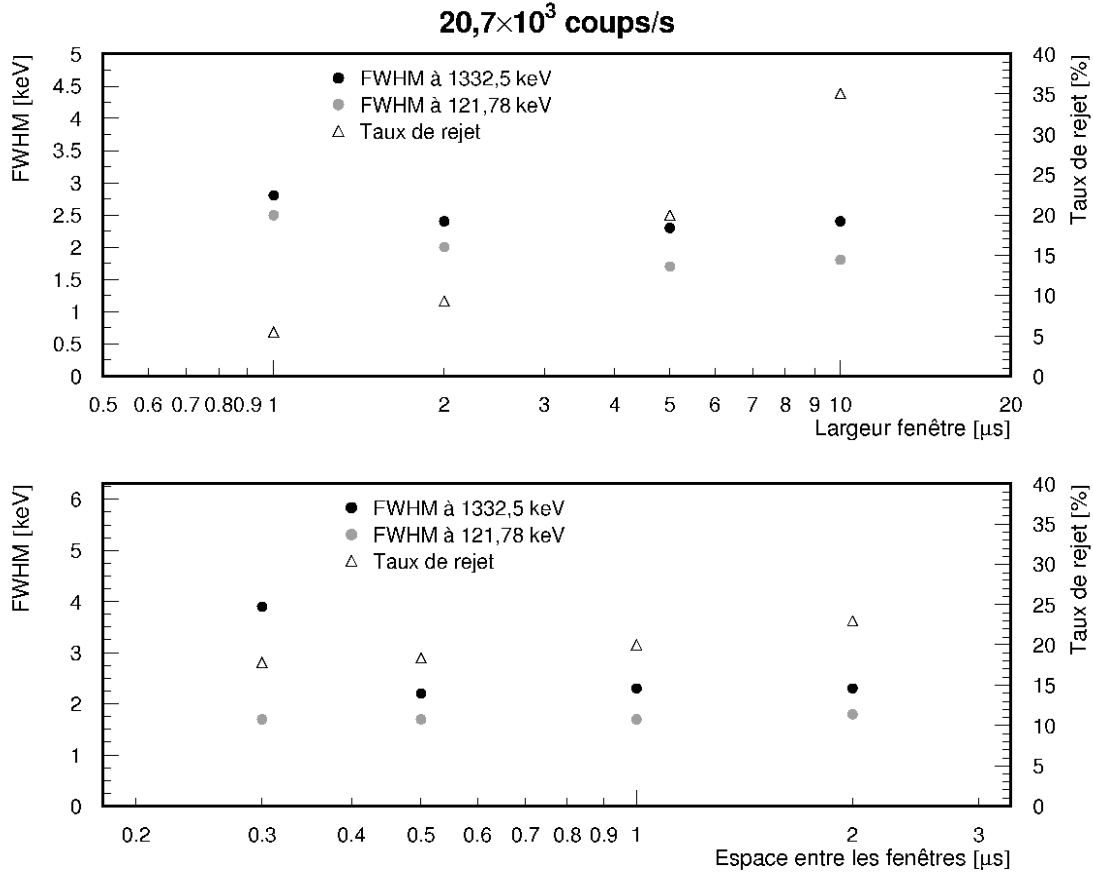


Figure 4.19 : Résultats de tests de la méthode trapézoïdale à $20,7 \times 10^3$ coups/s. Haut : résolution et taux de rejet en fonction de la largeur de fenêtre avec l'espace entre les fenêtres fixe de $1,0 \mu\text{s}$. Bas : résolution et taux de rejet en fonction de l'espace entre les fenêtres avec la largeur de fenêtre fixe de $5,0 \mu\text{s}$.

4.6 Estimation du défaut balistique dans les tests

La largeur des raies dans le spectre en énergie γ est déterminée par les contributions de plusieurs sources différentes de dispersion, telles que la dispersion du nombre des porteurs de charge créés, le bruit électronique, le défaut balistique etc. Si on suppose que la dispersion introduite par toutes les sources obéit à la loi de la distribution normale, la largeur totale peut être représentée comme la somme quadratique de leurs contributions :

$$FWHM_{tot} = \sqrt{FWHM_{charge}^2 + FWHM_{bruit}^2 + FWHM_{DB}^2 + \dots} \quad (4.26)$$

Si on regroupe toutes les contributions à part celle du défaut balistique on obtient :

$$FWHM_{tot} = \sqrt{FWHM_{DB}^2 + FWHM_{autre}^2} \quad (4.27)$$

L'équation (4.27) permet d'estimer la contribution du défaut balistique à la largeur des raies obtenues par la méthode des valeurs moyennes corrigées. La largeur des raies obtenues par la méthode trapézoïdale n'est pas affectée par le défaut balistique. Cette largeur est, donc, égale

à la contribution $FWHM_{autre}$ des autres sources de dispersion. La contribution du défaut balistique peut être estimé comme :

$$FWHM_{DB} = \sqrt{FWHM_{MC}^2 - FWHM_T^2} \quad (4.28)$$

Les tableaux ci-dessous comparent les résolutions obtenues par les deux méthodes et représentent les contributions estimées du défaut balistique. Plusieurs observations s'imposent :

- Le défaut balistique est beaucoup plus important à 1332,5 keV qu'à 121,8 keV. C'est une caractéristique bien connue du défaut balistique qui s'explique par la collection de charges plus rapide aux énergies basses.
- La dispersion due au défaut balistique à 1332,5 keV s'accorde en ordre de magnitude avec la prévision grossière donnée dans la section 4.5.2. Dans le test, le défaut balistique est relativement faible parce que le volume du détecteur est relativement petit, avec une efficacité relative de 20%.
- La dispersion due au défaut balistique ne dépend pas de la longueur des fenêtres l . Le défaut balistique est une conséquence de la décharge qui a lieu pendant la collection de charges. Ce processus se passe entre les fenêtres et, donc, sa contribution ne dépend pas de l .
- Le défaut balistique est augmenté si l'espace entre les fenêtres ($k-l$) est insuffisant.
- La contribution du défaut balistique à la largeur des raies est pratiquement la même à $4,6 \times 10^3$ coups/s qu'à $20,7 \times 10^3$ coups/s. Avec un fort taux de comptage les impulsions sont souvent empilées et le niveau de charge dans le condensateur du préamplificateur est élevé pendant la plupart de temps. Ceci implique que la décharge est plus souvent intense. Pourtant, la décharge est, essentiellement, déjà prise en compte par la méthode des valeurs moyennes corrigées. La correction qu'apporte la méthode trapézoïdale s'applique surtout à la décharge pendant la collection qui dépend de la dynamique de la collection.

Tableau 4.1 : Comparaison des résolutions obtenues à 121,8 keV et avec un taux de comptage de $4,6 \times 10^3$ coups/s par la méthode des valeurs moyennes corrigées (MC) et la méthode trapézoïdale (T). Le défaut balistique estimé est très faible.

l [μs]	$k-l$ [μs]	$FWHM_{MC}$ @ 122 keV [keV]	$FWHM_T$ @ 122 keV [keV]	$FWHM_{DB}$ @ 122 keV [keV]	$\Delta FWHM_{DB}$ @ 122 keV [keV]
1,0	1,0	2,3	2,3	0	-
2,0	1,0	1,8	1,8	0	-
5,0	1,0	1,6	1,5	0,6	0,5

l [μ s]	$k-l$ [μ s]	FWHM _{MC} @ 122 keV [keV]	FWHM _T @ 122 keV [keV]	FWHM _{DB} @ 122 keV [keV]	Δ FWHM _{DB} @ 122 keV [keV]
10,0	1,0	1,7	1,5	0,8	0,4
5,0	0,3	1,7	1,5	0,8	0,4
5,0	0,5	1,6	1,5	0,6	0,5
5,0	2,0	1,7	1,6	0,6	0,6

Tableau 4.2 : Comparaison des résolutions obtenues à 1332,5 keV et avec un taux de comptage de $4,6 \times 10^3$ coups/s par la méthode des valeurs moyennes corrigées (MC) et la méthode trapézoïdale (T). La contribution du défaut balistique à la largeur des raies obtenues par la méthode des valeurs moyennes corrigées est significative. Elle ne dépend pas de la largeur des fenêtres l , mais dépend fortement de l'espace entre les fenêtres $k-l$.

l [μ s]	$k-l$ [μ s]	FWHM _{MC} @ 1333 keV [keV]	FWHM _T @ 1333 keV [keV]	FWHM _{DB} @ 1333 keV [keV]	Δ FWHM _{DB} @ 1333 keV [keV]
1,0	1,0	3,2	2,7	1,7	0,3
2,0	1,0	2,7	2,2	1,6	0,3
5,0	1,0	2,4	1,9	1,5	0,3
10,0	1,0	2,5	1,9	1,6	0,3
5,0	0,3	5	3,8	3,2	0,3
5,0	0,5	3,0	2,1	2,1	0,2
5,0	2,0	2,4	2,0	1,3	0,3

Tableau 4.3 : Comparaison des résolutions obtenues à 121,8 keV et avec un taux de comptage de $20,7 \times 10^3$ coups/s par la méthode des valeurs moyennes corrigées (MC) et la méthode trapézoïdale (T). Le défaut balistique estimé est très faible.

l [μ s]	$k-l$ [μ s]	FWHM _{MC} @ 122 keV [keV]	FWHM _T @ 122 keV [keV]	FWHM _{DB} @ 122 keV [keV]	Δ FWHM _{DB} @ 122 keV [keV]
1,0	1,0	2,5	2,5	0	-
2,0	1,0	2,0	2,0	0	-
5,0	1,0	1,8	1,7	0,6	0,6
10,0	1,0	2,1	1,8	1,1	0,4
5,0	0,3	1,9	1,7	0,8	0,4
5,0	0,5	1,8	1,7	0,6	0,6
5,0	2,0	2,0	1,8	0,9	0,4

Tableau 4.4 : Comparaison des résolutions obtenues à 1332,5 keV et avec un taux de comptage de $20,7 \times 10^3$ coups/s par la méthode des valeurs moyennes corrigées (MC) et la méthode trapézoïdale (T). La contribution du défaut balistique à la largeur des raies obtenues par la méthode des valeurs moyennes corrigées est significative et pratiquement la même qu'avec le faible taux de comptage. Elle ne dépend pas de la largeur des fenêtres l , mais dépend fortement de l'espace entre les fenêtres $k-l$.

l [μ s]	$k-l$ [μ s]	FWHM _{MC} @ 1333 keV [keV]	FWHM _T @ 1333 keV [keV]	FWHM _{DB} @ 1333 keV [keV]	Δ FWHM _{DB} @ 1333 keV [keV]
1,0	1,0	3,3	2,8	1,7	0,3
2,0	1,0	2,9	2,4	1,6	0,3
5,0	1,0	2,8	2,3	1,8	0,3
10,0	1,0	2,9	2,4	1,6	0,3
5,0	0,3	5	3,9	3,1	0,3
5,0	0,5	3,2	2,2	2,3	0,2
5,0	2,0	2,8	2,3	1,6	0,3

4.7 Application des méthodes développées à notre expérience

Les méthodes numériques permettent de préserver la résolution en énergie γ aux forts taux de comptage et d'assurer le traitement de la plupart des rayons γ (80 – 90 % à 20×10^3 coups/s). Dans la spectroscopie avec les détecteurs à germanium, la difficulté liée à un fort taux de comptage est, essentiellement, l'empilement des impulsions. Dans notre expérience, nous nous intéressons aux rayons γ induits par les impulsions périodiques du faisceau. Puisque le faisceau induisait aussi le flash γ , on était dans une situation où il faut traiter des impulsions très rapprochées en temps alors que le taux de comptage moyen est faible. Un cristal du détecteur CLOVER détectait le flash γ , en moyenne, une fois sur dix impulsions du faisceau. Les impulsions induites par les réactions (n,n') et $(n,2n)$ arrivaient dans les 25 μ s suivantes. Ainsi, parmi les impulsions induites par les neutrons, une sur dix était empilée sur les queues des impulsions du flash γ . Afin d'assurer le traitement de toutes les impulsions induites par les neutrons jusqu'à une certaine énergie, il était nécessaire d'utiliser les paramètres du traitement numérique qui permettent d'avoir un temps mort par impulsion suffisamment court. Par exemple, avec $k = 3,0 \mu$ s (2 μ s pour la pente et 1 μ s pour le plateau), il était possible de mesurer les rayons γ induits par les neutrons jusqu'à 15 MeV sans pertes (voir appendice 1).

A part l'empilement sur les impulsions du flash γ , l'empilement aléatoire des impulsions induites par les neutrons était très rare. Un cristal du détecteur CLOVER détectait, au moyen, un rayon γ provenant des réactions des neutrons sur 160 impulsions du faisceau. Donc, une fois le problème de l'empilement sur les impulsions du flash γ résolu, la perte des impulsions à cause de l'empilement devient négligeable.

4.8 La prise des données numériques

Dans ce travail l'échantillonnage des signaux des détecteurs a été fait à l'aide des modules numériques TNT (Figure 4.20) développées par P. Medina et al. à l'IReS, Strasbourg. Chaque module TNT est équipé de deux codeurs rapides qui permettent le codage de deux voies analogiques à 14 bits, au taux de 65 MHz. Les cartes TNT sont pilotées par PC à l'aide d'un logiciel spécialisé.

Pendant l'expérience, les données échantillonnées par les cartes étaient transmises au PC pour être stockées sur le disque dur. Elles étaient, ensuite, traitées hors ligne à l'aide des logiciels que nous avons développés.

Pour échantillonner les signaux des quatre cristaux d'un détecteur CLOVER, deux modules numériques TNT étaient utilisés. Les échantillons étaient stockés sur les disques durs afin d'être traités ultérieurement. Un traitement provisoire était fait immédiatement pour surveiller le déroulement de l'expérience et pour assurer que toutes les raies γ recherchées sont présentes dans le spectre.

Le déclenchement de l'acquisition était effectué sur le signal « t_0 » fourni par l'accélérateur, validé par la présence d'un rayon γ créé par une réaction avec un neutron ayant une énergie suffisamment élevée, voisine ou supérieure au seuil des réactions (n, xn). Plus précisément, la condition requise était la présence d'un rayon γ dans l'intervalle de 1 à 26 μ s, ce qui correspond au temps de vol des neutrons de 0,3 MeV jusqu'aux énergies les plus hautes possibles. En même temps, cet intervalle exclut le flash γ .

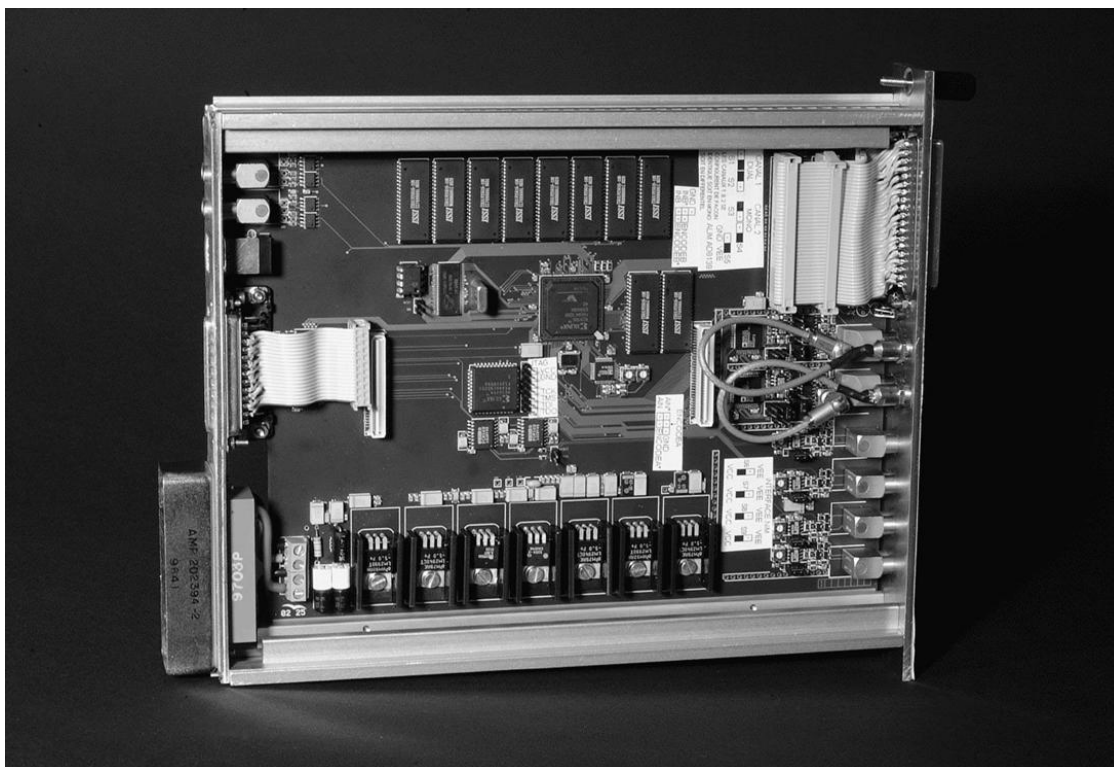


Figure 4.20 : Photographie d'une carte numérique TNT avec la plaque protectrice enlevée.

Les deux modules TNT étaient équipés d'un circuit logique capable d'émettre un signal « de sélection » lors de détection d'un rayon γ dans une fenêtre ajustable en temps par rapport à t_0 . Le schéma de ce circuit est présenté dans la figure 4.21. Dans la branche 1 du circuit de sélection (Figure 4.21, haut), le signal logique t_0 , fourni par l'accélérateur, était mis en forme à l'aide d'un élément Gate/Delay (G/D) pour définir la fenêtre de temps de vol avec le retard t_{d1} et la durée t_g . Il faut noter que le signal t_0 était transmis à la salle de mesure avec un retard de plusieurs microsecondes. Cette fenêtre était, donc, une image retardée de l'intervalle des temps de vol des neutrons aux énergies intéressantes pour la mesure. Les deux circuits discriminateurs numériques dans la branche 2 du même circuit (Figure 4.21, bas) signalaient la présence d'impulsions dans les séries d'échantillons issues des deux ADCs du module TNT. L'opération « OU » logique était réalisée entre les signaux logiques des deux discriminateurs pour créer un signal logique lors de la détection d'impulsion dans, au moins, l'une des séries d'échantillons. Un retard t_{d2} était introduit dans la branche 2, pour compenser le retard de transmission du signal t_0 à la branche 1. La coïncidence entre les deux branches du circuit vérifiait que les impulsions étaient détectées pendant la fenêtre choisie des temps de vol.

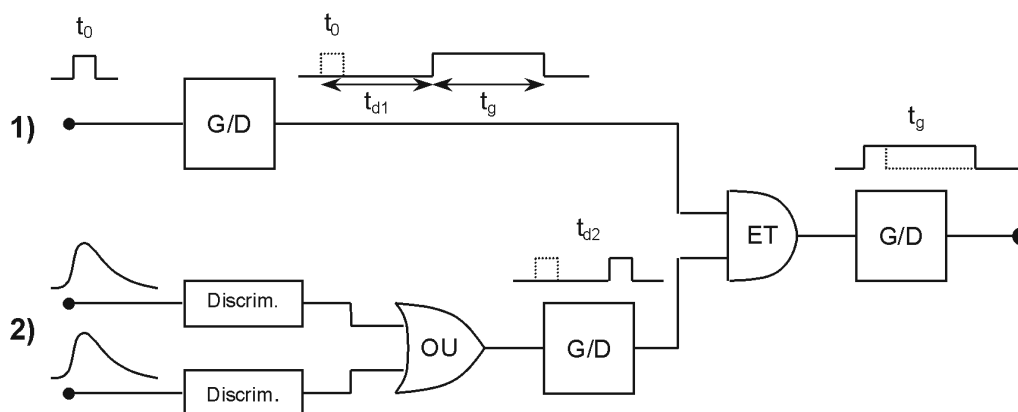


Figure 4.21 : Schéma logique du circuit de sélection. Dans la branche 1 du circuit, le signal logique t_0 , fourni par l'accélérateur, était mis en forme à l'aide d'un élément Gate/Delay (G/D) pour définir la fenêtre de temps de vol recherchée. Les deux circuits discriminateurs numériques dans la branche 2 signalaient la présence d'impulsions dans les séries d'échantillons issues des deux ADCs du module TNT. La coïncidence entre les deux branches du circuit vérifiait que les impulsions étaient détectées pendant la fenêtre choisie des temps de vol.

Le signal de sélection, ainsi obtenu, témoignait correctement de la présence des impulsions dans la fenêtre choisie, mais le temps de sa création dépendait du temps de détection de l'impulsion dans la fenêtre et, par conséquent, son retard par rapport à t_0 était variable. Afin de préserver l'information de temps par rapport à t_0 dans la série d'échantillons, un circuit « déclencheur global » a été mis en place pour déclencher l'échantillonnage, de tous les quatre voies de sortie du CLOVER, avec un retard fixe après t_0 , lors de l'apparition du signal de sélection à la sortie de, au moins, un des deux modules TNT (Figure 4.22). Avant de le transmettre au circuit déclencheur, le signal de sélection était prolongé à la durée t_g à l'aide d'un élément G/D à la sortie du circuit de sélection (Figure 4.21). Dans la branche 1 du circuit

déclencheur (Figure 4.22, haut), l'opération « OU » logique était appliquée entre les signaux de sélection des deux modules TNT. Dans la branche 2 (Figure 4.22, bas), le signal t_0 était retardé de $t_{d1}+t_g$. L'acquisition était déclenchée par la coïncidence entre les deux branches du circuit. Ainsi, le signal de déclenchement était créé au moment de superposition du signal t_0 retardé avec le signal de sélection prolongé. Il avait, donc, un retard constant par rapport à t_0 .

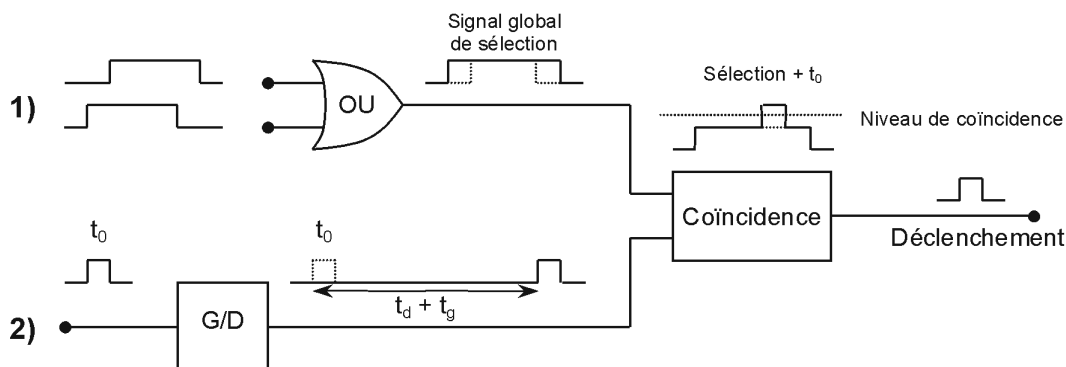


Figure 4.22 : Schéma logique du circuit déclencheur de l'acquisition. Dans la branche 1 du circuit, l'opération « OU » logique était appliquée entre les signaux de sélection des deux modules TNT. Dans la branche 2 le signal t_0 était retardé de $t_{d1}+t_g$. L'acquisition était déclenchée par la coïncidence entre les deux branches du circuit. Ainsi, le signal de déclenchement était créé avec un retard constant par rapport à t_0 .

Puisque le retard de transmission du signal t_0 n'était pas exactement connu, le retard td_2 a d'abord été ajusté à une valeur estimée d'après la longueur approximative des câbles par lesquels le signal t_0 était transmis jusqu'à dans la salle d'expériences. Le traitement provisoire des impulsions échantillonnées a été utilisé pour vérifier que le pic du flash γ , aussi bien que la bosse des rayons γ induits par les neutrons apparaît dans la statistique des temps de détection des impulsions (voir figure 3.9). Ensuite, la valeur de td_2 a été graduellement diminuée jusqu'à ce que le taux de transfert des données se soit brusquement affaibli, marquant l'exclusion du flash γ de la fenêtre des temps de déclenchement. Le taux de transfert a été réduit à 0,6 Mo par seconde. Le traitement final des données a permis d'établir que la fenêtre encadrait les temps de vol à partir de 1 μ s.

La valeur choisie de t_g était 25 μ s. Cette valeur permet de déclencher l'acquisition sur l'apparition de rayons γ induits par les neutrons aux énergies aussi basses que 0,3 MeV.

A cause du retard du signal t_0 introduit par les câbles, l'acquisition n'était déclenchée qu'après l'arrivée des neutrons. Une partie d'impulsions intéressantes précédaient, donc, le signal de déclenchement. En plus, pour bien appliquer la méthode trapézoïdale, il était nécessaire d'échantillonner le signal avant et après la montée de l'impulsion. L'enregistrement de la partie du signal qui précède le déclenchement était possible grâce à la mémoire cyclique du module TNT. La mémoire cyclique garde toujours un nombre fixe des derniers échantillons acquis. Sa longueur est ajustable selon l'application. Dans notre expérience, la longueur de la mémoire cyclique était ajustée de sorte que, à chaque déclenchement, 60 μ s de signal soient enregistrées, comprenant 2,5 μ s avant, et 57,5 μ s après la création des neutrons.

Sur quatre voies, au taux de 65 MS/s par voie, 60 μ s de signal nécessitent 30 Ko de mémoire. Si l'acquisition avait été déclenchée à chaque impulsion du faisceau, 800 fois par seconde, le taux de transfert de données, et de consommation de mémoire, aurait été de 24 Mo par seconde. Pourtant, un seul rayon γ induit par les neutrons était détecté sur 30 impulsions du faisceau, dans tous les quatre cristaux du CLOVER. Le flash γ était détecté une fois sur trois impulsions du faisceau. La validation par la présence d'un rayon γ créé par une réaction avec un neutron a permis de réduire le taux de transfert de données à 0,9 Mo par seconde, ou 3 Go par heure d'acquisition avec le faisceau. Pendant deux semaines de l'expérience, nous avons enregistré 480 Go de données comprenant le calibrage du détecteur avec des sources, des tests avec une cible de ^{209}Bi , ainsi que 85 heures d'acquisition avec la cible de plomb naturel.

4.9 Traitement des données

Les séries d'échantillons ont été traitées à l'aide de nos logiciels afin d'en extraire l'énergie et le temps de détection des impulsions. La durée totale de l'acquisition avec la cible de plomb était de 85 heures. Une partie des données provenant de l'un des quatre cristaux du CLOVER présentait des variations du gain provoquées par un mauvais contact électrique à l'entrée du module ADC. Dans cette voie il a été possible d'utiliser les données correspondant à seulement 55 heures d'acquisition.

Vu que, au moment de l'expérience, les modules TNT étaient toujours en cours de développement, il a été constaté le problème technique de la perte occasionnelle de bits lors du transfert des données de l'échantillonneur à la mémoire interne du module. Cette perte de bits se traduisait par de sauts ponctuels de la valeur des échantillons. Les sauts étaient toujours limités à un seul échantillon. La fréquence des sauts variait, selon la voie d'acquisition, de 1,5 à 20 sauts par tranche de données enregistrée lors d'une impulsion du faisceau, ce qui revient à un taux de 0,4 à 5 sauts sur mille échantillons. Ces sauts étaient susceptibles de générer de fausses reconnaissances des impulsions lors du traitement, et d'affecter la résolution en temps et en énergie. Alors, un filtre spécial a été appliqué avant tout traitement des données afin d'enlever les sauts. Chaque fois qu'un saut a été reconnu dans la série, la valeur de l'échantillon était remplacée par la valeur moyenne de l'échantillon précédent et l'échantillon suivant. La figure 4.23 représente l'exemple d'une impulsion affectée par un nombre de sauts exceptionnellement grand et le résultat du traitement de cette impulsion par le filtre.

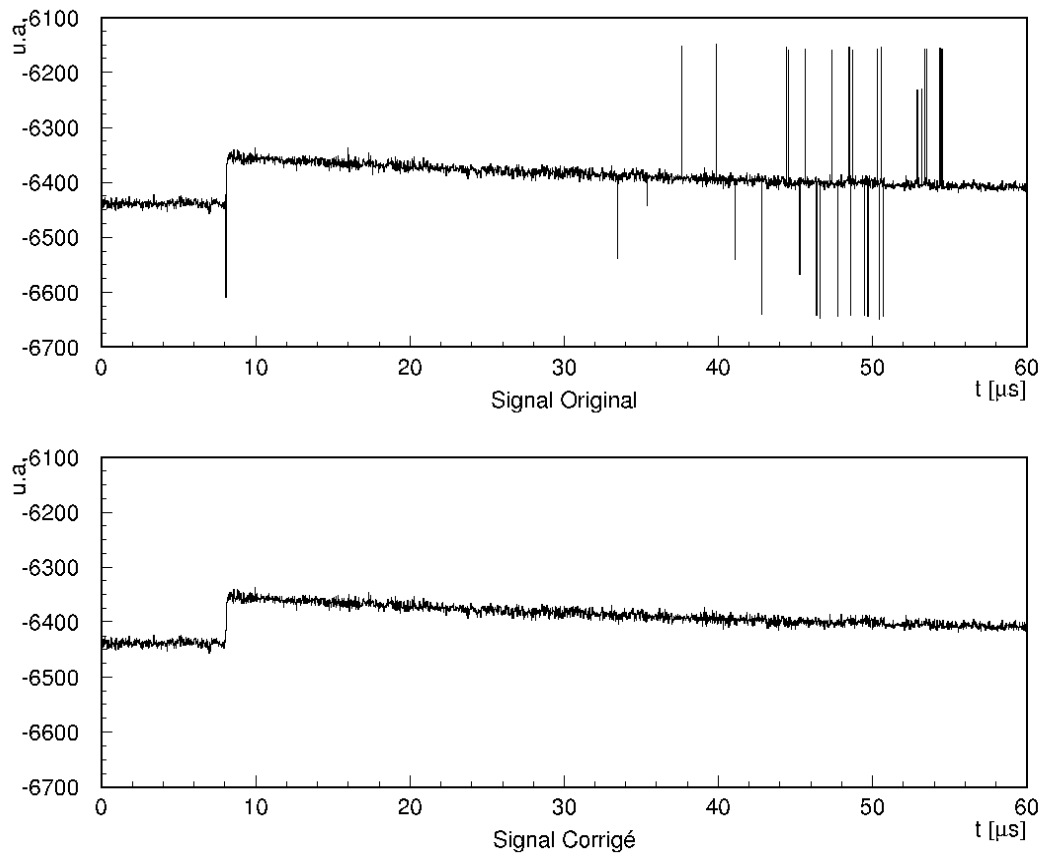


Figure 4.23 : Exemple d'une impulsion affectée par des sauts (haut) et le résultat du traitement de cette impulsion par le filtre (bas).

REFERENCES :

- [1] W. K. Warburton et al., *Digital Pulse Processing : New Possibilities in Nuclear Spectroscopy*, présenté à Conference on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications (IRMMA-99), le 3-7 Octobre 1999, Raleigh, NC
- [2] Emmanuel C. Ifeachor, Barrie W. Jervis, *Digital Signal Processing – A Practical Approach*, Addison – Wesley, Harlow, 1997
- [3] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd edition, John Wiley & Sons, New York, 2000
- [4] R. L. Chase, *Pulse Timing System for Use with Gamma Rays on Ge(Li) Detectors*, Review of Scientific Instruments **39** (1968) 1318-1326
- [5] V. T. Jordanov, G. F. Knoll, *Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A345** (1994) 337-345
- [6] V. T. Jordanov et al., *Digital techniques for real-time pulse shaping in radiation measurements*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A353** (1994) 261-264
- [7] L. Mihailescu, *Principles and Methods for γ -Ray Tracking With Large Volume Ge Detectors*, doctoral thesis, Rheinischen Friedrich – Wilhelms – Universität Bonn, Mathematisch Naturwissenschaftlichen Fakultät, Bonn, 2000
- [8] A. Pullia et al., *Quasi-Optimum γ and X Spectroscopy Based on Real-Time Digital Techniques*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A439** (2000) 378-384
- [9] W. Skulski et al., *Towards Digital γ -Ray and Particle Spectroscopy*, Acta Physica Polonica **B31** (2000) 47-58
- [10] V. Radeka, *Trapezoidal Filtering of Signals From Large Germanium Detectors at High Rates*, Nuclear Instruments and Methods **99** (1972) 525-539

Chapitre 5

Résultats

5 Résultats

Dans ce chapitre, les résultats de nos mesures sont présentés. Au début, la performance de la méthode numérique est évaluée et le spectre intégral du rayonnement γ est regardé en détail. Ensuite, les courbes de section efficace des raies γ les plus importantes, en fonction de l'énergie des neutrons, sont déterminées à partir des spectres partiels avec la sélection du temps de vol. Ces résultats sont comparés aux prédictions du code théorique TALYS [29], ainsi qu'aux résultats d'autres expériences. La contribution de la diffusion inélastique et celle des réactions $(n,2n)$ et $(n,3n)$ à ces courbes est séparée l'une de l'autre à l'aide des calculs du TALYS pour le rapport des sections efficaces en jeu. Les sections efficaces totales pour la diffusion inélastique sur ^{208}Pb et pour la réaction $(n,2n)$ sur ^{207}Pb et ^{208}Pb sont évaluées et comparées aux évaluations existantes et aux résultats d'autres expériences. Les valeurs numériques de tous les résultats obtenus sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

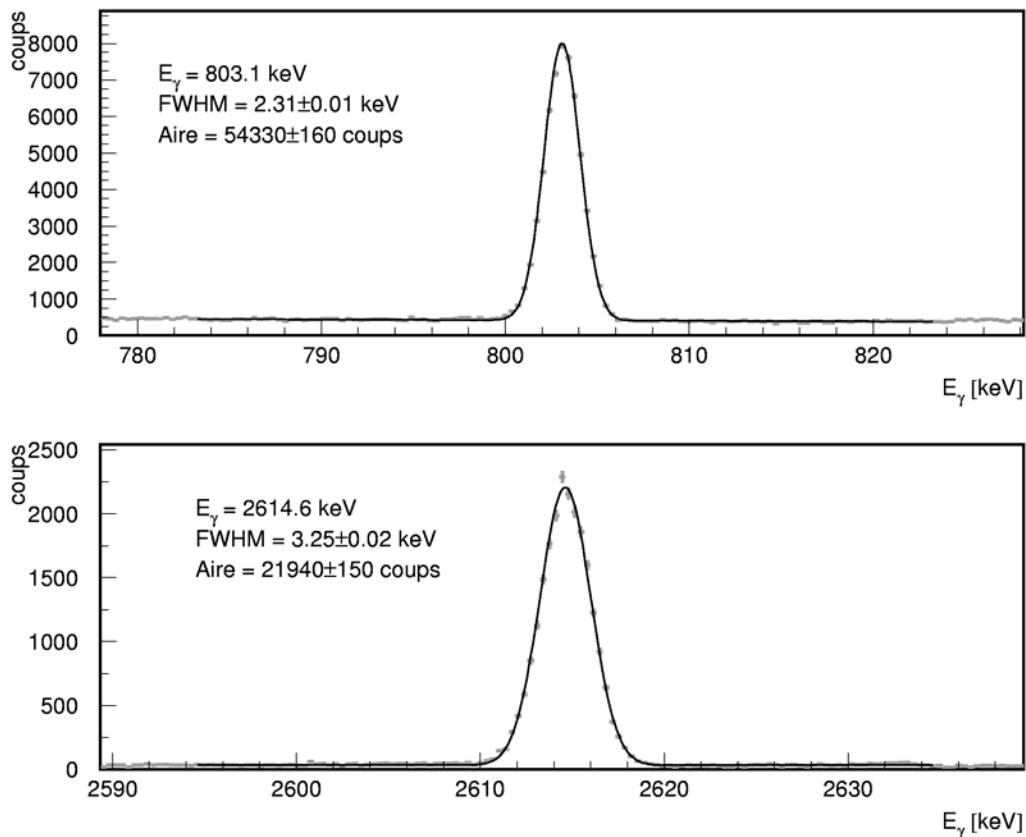


Figure 5.1 : Résolution en énergie des deux raies γ les plus proéminentes dans le spectre intégral

5.1 Spectre intégral en énergie γ

Les séries d'échantillons ont été traitées en utilisant les méthodes décrites dans le chapitre 4

afin d'en extraire l'énergie et le temps de détection des impulsions. Les données provenant des quatre cristaux ont été calibrées selon les positions des raies correspondant à la transition du premier état excité vers l'état fondamental du ^{206}Pb (803,1 keV) et du ^{208}Pb (2614,5 keV). Les paramètres de la méthode trapézoïdale choisis pour le traitement étaient $2 \mu\text{s}$ pour la montée, et $1 \mu\text{s}$ pour le plateau de l'impulsion ou $k = 3 \mu\text{s}$ et $l = 2 \mu\text{s}$. La résolution en énergie était de 2,3 keV pour la raie à 803,1 keV et de 3,1 keV pour la raie à 2614,5 keV (Figure 5.1). Les valeurs de la résolution pour plusieurs raies de 110 à 4085 keV sont représentées dans la figure 5.2.

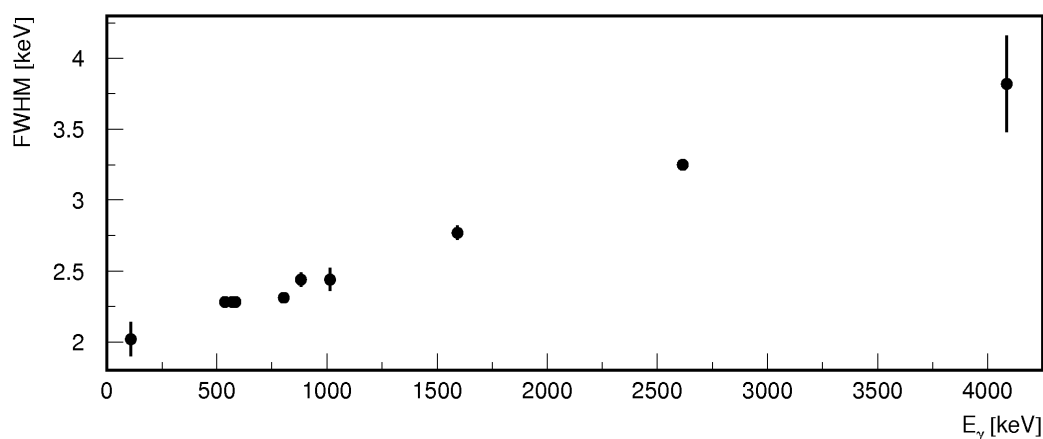


Figure 5.2 : Résolution en énergie des plusieurs raies γ de 110 à 4085 keV dans le spectre intégral.

Le spectre en énergie γ , sommé sur tous les canaux, obtenu en 85 heures d'acquisition sous faisceau,⁴ est représenté dans les figures 5.3-5. Le nombre total de coups dans le spectre, entre 0 et 4700 keV, est de $5,76 \times 10^6$. Les énergies des raies visibles dans le spectre sont indiquées dans les figures. L'isotope émetteur, ainsi que l'état initial et final des transitions sont identifiés dans le tableau 5.1. Les états sont dénotés par leur spin et parité, et leur énergie est indiquée. Les énergies des transitions et les données sur les niveaux proviennent de la table d'isotopes de R. B. Firestone [30]. Les transitions des trois isotopes principaux du plomb naturel sont bien visibles, ainsi que les raies provenant de la diffusion des neutrons dans le cristal du détecteur et les raies caractéristiques de l'aluminium, du cuivre et du fluor. L'aluminium et le cuivre font partie des matériaux de la capsule et du cryostat du détecteur. Le support de la cible est, également, en aluminium, et une partie du collimateur à l'entrée de la salle d'expérience est en cuivre (Figure 3.5).

⁴ A part le canal qui présentait les variations du gain et dont seulement 55 heures ont pu être utilisés (voir section 4.9 *Traitement des données*).

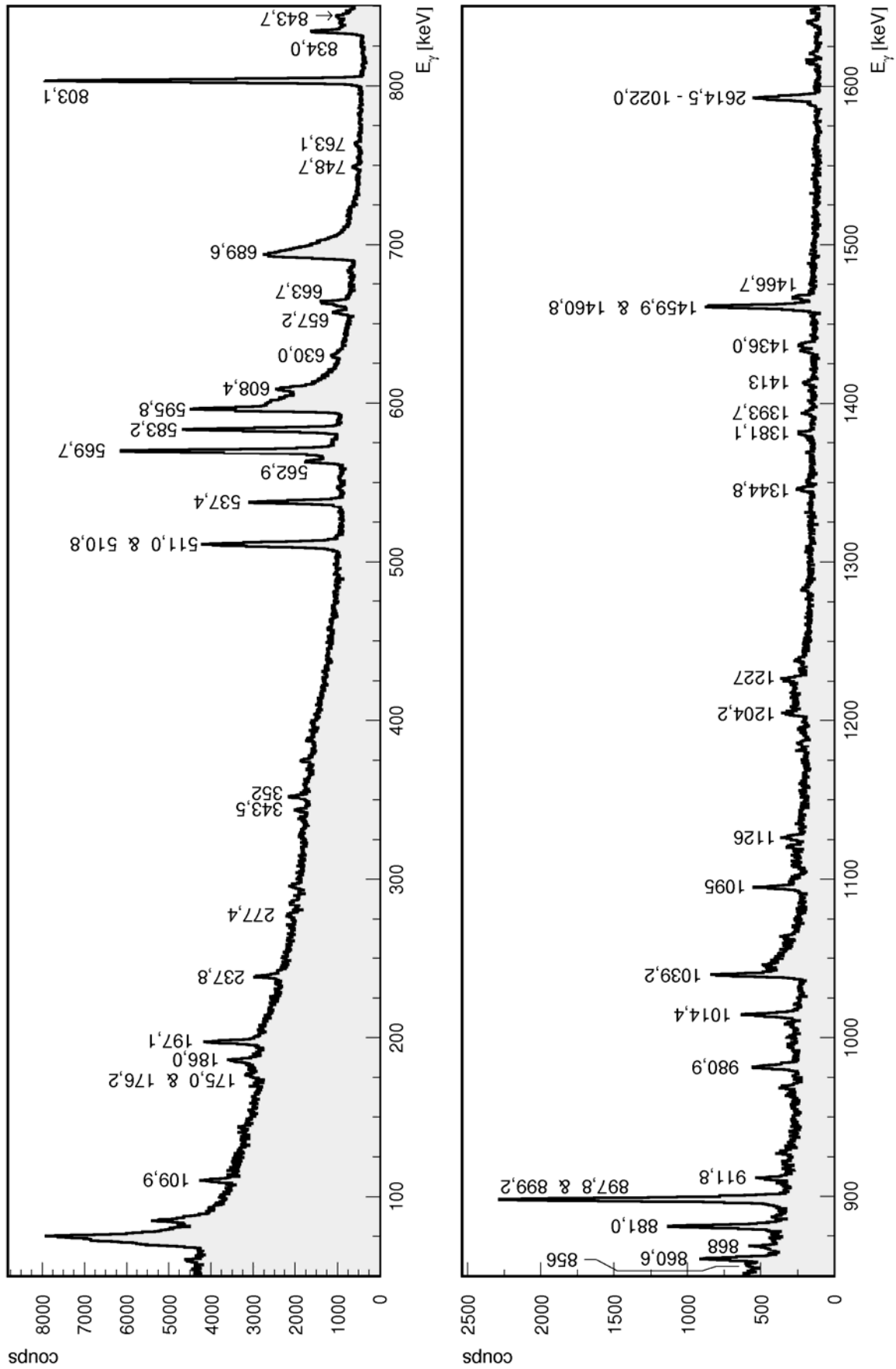


Figure 5.3 : Spectre intégral du rayonnement γ obtenu en 85 heures d'acquisition sous le faisceau.

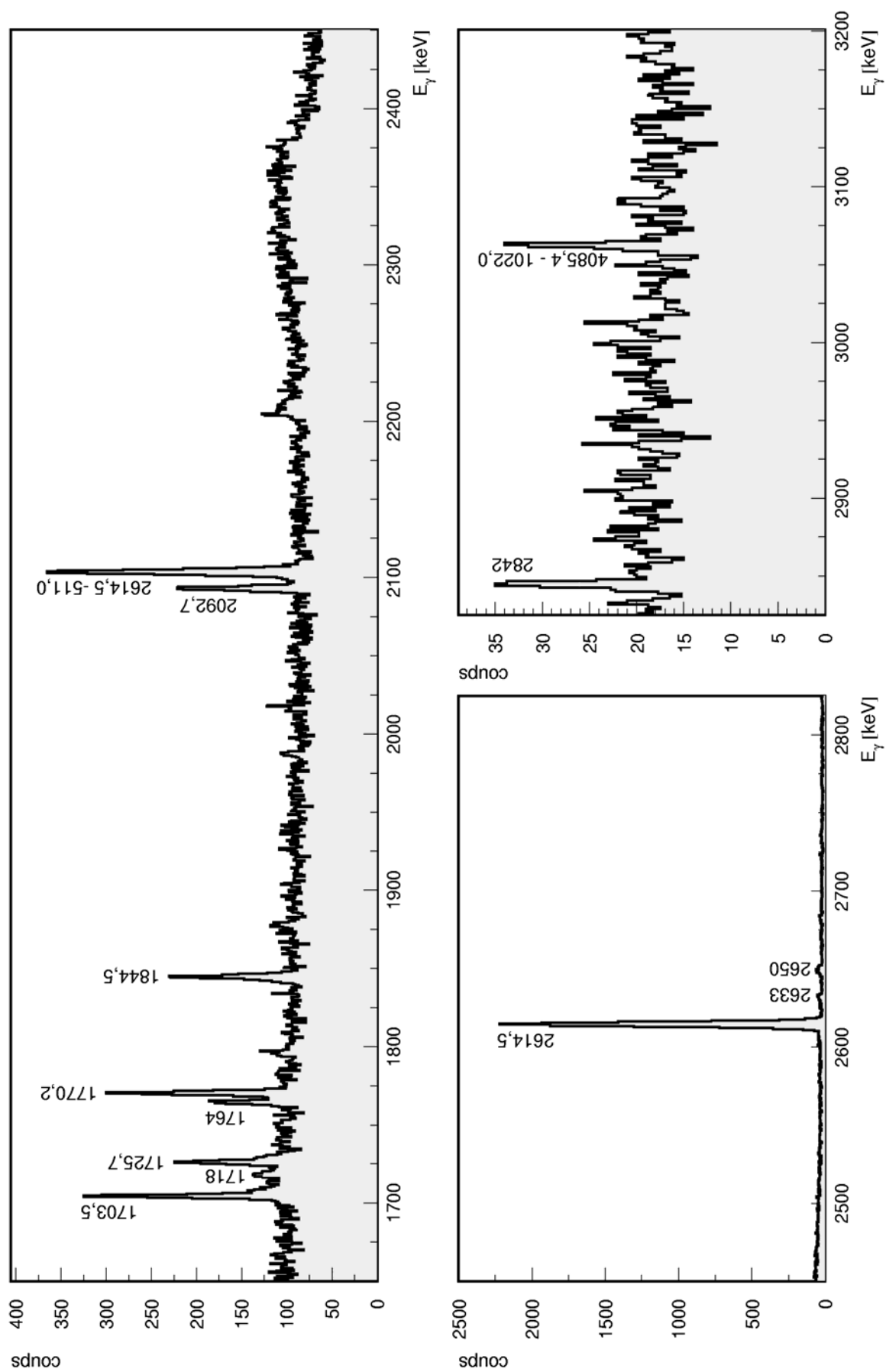


Figure 5.4 : Spectre intégral du rayonnement γ obtenu en 85 heures d'acquisition sous le faisceau.

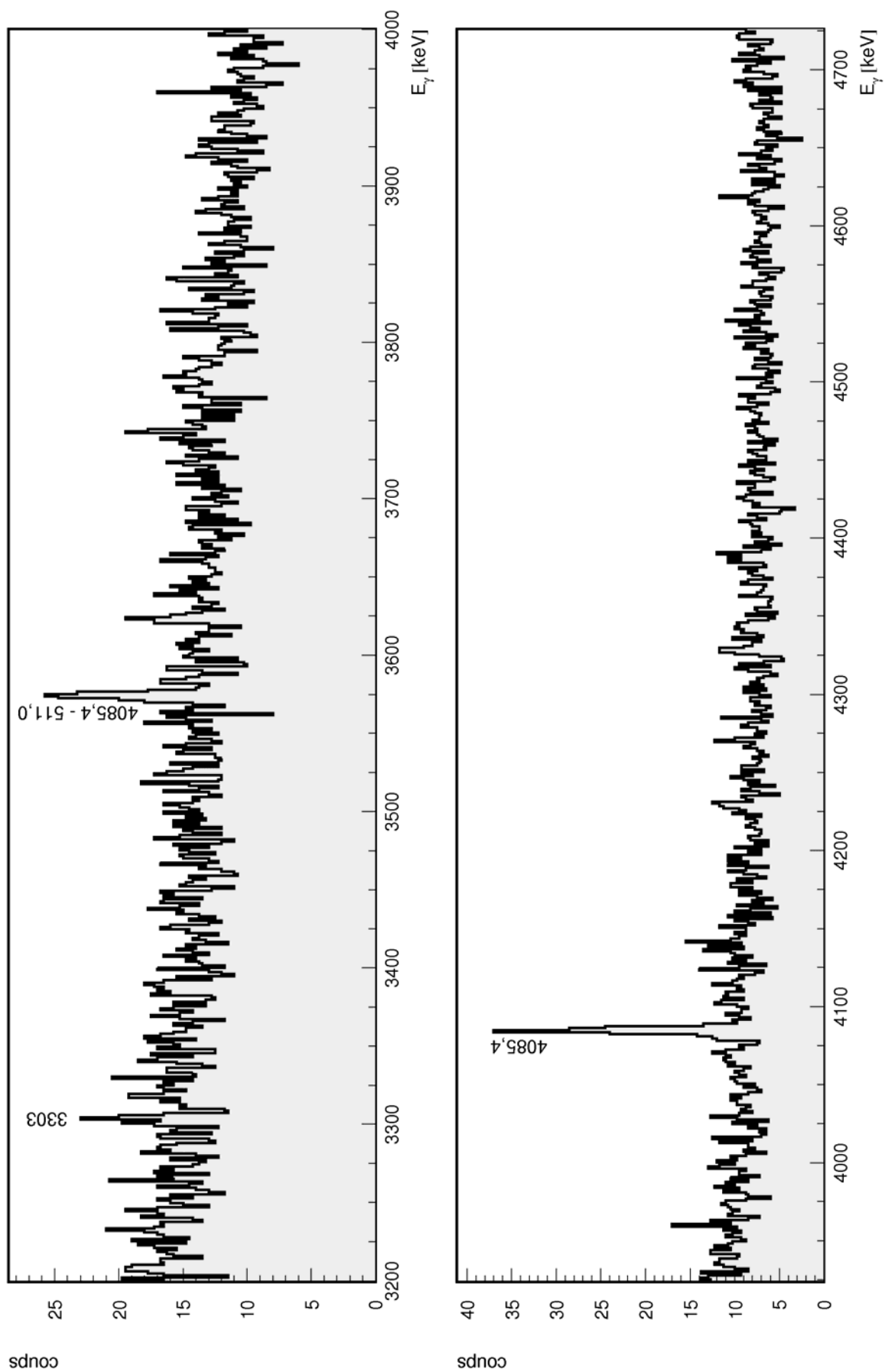


Figure 5.5 : Spectre intégral du rayonnement γ obtenu en 85 heures d'acquisition sous le faisceau.

Tableau 5.1 : Identification des raies visibles dans le spectre

E_γ [keV]	Isotope (réaction)	Etat initial	Etat final
109,9	^{19}F	$1/2^-$ (109,9)	$1/2^+$ (0)
175,0	$^{71\text{m}}\text{Ge}$	$5/2^-$ (175,0) 79 ns	$1/2^-$ (0)
176,2	^{70}Ge	0^+ (1215,4)	2^+ (1039,2)
186,0	$^{65}\text{Cu} (n,\gamma) ^{66}\text{Cu}$	2^+ (186,0)	1^+ (0)
197,1	^{19}F	$5/2^+$ (197,1)	$1/2^+$ (0)
237,8	$^{65}\text{Cu} (n,\gamma) ^{66}\text{Cu}$	$?^?$ (237,8)	1^+ (0)
277,4	^{208}Pb	4^- (3475,1)	5^- (3197,7)
343,5	^{206}Pb	4^+ (1684,0)	3^+ (1340,5)
374,7	^{204}Pb	4^+ (1274,0)	2^+ (899,2)
510,8	^{208}Pb	5^- (3708,4)	5^- (3197,7)
511,0	annihilation e^+	-	-
516,2	^{206}Pb	7^- (2200,2)	4^+ (1684,0)
537,4	^{206}Pb	3^+ (1340,5)	2^+ (803,1)
562,9 (triangulaire)	^{76}Ge	2^+ (562,9)	0^+ (0)
569,7	^{207}Pb	$5/2^-$ (569,7)	$1/2^-$ (0)
583,2	^{208}Pb	5^- (3197,7)	3^- (2614,6)
595,8 (triang.)	^{74}Ge	2^+ (595,9)	0^+ (0)
608,4	^{74}Ge	2^+ (1204,2)	2^+ (595,9)
630,0	^{72}Ge	2^+ (1464,1)	2^+ (834,1)
657,2	^{206}Pb	4^+ (1997,7)	3^+ (1340,5)
663,7	^{206}Pb	2^+ (1466,7)	2^+ (803,1)
689,6 (e^- , triang.)	^{72}Ge	0^+ (691,6) 444,2 ns	0^+ (0)

E_γ [keV]	Isotope (réaction)	Etat initial	Etat final
748,7	^{208}Pb	4^- (3946,4)	5^- (3197,7)
763,1	^{208}Pb	5^- (3961,0)	5^- (3197,7)
803,1	^{206}Pb	2^+ (803,1)	0^+ (0)
834,0 (triangulaire)	^{72}Ge	2^+ (834,1)	0^+ (0)
843,7	^{27}Al	$1/2^+$ (843,8)	$5/2^+$ (0)
856	^{206}Pb	(2196,7)	3^+ (1340,5)
860,6	^{208}Pb	4^- (3475,1)	3^- (2614,6)
881,0	^{206}Pb	4^+ (1684,0)	2^+ (803,1)
897,8	^{207}Pb	$3/2^-$ (897,8)	$1/2^-$ (0)
899,2	^{204}Pb	2^+ (899,2)	0^+ (0)
911,8	^{204}Pb	9^- (2185,8) 67,2 m	2^+ (899,2)
980,9	^{206}Pb	2^+ (1784,2)	2^+ (803,1)
1014,4	^{27}Al	$3/2^+$ (1014,4)	$5/2^+$ (0)
1039,2 (triang.)	^{70}Ge	2^+ (1039,2)	0^+ (0)
1063,7	^{207}Pb	$13/2^+$ (1633,4)	$5/2^-$ (569,7)
1095	^{207}Pb	$9/2^+$ (2727)	$13/2^+$ (1633,4)
1204,2	^{74}Ge	2^+ (1204,2)	0^+ (0)
1344,8	^{206}Pb	2^+ (2147,9)	2^+ (803,1)
1381,1	^{208}Pb	$(5)^-$ (3995,7)	3^- (2614,6)
1393,7	^{206}Pb	(2196,7)	2^+ (803,1)
1436,0	^{208}Pb	(3^-) (1436,0)	3^- (2614,6)
1459,9	^{206}Pb	2^+ (1459,9)	0^+ (0)
1460,8	^{40}K (EC) ^{40}Ar	2^+ (1460,9)	0^+ (0)

E_γ [keV]	Isotope (réaction)	Etat initial	Etat final
1466,7	^{206}Pb	2^+ (1466,8)	0^+ (0)
1703,5	^{206}Pb	1^+ (1703,5)	0^+ (0)
1725,7	^{207}Pb	$5/2^+$ (2623,5)	$3/2^-$ (897,8)
1770,2	^{207}Pb	$7/2^-$ (2339,9)	$5/2^-$ (569,7)
1844,5	^{206}Pb	3^- (2647,8)	2^+ (803,1)
2092,7	^{207}Pb	$7/2^+$ (2662,4)	$5/2^-$ (569,7)
2614,5	^{208}Pb	3^- (2614,6)	0^+ (0)
3303	^{207}Pb	$1/2^+$ (3305)	$1/2^-$ (0)
4085,4	^{208}Pb	2^+ (4085,4)	0^+ (0)

5.2 Principe de l'extraction des sections efficaces à partir des spectres γ

La statistique de données acquise pendant 85 heures permet de déduire le nombre d'événements dans les raies γ correspondant aux réactions $(n, n'\gamma)$ et $(n, 2n\gamma)$ sur les noyaux de ^{206}Pb , ^{207}Pb et ^{208}Pb induites par les neutrons jusqu'à 20 MeV. Pour établir la dépendance du nombre de transitions γ détectées en fonction de l'énergie des neutrons, la gamme d'énergies des neutrons a été divisée par intervalles de différentes largeurs, et les spectres du rayonnement γ induit par les neutrons de ces intervalles ont été créés par sélection du temps de vol. Les critères de définition de la largeur des intervalles étaient la résolution de la mesure du temps de vol et la statistique des rayons γ obtenus dans chaque intervalle. Ce dernier critère était le plus limitant. Le début de la gamme était divisé par intervalles de 0,3 à 0,5 MeV, de 0,5 à 0,8 MeV et de 0,8 à 1,0 MeV afin de tenir compte du seuil de la réaction (n, inl) sur ^{206}Pb et ^{207}Pb . Ensuite, la partie entre 1 et 4 MeV était divisée par intervalles de 0,5 MeV de large et la partie de 4 à 13 MeV par intervalles de 1,0 MeV de large. Les trois derniers intervalles étaient de 13 à 15, de 15 à 17 et de 17 à 20 MeV.

La figure 5.6 montre une partie du spectre γ induit par les neutrons des intervalles 2,5 – 3,0 MeV et 8,0 – 9,0 MeV. Cet exemple illustre clairement la dépendance des intensités relatives de différentes raies du spectre γ en fonction de l'énergie des neutrons qui les induisent.

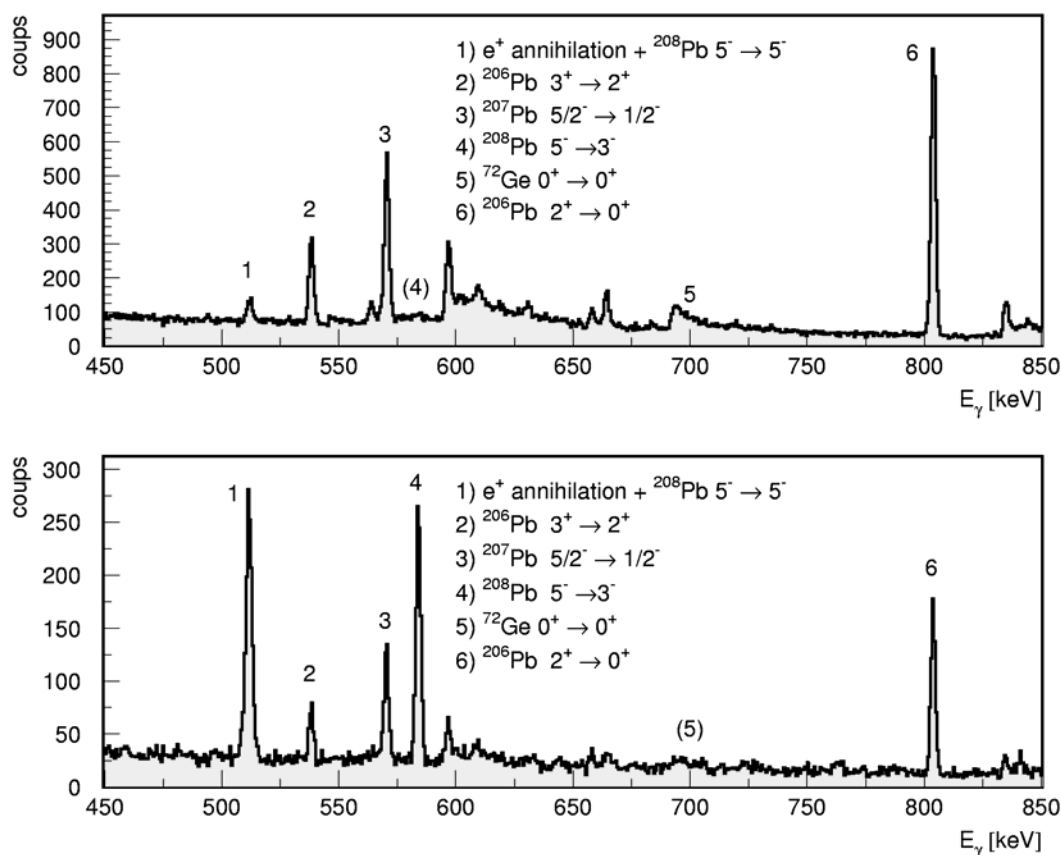


Figure 5.6 : Vue partielle du spectre en énergie des rayons γ induits par les neutrons de 2,5 – 3,0 MeV (haut) et de 8,0 – 9,0 MeV (bas).

5.2.1 Correction des pertes dues à l’empilement

Les paramètres de la méthode trapézoïdale $k = 3 \mu\text{s}$ et $l = 2 \mu\text{s}$ ont permis de traiter les rayons γ séparés de $3,0 \mu\text{s}$ en temps et de mieux préserver la résolution en énergie γ . Comme le temps de vol du flash γ est de $0,66 \mu\text{s}$, il était possible de traiter pratiquement sans pertes les rayons γ induits par les neutrons dont le temps de vol était supérieur à $3,66 \mu\text{s}$, ce qui correspond à 15 MeV d’énergie (voir appendice 1). Pour les neutrons plus rapides, il était nécessaire d’appliquer la correction pour la perte due à l’empilement sur les impulsions du flash γ . Pour y arriver, le logiciel de traitement numérique enregistre le histogramme des temps de détection de toutes les impulsions traitées dans la « voie rapide », dédiée à la mesure du temps de détection, ainsi que de celles traitées dans la « voie lente », dédiée au calcul de l’énergie par la méthode trapézoïdale. Dans la voie rapide, le temps mort par impulsion était de $1 \mu\text{s}$ tandis que, dans la voie lente, ce temps était de $3 \mu\text{s}$. Les deux histogrammes diffèrent en nombre d’impulsions qui ont pu être traitées par la voie rapide mais qui ont été rejetées par la voie lente. Dans les deux histogrammes, le nombre de coups a été intégré sur tous les intervalles de temps correspondant aux intervalles choisis d’énergie de neutrons. Le rapport des deux intégrales a été utilisé comme facteur de correction de la perte dans tous les

intervalles. La figure 5.7 représente le facteur de correction en fonction de l'énergie de neutrons. Dans les intervalles jusqu'à 15 MeV, la perte de coups était de 0,3 à 1%, ce qui peut être attribué à l'empilement aléatoire des impulsions induites par les neutrons et de celles provenant du fond. Pour les neutrons les plus rapides la perte s'élevait jusqu'à 13%, ce qui est, clairement, la conséquence de l'empilement systématique sur les impulsions du flash γ . Les barres d'erreurs proviennent de l'incertitude de l'intégrale de nombre de coups dans la voie rapide et la voie lente. Cette estimation est basée sur la supposition que dans la voie rapide il n'y a pas de pertes, ce qui n'est correct qu'approximativement. Pourtant, puisque la perte due à l'empilement aléatoire dans la voie lente est de l'ordre de 1%, cette approximation est juste à moins de 1% du nombre total d'impulsions près. L'empilement systématique dans les deux derniers intervalles n'affecte pas la voie rapide, puisque le temps mort de 1 μ s dans la voie rapide permet de traiter les impulsions induites par les neutrons de jusqu'à plus de 100 MeV sans perturbations par le flash γ .

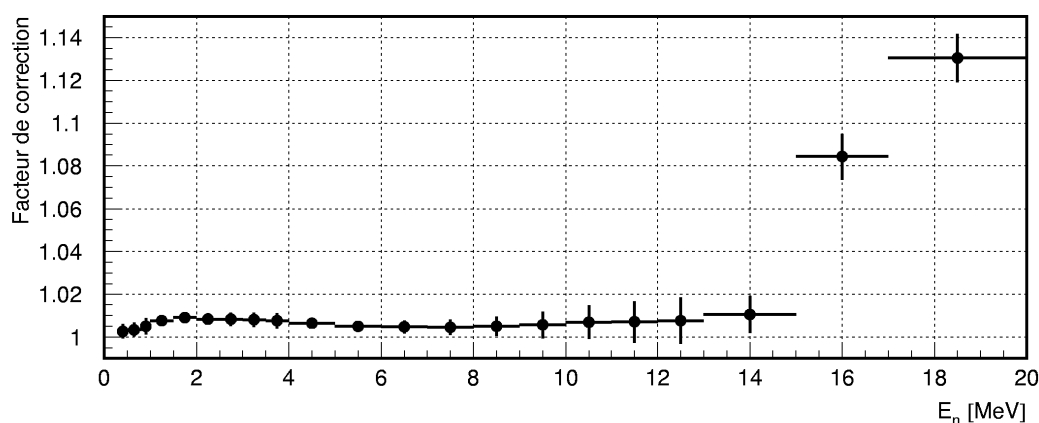


Figure 5.7 : Facteur de correction de perte de coups en fonction de l'énergie des neutrons.

5.2.2 Sections efficaces relatives

La courbe gaussienne a été ajustée à toutes les raies étudiées, en somme avec le polynôme du premier ou du deuxième ordre pour le fond. Le nombre de coups dans les raies a été estimé à partir des paramètres obtenus pour la courbe gaussienne. Pour obtenir les valeurs relatives des sections efficaces, les aires des raies étudiées dans les spectres du rayonnement γ , induit par les neutrons de différents intervalles d'énergie, ont été divisées par la valeur relative de la fluence de neutrons dans le même intervalle. La fluence relative de neutrons a été obtenue à partir de la mesure à l'aide de chambre de fission pendant une autre expérience. L'estimation des valeurs absolues de la section efficace nécessite la connaissance de l'efficacité absolue de détection des rayons γ et de la fluence absolue de neutrons intégrée pendant le temps entier de la mesure pour tous les intervalles d'énergie de neutrons. Vu que l'objectif de ce travail était la mise au point d'une méthode, ces paramètres n'ont pas été mesurés. Les valeurs absolues ont été obtenues à l'aide du calcul théorique fait par le code TALYS (Chapitre 2). Il est évident qu'une mesure véritable exige que les grandeurs liées au détecteur et au faisceau

soient mesurées.

5.2.3 Etats isomériques

Lors de l'analyse des transitions observées il est nécessaire de prêter attention aux états isomériques présents dans les cascades de décroissance du noyau résiduel. La décroissance d'un noyau qui passe par un état isomérique est retardée et les transitions de la cascade qui suit la transition de l'état isomérique ne sont pas émises en corrélation avec le temps de vol du neutron qui a induit la réaction. L'exemple le plus simple est la cascade à partir de l'état isomérique $13/2^+$ de ^{207}Pb (Figure 5.8). Le retard introduit par l'état isomérique affecte l'intensité de la raie à 569,7 keV de deux manières. Dans le spectre du rayonnement γ détecté dans l'intervalle T de temps de vol des neutrons, l'intensité de la raie à 569,7 keV est diminuée pour le nombre de cascades qui passent par l'état isomérique. En même temps, une fraction de noyaux produits dans l'état isomérique par les neutrons plus rapides décroît pendant l'intervalle T et émet le rayon γ de 569,7 keV qui est, alors, faussement attribué aux neutrons de l'intervalle T .

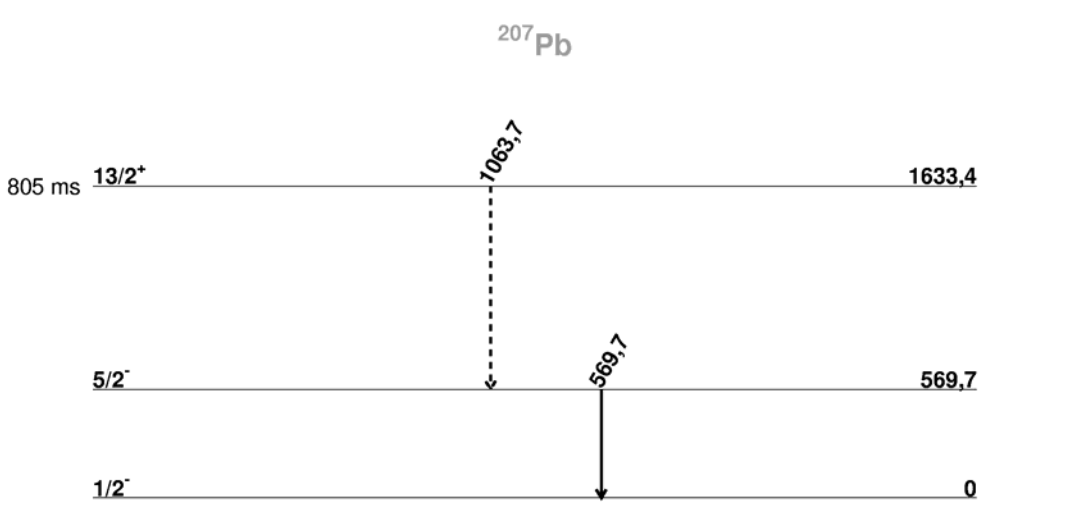


Figure 5.8 : Une fraction des transitions du premier état excité de ^{207}Pb est alimenté par la transition de l'état isomérique $13/2^+$. Cette fraction est retardée et n'est pas émise en corrélation avec le temps de vol du neutron qui a induit la réaction.

Afin de donner une expression quantitative à cette dernière observation, les limites des tranches d'énergies de neutrons seront dénotés E_i ($i \in [0, n]$), et les limites des intervalles correspondants de temps de vol, t_i , de la sorte que pour i croissant, E_i croît, et t_i décroît. La probabilité qu'un noyau résiduel, produit en état isomérique m par les neutrons de la tranche (E_{j-1}, E_j) , décroisse dans l'intervalle de temps ultérieur (t_i, t_{i-1}) correspondant à la tranche (E_{i-1}, E_i) , ou $j > i$, peut être exprimée comme :

$$p_{ij}^m = \frac{\ln 2}{\tau_m (t_{j-1} - t_j)} \int_{t_j}^{t_{j-1}} dt' \int_{t_i}^{t_{i-1}} dt'' e^{-\frac{t''-t'}{\tau_m} \ln 2} \tag{5.1}$$

Ici, τ_m dénote la demi-vie de l'état isomérique. Une équation similaire exprime la probabilité que le noyau produit en même état décroisse dans le même intervalle de temps dans lequel il a été produit :

$$p_{ii}^m = \frac{\ln 2}{\tau_m (t_{i-1} - t_i)} \int_{t_i}^{t_{i-1}} dt' \int_{t'}^{t_{i-1}} dt'' e^{-\frac{t''-t'}{\tau_m} \ln 2} \quad (5.2)$$

Le nombre total des transitions isomériques m dans l'intervalle de temps (t_i, t_{i-1}) pendant la prise de données est :

$$N_i^m = n_{pb} \sum_{i,j(i \leq j)} p_{ij}^m \int_{E_j}^{E_{j-1}} dE \frac{d\phi_E}{dE} \sigma_E^m \quad (5.3)$$

- n_{pb} est le nombre de noyaux de l'isotope initial par l'unité de la surface,
- $d\phi_E$ la fluence, pendant la mesure, de neutrons d'énergie appartenant à l'intervalle $(E, E+dE)$.
- σ_E^m la section efficace de la production de la transition isomérique m par les neutrons de l'énergie E dans le plomb naturel.

Si on suppose que la variation de la section efficace σ_E^m est faible dans chaque tranche (E_{i-1}, E_i) d'énergie de neutrons, l'équation (5.3) peut être approximée par :

$$N_i^m = n_{pb} \sum_{i,j} p_{ij}^m \sigma_{\bar{E}_j}^m \int_{E_j}^{E_{j-1}} dE \frac{d\phi_E}{dE} \quad (5.4)$$

Ici, \bar{E}_j représente le centre de la tranche (E_{j-1}, E_j) d'énergies de neutrons.

Si les rapports de branchement dans la cascade de l'état isomérique sont connus, l'équation (5.4) permet d'estimer la contribution des émissions tardives à l'intensité de la raie considérée dans chaque intervalle d'énergie des neutrons. Après la soustraction de cette contribution, on obtient le nombre de coups de l'émission prompte.

5.3 Normalisation des courbes expérimentales

Pour déterminer les sections efficaces absolues σ_n à partir des sections efficaces relatives mesurées σ_n^M selon l'équation

$$\sigma_n = \alpha \sigma_n^M \quad (5.5)$$

il est nécessaire de déterminer le facteur de normalisation α pour chaque transition étudiée.

Au moins un point de l'une des courbes doit être normalisée à une grandeur supposée connue, trouvée dans une base de données ou calculée à l'aide d'un modèle. Les courbes d'autres raies étudiées peuvent être normalisées à partir du facteur obtenu pour la première courbe en tenant compte de l'efficacité intrinsèque du CLOVER connue sur toute la gamme d'énergies γ concernées [31], et du calcul du taux d'auto-absorption des rayons γ en fonction de leur énergie.

La normalisation par le calcul théorique a été faite pour la courbe de la section efficace de la transition du premier état excité du ^{208}Pb . La raison de ce choix se trouve dans la quantité de données expérimentales sur les réactions de neutrons avec ce noyau, ainsi que sur ses propriétés spectroscopiques. Puisque le code TALYS s'appuie sur les données expérimentales là où elles existent, ses prévisions seront les plus fiables pour cette transition. En plus, le ^{208}Pb n'a pas d'états isomériques et, donc, avec la méthode de spectroscopie γ , on mesure directement la section efficace pour cette transition, ce qui rend l'analyse plus simple.

5.3.1 Normalisation de la courbe pour la transition du premier état excité du ^{208}Pb

Pour la transition du premier état excité du ^{208}Pb Le facteur de normalisation α a été obtenu de la manière suivante : Pour chaque intervalle d'énergie de neutrons, la valeur de la section efficace calculée par TALYS au centre de l'intervalle a été divisée par la valeur relative mesurée dans cet intervalle. Tous les rapports ainsi obtenus ont été pondérés de l'inverse du carré de l'incertitude relative de la valeur expérimentale pour l'intervalle en question et le rapport moyen a été calculé. Ce rapport moyen représente le facteur de normalisation recherché :

$$\alpha = \frac{\sum_n w_n \frac{\sigma_n^T}{\sigma_n^M}}{\sum_n w_n} \quad (5.6)$$

- σ_n^T est la section efficace absolue calculée par TALYS pour le centre de l'intervalle n ,
- w_n est le poids de l'intervalle n , $w_n = \frac{1}{\left(\frac{\Delta\sigma_n^M}{\sigma_n^M}\right)^2}$

Les valeurs normalisées sont, donc :

$$\sigma_n = \alpha\sigma_n^M = \sigma_n^M \frac{\sum_k w_k \frac{\sigma_k^T}{\sigma_k^M}}{\sum_k w_k} \quad (5.7)$$

L'expression la plus simple pour l'incertitude des valeurs ainsi obtenues est

$$\Delta\sigma_n = \sigma_n^M \Delta\alpha + \alpha \Delta\sigma_n^M \quad (5.8)$$

Pourtant, ainsi on néglige la corrélation entre les valeurs de α et σ_n^M . Le facteur α dépend des valeurs σ_n^M et son incertitude est corrélée avec l'incertitude de σ_n^M . L'expression plus juste serait la suivante :

$$\Delta\sigma_n = \sum_k \left| \frac{\partial\sigma_n}{\partial\sigma_k^M} \right| \Delta\sigma_k^M \quad (5.9)$$

ou,

$$\Delta\sigma_n = \Delta\sigma_n^M \left(\frac{\sum_k w_k \frac{\sigma_k^T}{\sigma_k^M}}{\sum_k w_k} - \sigma_k^M \frac{w_n \left(-\frac{\sigma_n^T}{(\sigma_n^M)^2} \right)}{\sum_k w_k} \right) + \frac{\sum_{k \neq n} w_k \frac{\sigma_k^T}{(\sigma_k^M)^2} \Delta\sigma_k^M}{\sum_k w_k} \quad (5.10)$$

Les erreurs $\Delta\sigma_k^M$ des valeurs mesurées ont été obtenues à partir de l'incertitude du nombre de coups dans les raies γ et l'incertitude du flux de neutrons.

5.3.2 Normalisation des courbes pour les autres transitions

Pour déduire le facteur de normalisation pour les autres transitions à partir du facteur de normalisation obtenu pour la raie à 2614,5 keV, on procède comme suit.

Le nombre d'événements détectés dans la raie γ d'une certaine énergie caractéristique du noyau résiduel d'une réaction induite par les neutrons d'énergie E_n peut être exprimé comme :

$$N_{E\gamma, E_n} = n_{Pb} \phi_{E_n} \sigma_{E\gamma, E_n}^* k_{E\gamma} \varepsilon_{E\gamma}^{\text{int}} \varepsilon^g \quad (5.11)$$

- n_{Pb} est le nombre de noyaux de plomb (tous les isotopes compris) par l'unité de la surface de la cible,
- ϕ_{E_n} la fluence de neutrons d'énergie E_n pendant la mesure,
- $\sigma_{E\gamma, E_n}^*$ la section efficace de la production de la transition γ de l'énergie E_γ par les neutrons de l'énergie E_n dans le plomb naturel,
- $k_{E\gamma}$ le facteur d'auto-absorption des rayons γ de l'énergie E_γ dans la cible,
- $\varepsilon_{E\gamma}^{\text{int}}$ l'efficacité intrinsèque du détecteur pour l'effet photoélectrique des rayons γ

de l'énergie E_γ et

- ε^g est l'efficacité géométrique comprenant l'effet de distribution angulaire des rayons γ .

Les sections efficaces relatives mesurées sont :

$$\sigma_{E_\gamma, En}^M = \frac{N_{E_\gamma, En}}{\phi_{En}} = n_{Pb} \sigma_{E_\gamma, En}^* k_{E_\gamma} \varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}} \varepsilon^g \quad (5.12)$$

L'équation (5.5) et (5.12) donne le facteur de normalisation α_{E_γ} pour la transition E_γ :

$$\alpha_{E_\gamma} = \frac{1}{n_{Pb} k_{E_\gamma} \varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}} \varepsilon^g} \quad (5.13)$$

Puisque toutes les raies ont été mesurées simultanément, les paramètres n_{Pb} et ε^g sont communs pour toutes les transitions étudiées. Le rapport entre les facteurs de normalisation pour deux transitions dénommées a et b est :

$$\frac{\alpha_a}{\alpha_b} = \frac{k_b \varepsilon_b^{\text{int}}}{k_a \varepsilon_a^{\text{int}}} \quad (5.14)$$

Les paramètres k et ε^{int} ne dépendent que de l'énergie de la transition.

Il s'ensuit que, une fois le facteur de normalisation connu pour l'une des transitions étudiées, il suffit de connaître le rapport entre les facteurs d'auto-absorption et les efficacités intrinsèques de détection de la transition dont le facteur est connu et une autre transition pour obtenir le facteur de normalisation de celle-ci. Dans notre cas, la transition du premier état excité du ^{208}Pb est normalisée à l'aide du calcul théorique. Le facteur de normalisation pour les autres courbes est :

$$\alpha_{E_\gamma} = \frac{k_{2614} \varepsilon_{2614}^{\text{int}}}{k_{E_\gamma} \varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}}} \alpha_{2614} \quad (5.15)$$

L'incertitude du facteur α_{E_γ} est estimée à partir de l'incertitude du facteur α_{2614} et l'incertitude du rapport des efficacités de détection et du taux d'auto-absorption :

$$\Delta \alpha_{E_\gamma} = \Delta \left(\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}} \right) \frac{\varepsilon_{2614}^{\text{int}}}{\varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}}} \alpha_{2614} + \frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}} \Delta \left(\frac{\varepsilon_{2614}^{\text{int}}}{\varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}}} \right) \alpha_{2614} + \frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}} \frac{\varepsilon_{2614}^{\text{int}}}{\varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}}} \Delta \alpha_{2614} \quad (5.16)$$

5.3.3 Facteur d'auto-absorption des rayons γ dans la cible

Pour une certaine énergie E_γ du rayonnement γ émis des noyaux de la cible dans un certain

angle solide Ω , le facteur k_{E_γ} d'auto-absorption est défini comme suit :

$$I = k_{E_\gamma} I_0 \quad (5.17)$$

où I_0 représente l'intensité du rayonnement γ de l'énergie E_γ émis dans l'angle solide Ω , et I représente l'intensité du rayonnement γ de la même énergie émanant de la cible dans le même angle solide. Ainsi, le facteur k_{E_γ} représente la fraction relative des rayons γ de l'énergie E_γ qui survivent jusqu'à sortir de la cible.

Pour la situation expérimentale discutée ici, l'angle solide Ω est l'angle solide couvert par le détecteur, vu de la position de l'émission du rayon γ de la cible. Les points d'émission des rayons γ sont, eux aussi, distribués sur tout le volume de la cible.

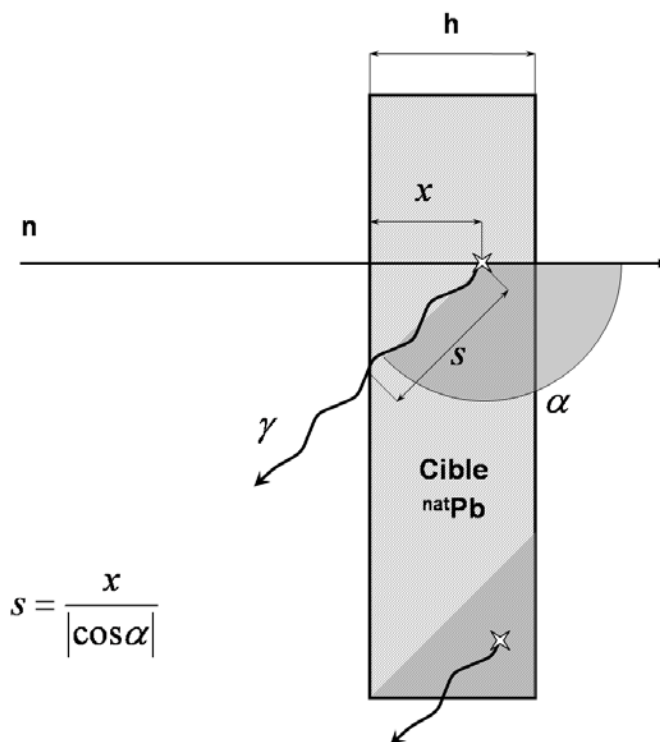
Une approche rigoureuse nécessiterait la simulation du transport des neutrons et des rayons γ en tenant compte de l'atténuation du faisceau et les détails de la géométrie cible – détecteur. Nous nous contenterons d'un calcul simple avec plusieurs approximations. L'erreur du rapport $\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}}$ due aux approximations est estimée dans l'appendice 1.

Pour faciliter le calcul, nous supposons que tous les rayons γ sont émis sous un angle moyen $\alpha = 135^\circ$ par rapport au faisceau (Figure 5.9). Si la profondeur x du point du départ du rayon est mesurée à partir de la face de la cible frappée par le faisceau, la longueur s du parcours d'un rayon γ dans la cible est égale au produit de la profondeur x et l'inverse de la valeur absolue du cosinus de l'angle α .

L'atténuation du faisceau dans la cible va être négligée. Il suit que les profondeurs x du point du départ des rayons γ sont uniformément distribuées sur l'épaisseur de la cible. Pour un rayon γ d'énergie E_γ qui parcourt la distance $s = x / \cos \alpha$, la probabilité de survie est donnée par l'expression,

$$P_{E_\gamma}(x) = e^{-\frac{\mu_{E_\gamma}}{\cos \alpha} x}. \quad (5.18)$$

Les rayons émis de la région proche au bord de la cible du côté détecteur parcourent une distance plus courte avant d'émerger. Cette région est marquée en bas de la figure 5.9. Cet effet est, aussi, négligé et l'erreur ainsi produite est estimée dans l'appendice 1.



$$s = \frac{x}{|\cos \alpha|}$$

Figure 5.9 : Schéma du parcours des rayons γ émis des noyaux de la cible dans la direction du détecteur.

Le paramètre $\mu_{E\gamma}$ représente le facteur d’atténuation du rayonnement γ dans le plomb. Pour obtenir le facteur d’auto-absorption $k_{E\gamma}$, il suffit de calculer la valeur moyenne de $P_{E\gamma}(x)$ sur l’épaisseur h de la cible. Puisque les points du départ sont uniformément distribués, la fonction de distribution est constante.

$$k_{E\gamma} = \frac{\int_0^h e^{-\frac{\mu_{E\gamma} x}{\cos \alpha}} dx}{\int_0^h dx} \tag{5.19}$$

Le facteur d’atténuation linéaire $\mu_{E\gamma}$ peut être déduit à partir du facteur d’atténuation massique μ/ρ dont les valeurs sont disponibles en forme de tableau sur le site web du NIST (National Institute for Standards and Technology) des Etats-Unis [32]. Le tableau 5.2 liste les valeurs μ/ρ , $\mu_{E\gamma}$ et $k_{E\gamma}$ pour les énergies des raies γ étudiées dans ce travail. Le facteur μ/ρ a été obtenu par interpolation linéaire entre les valeurs du tableau NIST, le facteur $\mu_{E\gamma}$ représente le produit de μ/ρ et la densité de masse du plomb $\rho = 11,340 \frac{g}{cm^3}$ et $k_{E\gamma}$ est obtenu selon l’équation (5.19), pour les valeurs $h = 0.6 \text{ cm}$ et $\alpha = 135^\circ$.

Tableau 5.2 : Facteurs d'atténuation et d'auto-absorption du rayonnement γ étudié.

Transition	E_γ [keV]	μ_{E_γ} [cm ⁻¹]	k_{E_γ}	k_{2614} / k_{E_γ}
²⁰⁶ Pb 7 ⁻ → 4 ⁺	516,2	1,763	0,519	1,572
²⁰⁶ Pb 3 ⁺ → 2 ⁺	537,4	1,677	0,533	1,531
²⁰⁷ Pb 5/2 ⁻ → 1/2 ⁻	569,7	1,540	0,558	1,462
²⁰⁸ Pb 5 ⁻ → 3 ⁻	583,2	1,486	0,568	1,437
²⁰⁶ Pb 2 ⁺ → 2 ⁺	663,7	1,284	0,609	1,340
²⁰⁶ Pb 2 ⁺ → 0 ⁺	803,1	1,006	0,673	1,212
²⁰⁶ Pb 4 ⁺ → 2 ⁺	881,0	0,925	0,693	1,177
²⁰⁷ Pb 3/2 ⁻ → 1/2 ⁻	897,8	0,908	0,697	1,171
²⁰⁶ Pb 2 ⁺ → 0 ⁺	1466,7	0,602	0,783	1,042
²⁰⁶ Pb 1 ⁺ → 1 ⁺	1703,5	0,564	0,795	1,026
²⁰⁸ Pb 3 ⁻ → 0 ⁺	2614,6	0,496	0,816	0,0438

Le résumé des approximations faites dans ce calcul est le suivant :

- L'atténuation du faisceau dans la cible a été négligée.
- On a supposé que tous les rayons γ détectés sont émis sous l'angle de 135°.
- Le parcours plus court des rayons émis de la région proche au bord de la cible du coté détecteur a été négligé.

Les incertitudes dues aux approximations de ce calcul sont estimées dans l'appendice 3.

L'incertitude relative totale du rapport $\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}}$ est estimée pour toutes les transitions.

5.3.4 Efficacités intrinsèques de détection du rayonnement γ par CLOVER

La courbe d'efficacités intrinsèques de détection du rayonnement γ par CLOVER a été mesurée par G. Duchêne et al. [31] dans le cadre d'une étude étendue des caractéristiques principales de ce type de détecteur. La figure 5.10 représente les résultats de la mesure de l'efficacité en mode « direct », avec les sources de ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu, ¹³³Ba et ⁵⁶Co. Le mode « direct » comprend la somme simple des spectres obtenus sur les cristaux individuels, sans récupération de l'énergie totale de l'événement où l'énergie a été déposée dans plusieurs

cristaux par l'effet Compton. C'est dans ce mode que les données ont été traitées dans ce travail.

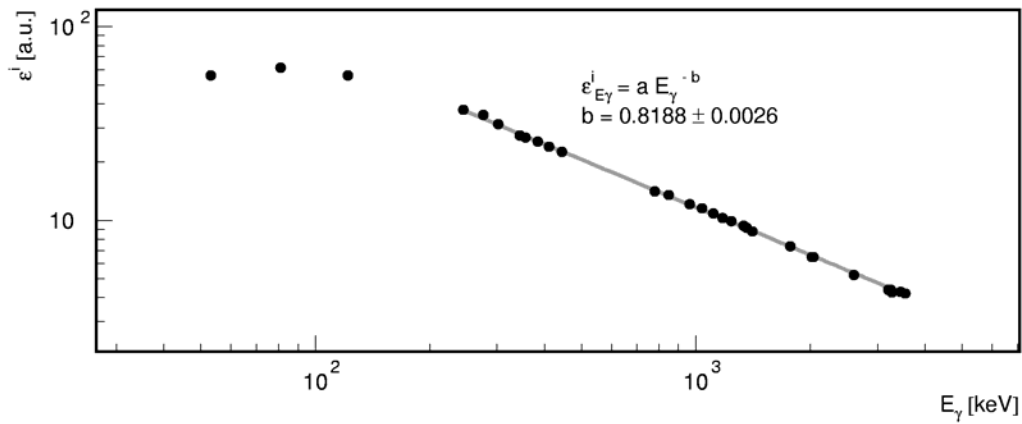


Figure 5.10 : Courbe d'efficacités intrinsèques relatives du CLOVER en mode direct.

Une courbe de la loi de puissance,

$$\varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}} = a E_\gamma^{-b}, \quad (5.20)$$

a été ajustée aux données de G. Duchêne et al. entre 244 keV et 3550 keV. Les énergies du rayonnement γ étudié dans ce travail sont toutes situées à l'intérieur de cet intervalle. Les points aux énergies 53,2 keV (^{133}Ba), 81,0 keV (^{133}Ba) et 121,8 keV (^{152}Eu) ont été exclus du calcul de la courbe à cause de l'effet de la couche morte à la surface du détecteur, qui diminue l'efficacité aux énergies basses. Ce qui nous intéresse dans ce calcul est la valeur ajustée au paramètre b de l'équation (5.20). Cette valeur permet de calculer le rapport d'efficacités intrinsèques de détection des rayons γ des différentes énergies :

$$\frac{\varepsilon_{2614}^{\text{int}}}{\varepsilon_{E_\gamma}^{\text{int}}} = \left(\frac{2614,5}{E_\gamma} \right)^{-b} \quad (5.21)$$

La valeur obtenue pour le paramètre b est $0,8188 \pm 0,0026$.

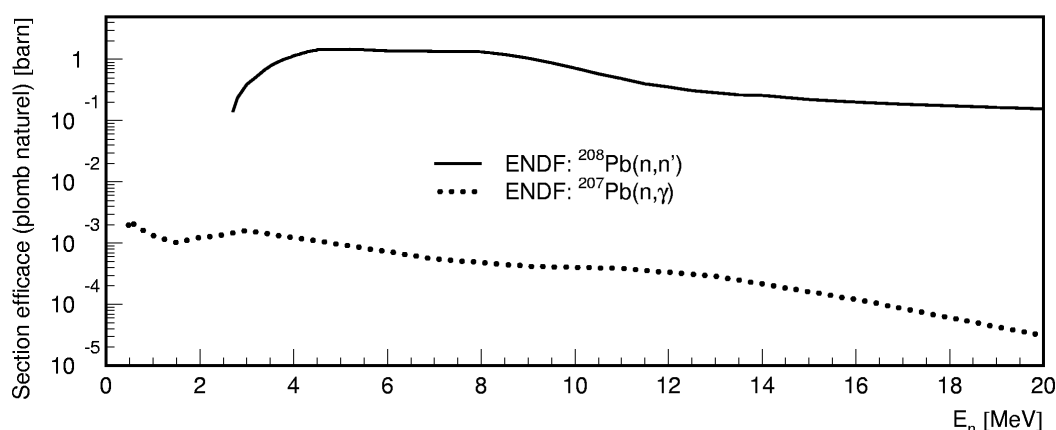


Figure 5.11 : Sections efficaces ENDF des réactions $^{208}\text{Pb}(n,inel)$ et $^{207}\text{Pb}(n,\gamma)$ multipliées par les abondances des isotopes initiaux et comparées sur l'échelle logarithmique.

5.4 Transitions caractéristiques de ^{208}Pb

Dans notre expérience il y a deux réactions différentes dont l'isotope résiduel est ^{208}Pb . L'une d'elles est la réaction de capture de neutron par le ^{207}Pb , et l'autre est la réaction de diffusion inélastique du neutron sur le ^{208}Pb . Les deux réactions contribuent à la production des transitions caractéristiques du ^{208}Pb . Le rapport des deux contributions peut être estimé en multipliant les sections efficaces par l'abondance des isotopes initiaux. Le produit de la section efficace et l'abondance de l'isotope initial peut être compris comme la section efficace de la réaction en question sur le plomb naturel. Selon les évaluations existantes ([10], [11], [12]), la contribution attendue de la capture par le ^{207}Pb est de trois ordres de grandeur inférieure à la contribution de la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb , sur toute la gamme d'énergies de neutrons à partir du seuil de la diffusion inélastique. Pour cette raison elle sera négligée dans ce qui suit. La figure 5.11 représente la comparaison, sur l'échelle logarithmique, de l'évaluation ENDF des sections efficaces des réactions $^{208}\text{Pb}(n,inel)$ et $^{207}\text{Pb}(n,\gamma)$, multipliées par les abondances naturelles des isotopes initiaux respectifs.

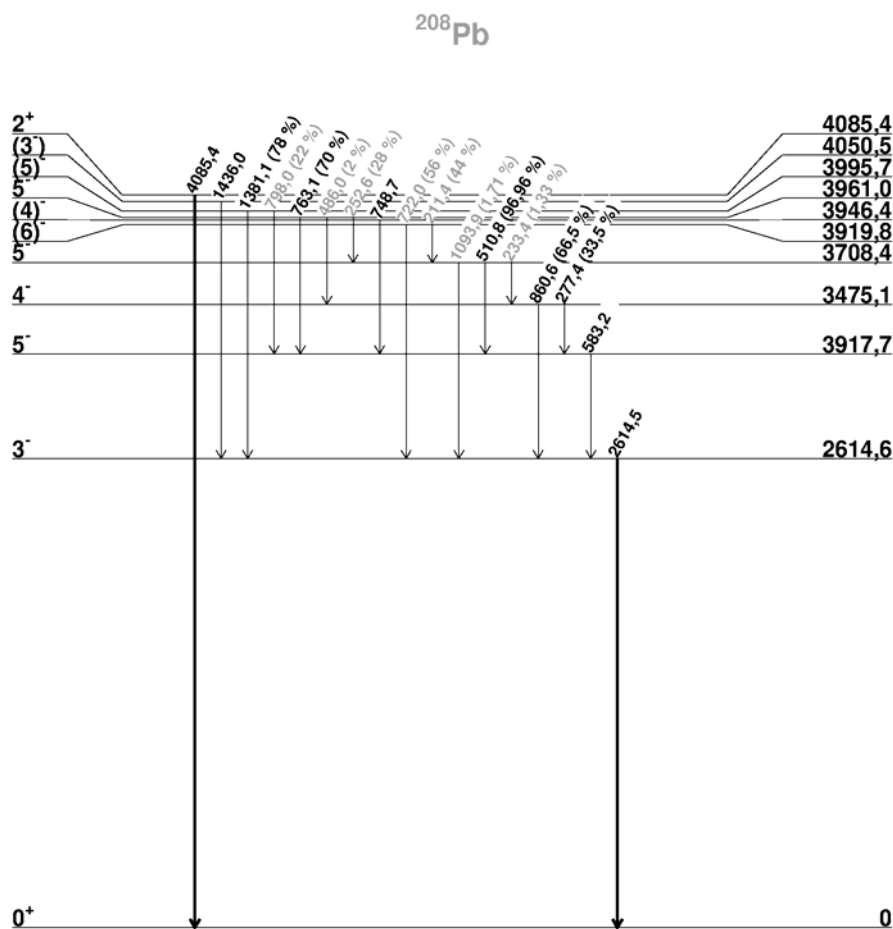


Figure 5.12 : Schéma des niveaux de ^{208}Pb [30]. Les intensités relatives sont notées pour les niveaux avec plusieurs voies de décroissance.

5.4.1 Transition du premier état excité de ^{208}Pb

Le schéma des niveaux du ^{208}Pb est représentée dans la figure 5.12 [30]. Le noyau de ^{208}Pb est un noyau doublement magique. Pour un noyau de cette région de masse, l'énergie de son premier état excité est très élevée, 2614,6 keV. Il s'agit d'un état de vibration octupolaire [1]. Le spin/parité de cet état est 3^- . La transition E3 vers l'état fondamental se passe par l'émission d'un rayon γ de 2614,5 keV. Dans le spectre intégral du rayonnement γ détecté pendant les 85 heures de notre mesure, le nombre de coups dans cette raie est de 21900.

Le deuxième niveau qui décroît directement vers l'état fondamental est l'état 2^+ à 4085,4 keV, le premier état de la bande de vibrations quadripolaires de l'état fondamental. Ainsi, les cascades de tous les états excités jusqu'à 4 MeV doivent passer par le premier état excité. Donc, la section efficace partielle pour la production de la raie à 2614,5 keV est égale à la section efficace totale pour la diffusion inélastique du seuil jusqu'à 4 MeV. Même au-delà de 4 MeV, la section efficace partielle pour cette transition représente toujours plus de 90 % de la section efficace totale pour la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb .

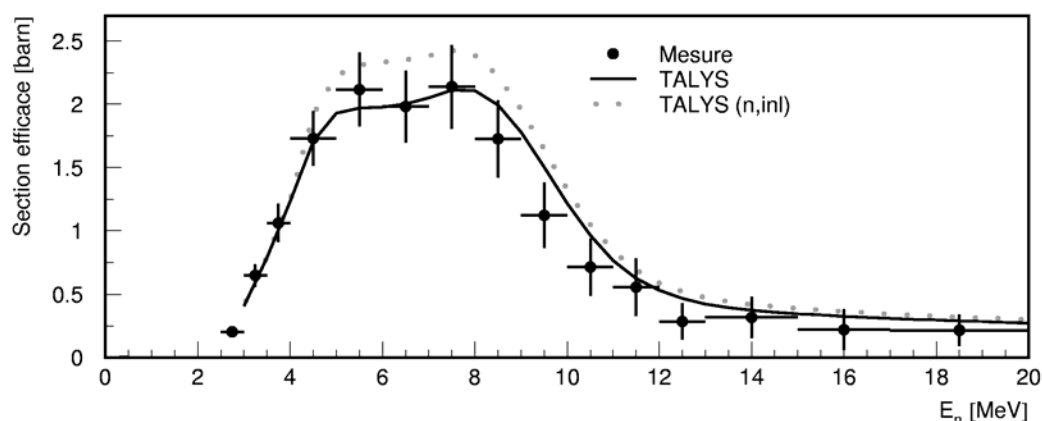


Figure 5.13 : Section efficace de la production de la transition du premier état excité de ^{208}Pb par la diffusion inélastique de neutrons. La courbe de la section efficace totale pour la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb est présentée en pointillé.

La section efficace mesurée de la production de la transition du premier état excité a été normalisée selon l'équation (5.7). Le résultat est représenté dans la figure 5.13 par les points avec les barres d'erreur. Les erreurs sont estimées à partir de l'incertitude statistique du nombre de rayons γ détectés, l'incertitude de la fluence mesurée des neutrons et l'incertitude de la normalisation. Les valeurs numériques des résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4. Les valeurs ont été divisées par l'abondance naturelle de ^{208}Pb afin de correspondre aux sections efficaces isotopiques. La ligne solide représente la prévision de TALYS pour la même courbe, et la ligne en pointilles représente la prévision de TALYS pour la section efficace totale de la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb .

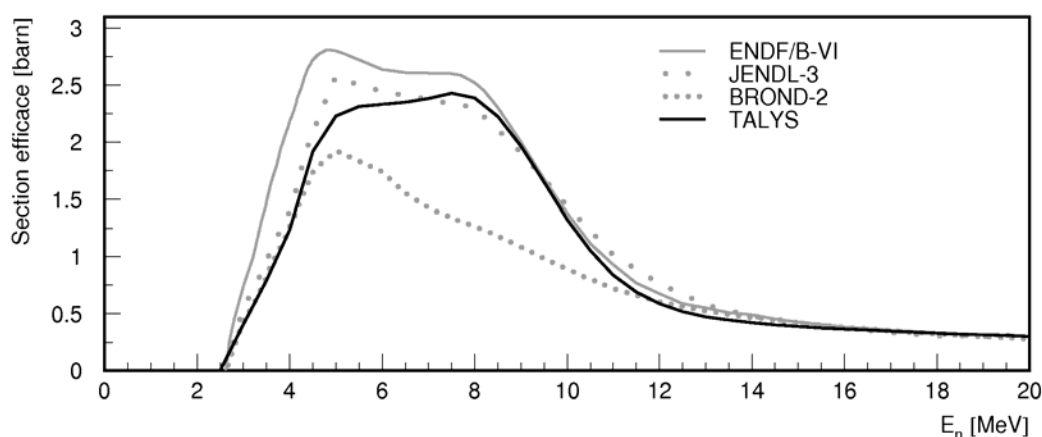


Figure 5.14 : Comparaison des évaluations ENDF/B-IV [10], JENDL-3 [11], BROND-2 [12] et du calcul par TALYS, de la section efficace de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,inl)$ du seuil à 20 MeV.

La description de la forme de la courbe expérimentale par le calcul de TALYS est satisfaisante. Concernant les valeurs absolues, puisqu'elles sont obtenues à l'aide d'un modèle théorique ou d'une base de données, elles dépendent du choix de code/évaluation utilisé pour la normalisation. Pour illustration, la figure 5.14 compare les évaluations de bases de données

ENDF/B-VI [10], JENDL-3 [11], BROND-2 [12] et le calcul par TALYS, de la section efficace totale de la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb dans ce domaine d'énergies de neutrons. Il est clair que les évaluations ne sont pas univoques ni au niveau des valeurs absolues, ni au niveau de la forme de la courbe de la section efficace. ENDF, JENDL et TALYS prédisent tous un plateau large entre 5 et 8 MeV, mais les différences existent au niveau de la pente de ce plateau. ENDF et JENDL prévoient une descente légère, tandis que la courbe de TALYS monte. La pente de la courbe immédiatement après le seuil de la réaction est plus forte chez ENDF que ailleurs, et une bosse est présente au début du plateau. Ces différences sont dues au fait que les valeurs des sections efficaces pour l'alimentation des niveaux discrets sont, en général, plus élevées chez ENDF que chez TALYS. En même temps, la section efficace pour le continuum est plus élevée chez TALYS.

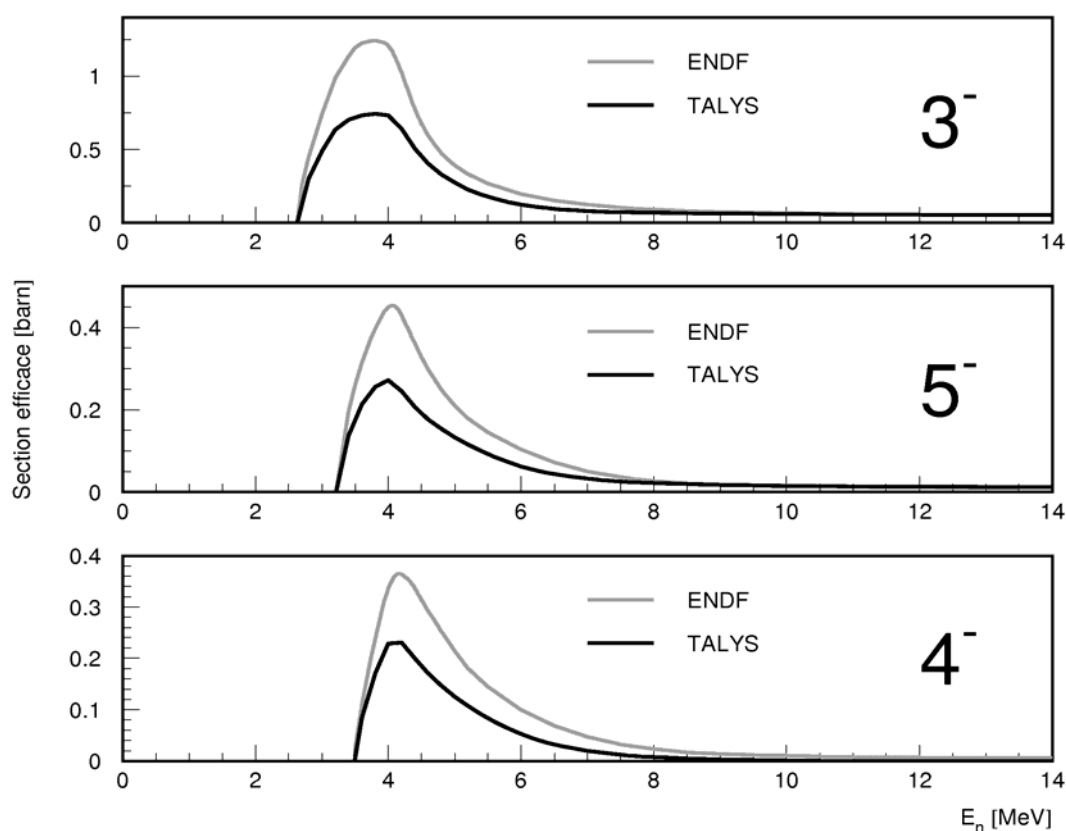


Figure 5.15 : Comparaison des valeurs ENDF et TALYS des sections efficaces pour l'alimentation des trois premiers états excités par la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb .

La figure 5.15 compare les valeurs ENDF et TALYS pour les sections efficaces de l'alimentation des trois premiers états excités. La différence est significative. Selon la documentation ENDF/B-VI [10], les sections efficaces pour les quatre premiers états excités ont été augmentées de jusqu'à 50 % afin de mieux tenir compte des données angulaires de Kinney et Perey [37].

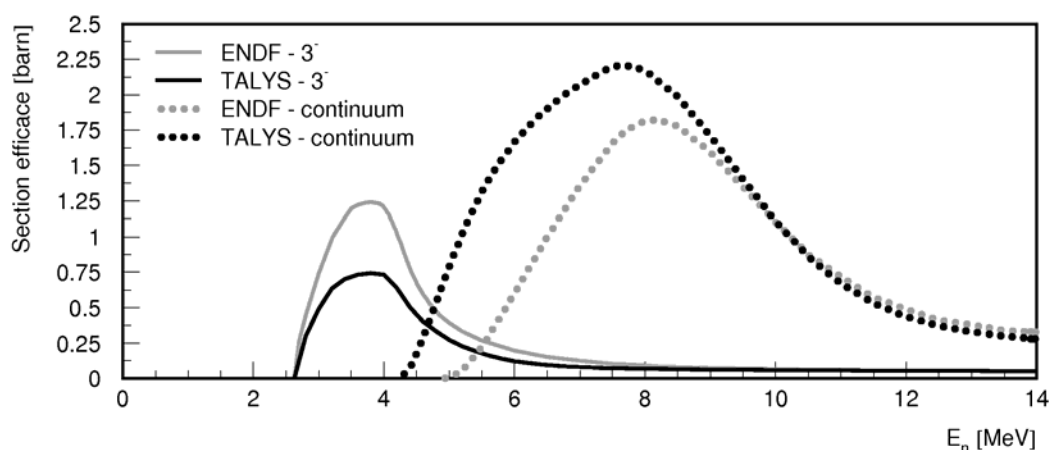


Figure 5.16 : Comparaison des valeurs ENDF et TALYS des sections efficaces pour la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb vers le continuum, et vers le premier état excité.

ENDF traite les 40 premiers états excités comme discrets. Le maximum de la section efficace pour la plupart de ces états se trouve entre 4 et 6 MeV d'énergie de neutrons. Le dernier état considéré comme discret se trouve à 4,8 MeV. Le calcul TALYS qui est utilisé pour ce travail a été effectué en considérant les 25 premiers états excités comme discrets, avec le continuum à partir de 4,32 MeV. La figure 5.16 compare les valeurs ENDF et TALYS pour les sections efficaces de la diffusion inélastique de neutrons sur le ^{208}Pb vers le continuum, et vers le premier état excité. Le rapport de ces courbes explique la différence de la forme des courbes de la section efficace totale pour la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb [38].

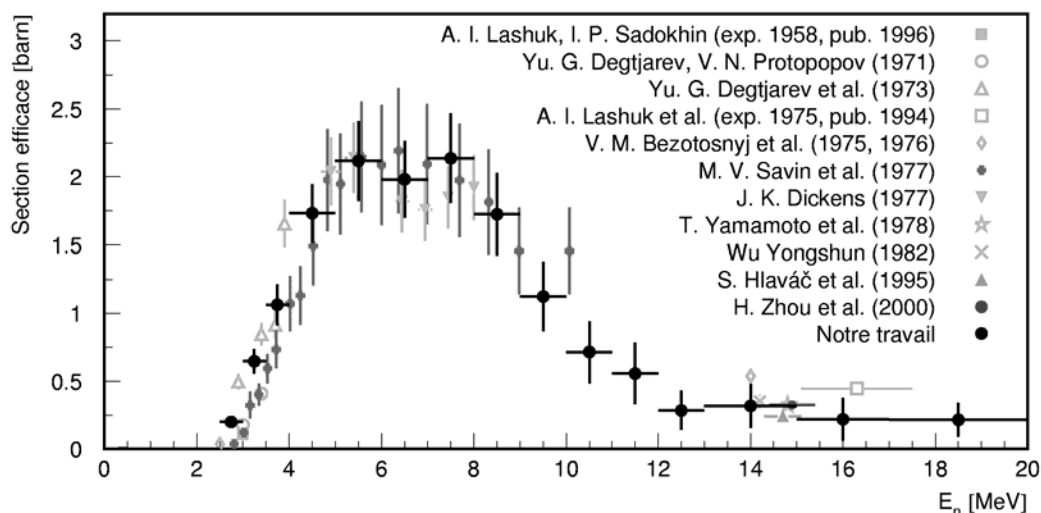


Figure 5.17 : Comparaison de la section efficace pour la transition du premier état excité vers l'état fondamental dans la réaction $^{208}\text{Pb}(n,n'\gamma)$ obtenue dans ce travail avec les résultats d'autres expériences.

La figure 5.17 compare la section efficace partielle pour la production de la transition du premier état excité par la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb , obtenue dans ce travail avec les résultats d'autres expériences.

Lors de la comparaison des différentes expériences il faut prêter attention aux détails de

l'instrumentation et de la méthode utilisée. Avant les années 70, la spectroscopie γ reposait sur l'utilisation des scintillateurs dont la résolution en énergie est très faible par rapport à celle des détecteurs basés sur le germanium. Le scintillateur le plus courant pour la spectroscopie γ était le NaI dont la résolution relative est de l'ordre de 10%. Avec une telle résolution il est impossible de distinguer entre les raies voisines d'un spectre complexe, ni d'éviter des incertitudes systématiques lors de la mesure des sections efficaces pour certaines raies. Le nombre de détecteurs et leur position angulaire représente aussi un détail important pour l'intégration de la distribution angulaire du rayonnement γ . La pratique assez courante lors des mesures avec un seul détecteur est de le placer à 55° , ou 125° par rapport au faisceau. Cette position assure l'intégration exacte des distributions angulaires qui peuvent être représentées par la série de Legendre jusqu'au quatrième ordre. Lorsque les états isomériques existent dans le noyau résiduel, comme dans le cas des ^{206}Pb et ^{207}Pb , encore une considération importante est si les résultats concernent l'émission du rayonnement prompt ou totale.

La mesure de Lashuk et Sadokhin [39] a été faite en 1958. Les rayons γ émis par la cible sous un faisceau des neutrons de 3 MeV ont été détectés à l'aide d'un détecteur NaI.

Les données de Degtjarev et Protopopov [40] ont été prises à l'aide d'un détecteur Ge(Li) placé à 90° par rapport au faisceau de neutrons, pour les énergies de neutrons 3,0 et 3,4 MeV. La base de données EXFOR cite les sections efficaces intégrales dans l'angle solide de 4π .

Un détecteur Ge(Li) a, aussi, été utilisé par Degtjarev et al. [41] pour la mesure sur le plomb naturel du seuil à 3,9 MeV.

Lashuk et al. [42] ont utilisé un détecteur Ge(Li) pour mesurer la section efficace pour plusieurs transitions du plomb naturel auprès d'un faisceau monoénergétique de 16,3 MeV. Les résultats préliminaires de cette expérience ont été publiés pour la première fois en 1975 dans le rapport du « Fiziko-Energeticheskii Institut », Obninsk.

En 1975, Bezotosnyj et al. [43] ont publié les sections efficaces pour plusieurs transitions γ dans le plomb naturel bombardé par les neutrons de 14 MeV. La mesure a été faite à l'aide d'un détecteur NaI pour les rayons γ . En 1976, le même groupe [44] a effectué une mesure similaire à 2,5 MeV et avec un détecteur Ge(Li) pour les rayons γ . L'énergie de 2,5 MeV est un peu au-dessous du seuil de la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb mais la largeur du pic monoénergétique des neutrons a permis qu'une fraction des neutrons induise cette réaction.

Les données de Savin et al. [45] couvrent les énergies de neutrons de 1 à 10 MeV. Ces mesures ont été effectuées auprès d'un faisceau blanc produit par un accélérateur linéaire d'électrons. La technique du temps de vol a été utilisée pour déterminer l'énergie de neutrons. Un détecteur NaI a été utilisé avec la résolution en temps de 1 ns. Dans le fichier EXFOR disponible sur le site du « National Nuclear Data Center » des Etats-Unis, la valeur de la section efficace à 10 MeV est exactement égale à celle à 9 MeV, de même que l'incertitude. Il est possible qu'il s'agisse d'une erreur de l'entrée dans la base de données. Dans le même fichier téléchargé à partir du site de la NEA, la valeur de la section efficace à 9 MeV est différente.

La mesure par J. K. Dickens [46] a été faite pour les énergies entre 5 et 8 MeV, dans une expérience visant à mesurer la section efficace totale pour la diffusion inélastique par la mesure détaillée du rayonnement γ (voir aussi la section suivante). Le détecteur utilisé était un Ge(Li) de 48 cm³.

Wu Yongshun et al. [47] ont mesuré la section efficace pour la production de plusieurs transitions dans le plomb naturel auprès d'un faisceau de 14,2 MeV. Ils ont placé un détecteur Ge(Li) à 55° par rapport au faisceau. Leurs données représentent la section efficace différentielle angulaire. Le point dans la figure 5.17 correspond à cette valeur multipliée par 4π .

La mesure par Hlaváč et al. [48] a été faite avec un détecteur HPGe placé à 124° par rapport au faisceau de neutrons de 14,7 MeV obtenu par la réaction du deutéron avec le tritium.

La même réaction a été utilisée pour produire le faisceau de neutrons de 14,9 MeV dans l'expérience de Zhou et al. [49]. Un détecteur Ge(Li) y était utilisé pour détecter les rayons γ .

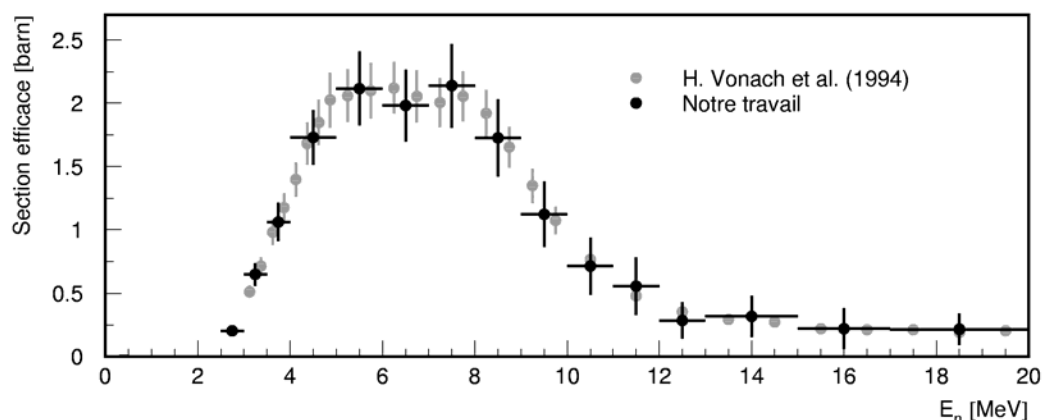


Figure 5.18 : Comparaison de la section efficace pour la transition du premier état excité vers l'état fondamental dans la réaction $^{208}\text{Pb}(n,n'\gamma)$ obtenue dans ce travail avec les données de Vonach et al.

La figure 5.18 compare nos résultats avec ceux de Vonach et al. [50], qui ont effectué leur mesure à Los Alamos National Laboratory de 3 à 200 MeV d'énergie de neutrons, avec un faisceau blanc, la mesure du temps de vol, et la spectroscopie des rayons gamma en ligne à l'aide des détecteurs HPGe. Les différences essentielles par rapport à notre mesure étaient dans la longueur de la base de vol (41 m), la fréquence du faisceau (60 kHz), le système d'acquisition analogique, une statistique plus importante et le flux élevé des neutrons rapides. Cette mesure a été normalisée à celle de Hlaváč et al. à 14,7 MeV [48].

5.4.2 Section efficace totale de la diffusion inélastique sur le ^{208}Pb

Lorsque on parle de la section efficace de la diffusion inélastique, on pense souvent à la section efficace de l'excitation d'un état excité spécifique du noyau cible. Dans ce travail, pour dénoter la section efficace pour l'excitation de n'importe quel état excité du noyau cible

par la diffusion inélastique du neutron, nous utiliserons le terme « section efficace *totale* de la diffusion inélastique ». Dans les bases de données ce type de réaction est souvent dénoté par (n, inl) .

Pour évaluer la section efficace totale de la diffusion inélastique à partir de la section efficace mesurée pour la transition du premier état excité, cette dernière a été multipliée par le rapport entre ces deux sections efficaces calculées par TALYS aux centres des intervalles d'énergie des neutrons. Cette estimation est comparée aux courbes de section efficace totale pour la diffusion inélastique, provenant des bases de données ENDF/B-VI, JENDL-3 et BROND-2, dans la figure 5.19. Nos données semblent être mieux décrites par les courbes qui prévoient la descente du plateau entre 5 et 8 MeV, comme ENDF et JENDL, que par la courbe de TALYS dont le plateau monte. La courbe de BROND reproduit nos données entre le seuil et 5 MeV, et au-dessus de 10 MeV. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

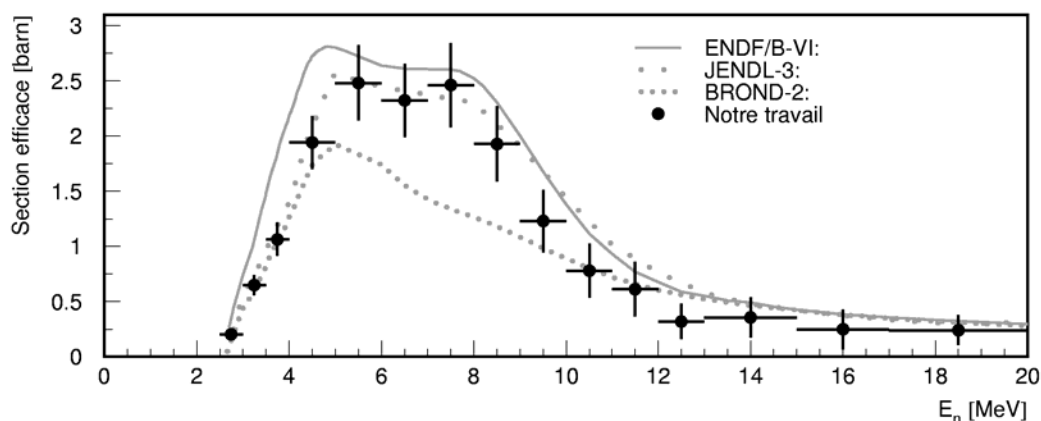


Figure 5.19 : Comparaison de la section efficace $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ estimée à partir des données expérimentales obtenues dans ce travail avec les courbes des bases de données ENDF/B-VI, JENDL-3 et BROND-2.

La figure 5.20 compare plusieurs mesures de la section efficace totale pour la diffusion inélastique à notre estimation. A priori, la section efficace de la transition du premier état excité est égale à la section efficace totale pour la diffusion inélastique, jusqu'à 4 MeV d'énergie des neutrons parce que les états entre 2,6 et 4 MeV décroissent tous vers le premier état excité. Alors, les données, jusqu'à 4 MeV, représentées dans la figure 5.17 et 5.18 pourraient être simplement répétées ici. Par souci de lisibilité de la figure, seulement le résultat de Bezotosnyj et al. à 2,5 MeV [44] a été répété.

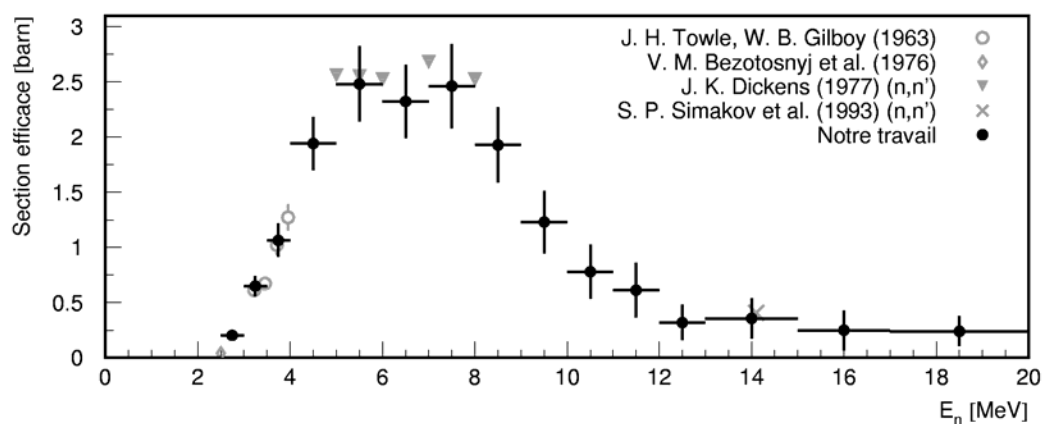


Figure 5.20 : Comparaison de la section efficace $^{208}\text{Pb}(n,inl)$ estimée à partir des données expérimentales obtenues dans ce travail avec les autres expériences.

Towle et Gilbo [51] ont mesuré les neutrons diffusés inélastiquement sur trois premiers niveaux du ^{208}Pb – 2614,6, 3197,7 et 3475,1 keV à l'aide du détecteur NE213 placé à 55° par rapport au faisceau. Ce détecteur permet de distinguer les neutrons des rayons γ en analysant la forme des impulsions. L'énergie des neutrons dans leur expérience allait de 3,2 à 4,5 MeV. Les points dans la figure représentent la somme de ces sections efficaces jusqu'à l'énergie des neutrons de 4 MeV, où la diffusion sur les états plus élevés commence à influencer significativement.

La mesure par Simakov et al. [52] a été faite à l'aide des détecteurs NaI pour les neutrons, auprès d'un générateur pulsé des neutrons de 14,1 MeV en utilisant la technique du temps de vol pour déterminer l'énergie des neutrons secondaires.

Les données de J. K. Dickens [46] sont obtenues à partir des mesures détaillées des transitions γ entre les niveaux excités du ^{208}Pb jusqu'à 6,6 MeV.

5.5 Transition du premier état excité de ^{206}Pb

Le schéma des niveaux de ^{206}Pb jusqu'à 2200 keV est représenté dans la figure 5.21. Le premier état excité se trouve à l'énergie de 803,1 keV, et son spin/parité est 2^+ [30]. La transition E2 vers l'état fondamental se passe par l'émission d'un rayon γ de 803,1 keV. Dans le spectre intégral du rayonnement γ détecté pendant les 85 heures de notre mesure, la raie à cette énergie est bien la plus proéminente, avec le total de 54400 coups.

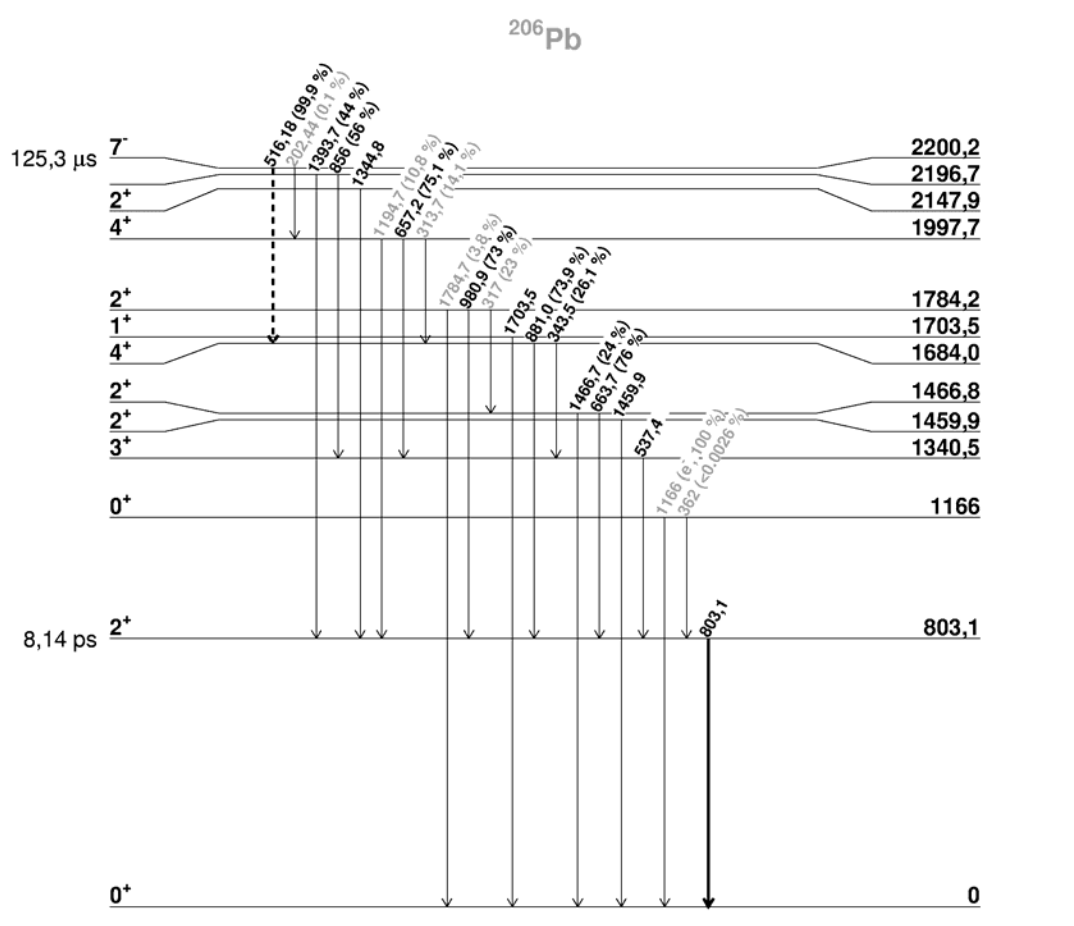


Figure 5.21 : Schéma des niveaux de ^{206}Pb [30] jusqu'à 2200 keV. Pour les niveaux avec plusieurs voies de décroissance, la probabilité de chaque voie est notée en pourcents.

Lors des réactions des neutrons de 0 à 20 MeV avec le plomb naturel, le noyau de ^{206}Pb est le noyau résiduel de trois réactions différentes, la diffusion inélastique sur le ^{206}Pb , $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ et $^{208}\text{Pb}(n,3n)$. Les maximums des sections efficaces de ces réactions sont de même ordre de grandeur. Les courbes mesurées de sections efficaces pour les transitions de ce noyau contiennent, donc, les contributions de ces trois réactions :

$$\sigma = a_{206} \sigma_{206(n,n'\gamma)} + a_{207} \sigma_{207(n,2n\gamma)} + a_{208} \sigma_{208(n,3n\gamma)} \tag{5.22}$$

Ici, $\sigma_{206(n,n'\gamma)}$, $\sigma_{207(n,2n\gamma)}$ et $\sigma_{208(n,3n\gamma)}$ est la section efficace de la production prompt de la transition concernée par les réactions $^{206}\text{Pb}(n,n'\gamma)$, $^{207}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ et $^{208}\text{Pb}(n,3n\gamma)$ respectivement, et $a_{206} = 0,241$, $a_{207} = 0,221$ et $a_{208} = 0,524$ sont les abondances naturelles des isotopes

initiaux de ces réactions. Les trois contributions ne peuvent pas être séparées l'une de l'autre à partir de seules données expérimentales sur le plomb naturel. La séparation sera réalisée à l'aide du calcul théorique.

5.5.1 Influence de l'état isomérique

Les niveaux isomériques plus élevés que 2200,2 keV décroissent tous vers l'état 7^- qui, ensuite, décroît indirectement par plusieurs voies différentes, mais à 100% vers le premier état excité. La durée de vie de l'état 7^- est de 125,3 μ s. Dans 99,9% de cas, l'état 7^- décroît vers l'état 4^+ à 1684,0 keV en émettant un rayon γ de 516,2 keV. Cette transition est marquée dans la figure 5.21 par la ligne discontinue. Puisque pratiquement immédiatement suivie de la transition du premier état excité, cette transition peut être utilisée pour déterminer le nombre des émissions tardives du rayon de 803,1 keV.

Comme il a déjà été expliqué dans la section 5.2.3, la présence de l'état isomérique affecte la mesure de la raie à 803,1 keV de deux manières. Dans le spectre du rayonnement γ détecté dans l'intervalle T de temps de vol des neutrons, l'intensité de la raie à 803,1 keV est diminuée pour le nombre de cascades qui passent par l'état isomérique. En même temps, une fraction de noyaux produits dans l'état isomérique par les neutrons plus rapides décroît pendant l'intervalle T et émet le rayon γ de 803,1 keV qui est, alors, faussement attribué aux neutrons de l'intervalle T .

Le premier de ces deux effets est le plus important. Pour en rendre compte, les calculs théoriques seront ajustés lors de la comparaison avec les résultats. L'influence du dernier effet peut être estimée à partir de l'intensité de la raie à 516,2 keV dans le spectre du rayonnement γ . Pour y arriver, il est nécessaire d'estimer le rapport des efficacités de détection de rayons γ de ces deux énergies et le rapport de leurs taux d'auto-absorption. Un raisonnement similaire à celui de la section 5.3.2 mène à l'équation,

$$A_{803}^* = \frac{k_{803} \epsilon_{803}}{k_{516} \epsilon_{516}} = 0,903 A_{516}. \quad (5.23)$$

Ici, A_{803}^* dénote la fraction de l'aire de la raie à 803,1 keV due à l'alimentation par la transition de 516,2 keV. A_{516} est l'aire de la raie à 516,2 keV.

Au-dessous du seuil de la diffusion inélastique sur le ^{206}Pb , le niveau à 803,1 keV est exclusivement alimenté par la désexcitation de l'état isomérique induit par les neutrons plus rapides. Avec la statistique obtenue en 85 heures de cette expérience, cette raie est bien visible dans les intervalles de 0,3 à 0,5 MeV et de 0,5 à 0,8 MeV, ainsi que la raie à 516,2 keV qui signale la désexcitation de l'isomérique.

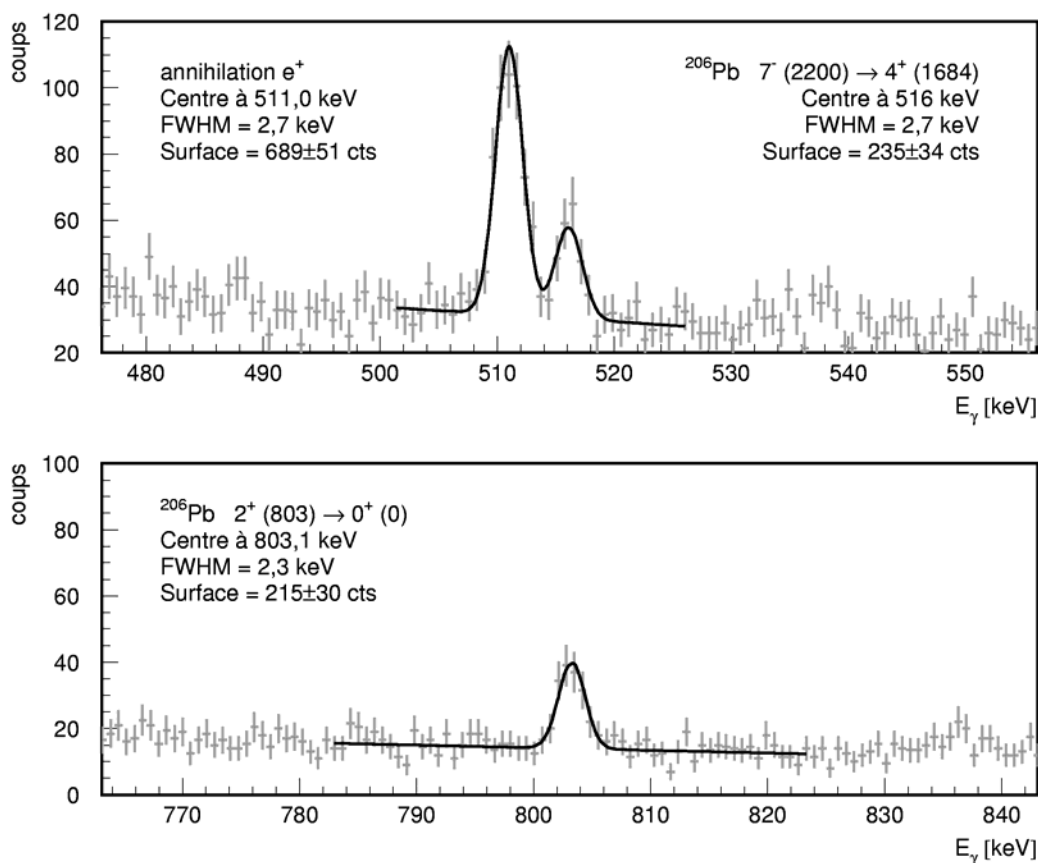


Figure 5.22 : Vue partielle du spectre des rayons γ induits par les neutrons d'énergies entre 0,3 et 0,5 MeV. Dans cet intervalle la transition de 803,1 keV (bas) est alimentée exclusivement par la cascade qui suit la transition de 516,2 keV (haut), de l'état isomérique 7^- à 2200 keV. Le rapport des intensités des deux raies est 1. L'efficacité de détection, y compris l'auto absorption, à 803,1 keV représente 90,3% de l'efficacité à 516,2 keV.

La figure 5.22 compare la raie 803,1 keV à la raie 516,2 keV dans le spectre formé par sélection de temps de vol correspondant aux neutrons de 0,3 à 0,5 MeV. La raie à 516,2 keV est partiellement chevauchée par la raie à 511 keV qui est plus intense, mais la séparation est suffisante pour estimer le nombre de coups dans la raie à 516,2 keV. La courbe double gaussienne a été ajustée aux données pour correspondre aux deux raies. Le tableau 5.3 compare l'intensité des raies à 516,2 keV et 803,1 keV dans les intervalles de temps correspondants aux tranches de 0,3 à 0,5 MeV et de 0,5 à 0,8 MeV d'énergie de neutrons. L'intensité mesurée de la raie à 803,1 keV s'accorde bien avec l'intensité attendue d'après l'intensité de la raie à 516,2 keV, selon l'équation (5.23).

Tableau 5.3 : Comparaison des apports dans les raies à 516,2 keV et 803,1 keV dans l'intervalle de temps correspondant aux énergies de neutrons au-dessous du seuil de la production de la raie à 803,1 keV.

Tranche d'énergies	Nombre de coups à 516,2 keV	Nombre de coups attendus à 803,1 keV	Nombre de coups à 803,1 keV
0,3 – 0,5 MeV	236 ± 37	213 ± 33	221 ± 31
0,5 – 0,8 MeV	145 ± 33	131 ± 30	139 ± 22

Au-dessus de 0,8 MeV d'énergie de neutrons, la statistique n'est plus suffisante pour estimer le nombre de rayons γ de 516,2 keV détectés. La raison en est surtout la largeur décroissante des intervalles de temps de vol et le faible flux de neutrons plus rapides. Pourtant, il est possible d'estimer ce nombre à l'aide de l'équation (5.4). Puisque le flux absolu n'est pas connu, il est nécessaire de normaliser les valeurs obtenues au nombre de coups dans la raie à 516,2 keV dans les intervalles de 0,3 à 0,5 MeV et de 0,5 à 0,8 MeV.

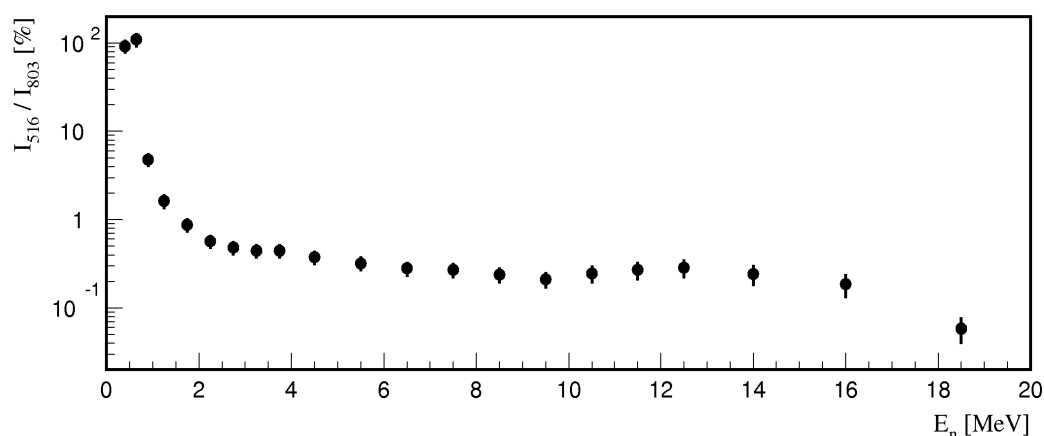


Figure 5.23 : Rapport entre la contribution isomérique et l'apport total dans la raie à 803,1 keV dans tous les intervalles de l'énergie des neutrons.

La figure 5.23 représente le diagramme du rapport entre la contribution des neutrons d'énergie supérieure à celle considérée et l'intensité totale de la raie à 803,1 keV, dans tous les intervalles de l'énergie des neutrons. Evidemment, au-dessous de 0,8 MeV, le rapport est de 100%. Ensuite la courbe décroît pour deux raisons. D'abord, l'état isomérique est alimenté surtout par les neutrons énergétiques et décroît dans les intervalles correspondant aux énergies basses. La deuxième raison en est que les intervalles en temps de vol sont plus larges pour les énergies basses, ce qui augmente la probabilité de la décroissance dans ces intervalles. Au-delà de 1,5 MeV la contribution des neutrons plus rapides représente moins de 1% de l'apport total. Après la soustraction de la contribution des neutrons plus rapides, l'intensité de la raie à 803,1 keV correspond à la production *prompte* de la transition de 803,1 keV par les neutrons de l'énergie considérée. La section efficace pour la production *prompte* est égale à la différence entre la section efficace pour la transition de 803,1 keV et la section efficace pour la transition isomérique de 516,2 keV.

5.5.2 Comparaison aux calculs de TALYS

Pour ajuster les calculs par TALYS à la situation expérimentale avant de les comparer aux résultats, la section efficace calculée pour la transition de 516,2 keV a été soustraite à celle calculée pour la transition de 803,1 keV. L'équation (5.22) a, aussi, été appliquée pour rendre compte de la cible naturelle.

Les résultats pour la transition du premier état excité de ^{206}Pb sont représentés dans la figure 5.24. Les points représentent les valeurs mesurées et normalisées par le facteur α_{803} dérivé du facteur α_{2614} selon l'équation (5.15). Les erreurs des valeurs expérimentales ont été estimées à partir de l'incertitude du nombre d'événements dans la raie excitée, l'incertitude du flux relatif des neutrons dans l'intervalle correspondant et l'incertitude du facteur de normalisation α_{803} . Les valeurs numériques des résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

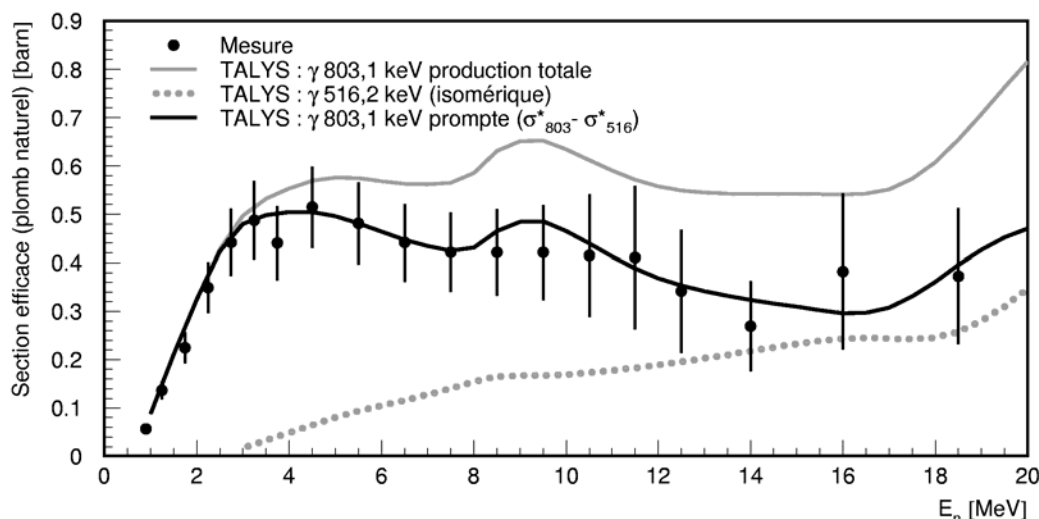


Figure 5.24 : La section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel par les neutrons.

La ligne grise représente la section efficace pour la transition du premier état excité et la ligne en pointillé la section efficace pour la transition principale de l'état isomérique. La différence entre ces deux courbes, égale à la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité, est représentée par la ligne solide.

La description de la forme de la courbe d'excitation expérimentale par le calcul de TALYS est assez bonne. Dans les valeurs mesurées la bosse correspondant au maximum de la contribution de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ paraît être moins prononcée mais les incertitudes des valeurs mesurées sont au moins aussi grandes que la différence entre les valeurs mesurées et la courbe de TALYS. L'accord des valeurs normalisées selon les présuppositions simples du paragraphe 5.3.2 est tout à fait satisfaisant.

5.5.3 Comparaison aux autres expériences

La figure 5.25 compare nos résultats avec d'autres mesures de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{206}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le plomb naturel. La partie de 0,5 à 3,5 MeV d'énergie des neutrons est élargie en bas.

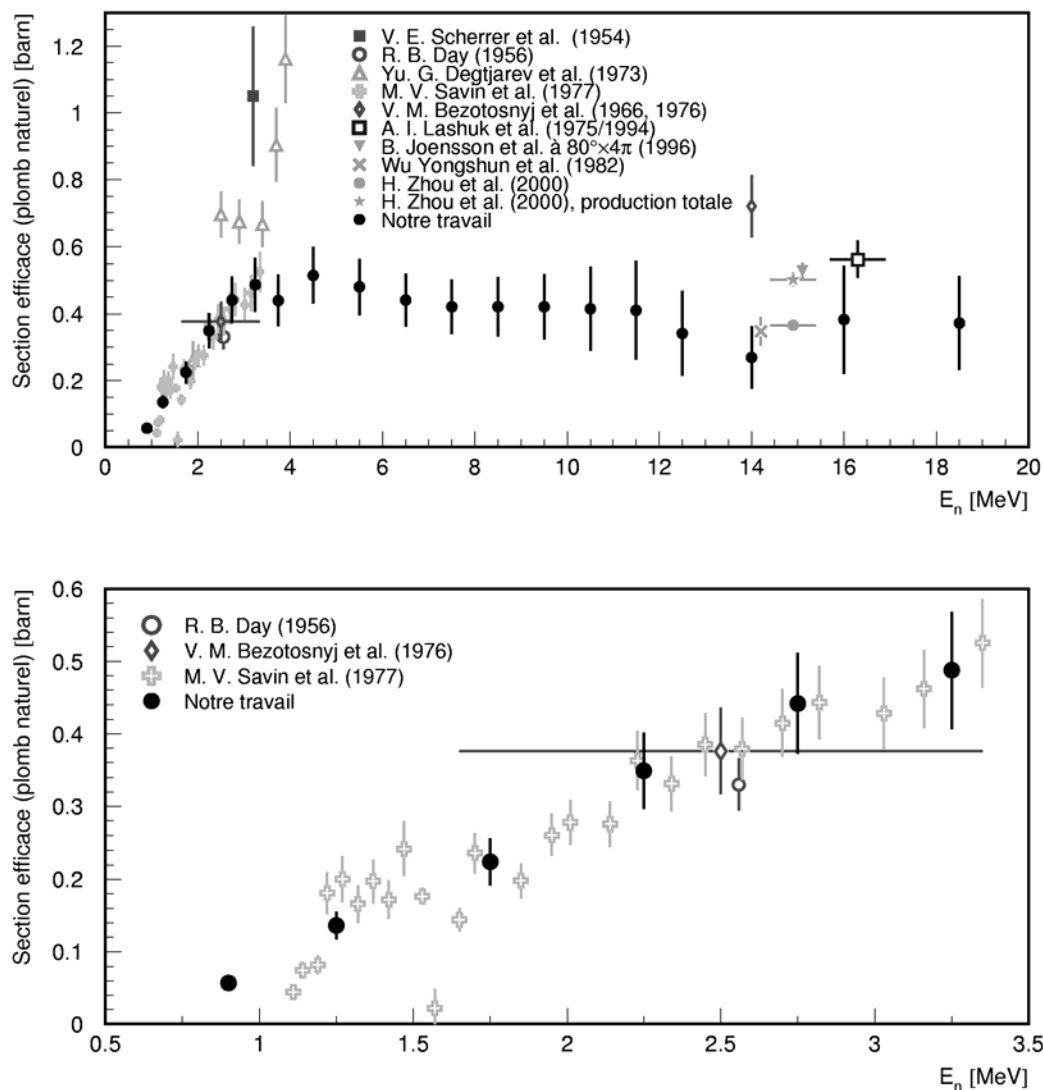


Figure 5.25 : Comparaison de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité du ^{206}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le plomb naturel. La partie de 0,5 à 3,5 MeV est élargie en bas.

La mesure par Scherrer et al. [53] à 3,2 MeV a été faite à l'aide d'un détecteur NaI pour les rayons γ . Dans les bases de données, les valeurs pour les sections efficaces obtenues par la spectroscopie γ à l'aide des scintillateurs ont souvent tendance à être plus élevées que celles obtenues par les détecteurs à haute résolution en énergie. La raison en est que, avec les largeurs habituelles de raies avec les scintillateurs, il y a souvent plusieurs transitions qui contribuent à une raie et il n'est pas toujours possible d'éliminer les pollutions.

L'expérience de Day [54] a été faite à l'aide d'un détecteur NaI entouré de la cible sous forme d'un anneau. L'angle moyen de l'émission des rayons γ détectés dans cette géométrie était de 95° . Les valeurs présentées dans l'article ont été obtenues avec la supposition de la distribution isotropique. Plus tard, l'efficacité de la détection γ dans cette géométrie a été établie avec plus de précision et il a été constaté que les valeurs présentées doivent être réduites de 4% [55]. La valeur dans notre figure tient compte de cette correction.

L'expérience de Degtjarev et al. [41] a déjà été décrite dans la discussion de la Figure 5.17 (voir section 5.4.1). Malgré la bonne résolution en énergie (7 keV pour la raie du ^{60}Co à 1,3 MeV), les valeurs de la section efficace mesurée ont tendance à être significativement plus élevées que les autres résultats et les évaluations dans le même intervalle d'énergies.

Les données de Savin et al. [45] (voir section 5.4.1 et figure 5.17) comprennent la section efficace pour trois transitions détectées ensemble sous une raie du spectre γ du détecteur NaI. À part la transition du premier état excité du ^{206}Pb , il s'agit des transitions de 763 et 860 keV du ^{208}Pb . Le seuil de la production de ces deux transitions est de 4,0 et 3,5 MeV, respectivement. Alors, leurs données n'ont été représentées que jusqu'à 3,35 MeV, où seule la contribution de la transition de 803 keV est présente.

La valeur à 2,5 MeV par Bezotosnyj et al. provient de leur mesure de 1976 [44] (voir section 5.4.1 et figure 5.17).

Les mesures par Bezotosnyj et al. à 14 MeV [56], Lashuk et al. [42] à 16,3 MeV et Joensson et al. [57] à 15,1 MeV concernent la production totale de la transition de 803 keV, et non pas seulement la production prompte. Dans cette région d'énergie des neutrons, la fraction des transitions retardées n'est pas négligeable. Donc, il ne serait pas justifié de les comparer directement à nos résultats. Ces valeurs sont, pourtant, présentées dans la figure pour permettre d'apprécier l'effet du retard causé par l'état isomérique.

La mesure par Bezotosnyj et al. a été faite en 1966 à l'aide d'un scintillateur NaI, ce qui explique probablement sa valeur élevée par rapport aux deux autres mesures de la production totale.

La mesure par Joensson et al. a été faite à 80° par rapport au faisceau. La valeur publiée est celle de la section efficace différentielle angulaire. Vu que, au départ, cette mesure ne se compare pas directement à la notre, le point dans notre figure représente cette valeur différentielle multipliée par 4π sans tenir compte de l'anisotropie de l'émission γ .

Lashuk et al. ont obtenu leur résultat à l'aide d'un détecteur Ge(Li) (voir section 5.4.1 et figure 5.17).

La mesure de Yongshun et al. [47] à 14,2 MeV est aussi décrite dans la section 5.4.1. L'entrée EXFOR ne précise pas si la section efficace citée concerne la production prompte ou la production totale du rayon mais, comme la méthode employée incluait la mesure du temps de vol des neutrons, il s'agit probablement de la section efficace prompte.

Zhou et al. [49] ont séparé la contribution prompte de la contribution retardée en mesurant le rayonnement γ dans deux fenêtres en temps : l'une de 30 ns et l'autre de 160 ns après

l'impulsion du faisceau. En plus de la contribution prompte, la somme des deux contributions mesurées par Zhou et al. est aussi représentée dans la figure pour comparaison.

5.5.4 Contribution de la diffusion inélastique sur ^{206}Pb

Nous nous intéressons à la possibilité de mesurer les sections efficaces isotopiques avec des cibles enrichies, surtout la réaction $(n,2n)$ avec la cible de ^{207}Pb . La séparation des contributions des différentes réactions à la production de la transition de 803,1 keV peut permettre d'estimer la statistique et la précision de telles mesures.

Pour estimer les contributions des trois réactions qui induisent la transition de 803,1 keV, il est nécessaire d'utiliser le calcul théorique. Le rapport de chaque contribution avec la section efficace totale a été établi à l'aide des calculs par TALYS. Les contributions ont été estimées en multipliant la section efficace totale par ce rapport. Les incertitudes des valeurs expérimentales ont été, aussi, multipliées par le même rapport. La figure 5.26 représente le résultat pour la diffusion inélastique sur ^{206}Pb . Les valeurs obtenues, ainsi que leurs incertitudes ont été divisées par les abondances naturelles des isotopes initiaux afin de revenir aux sections efficaces isotopiques. Les valeurs numériques sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

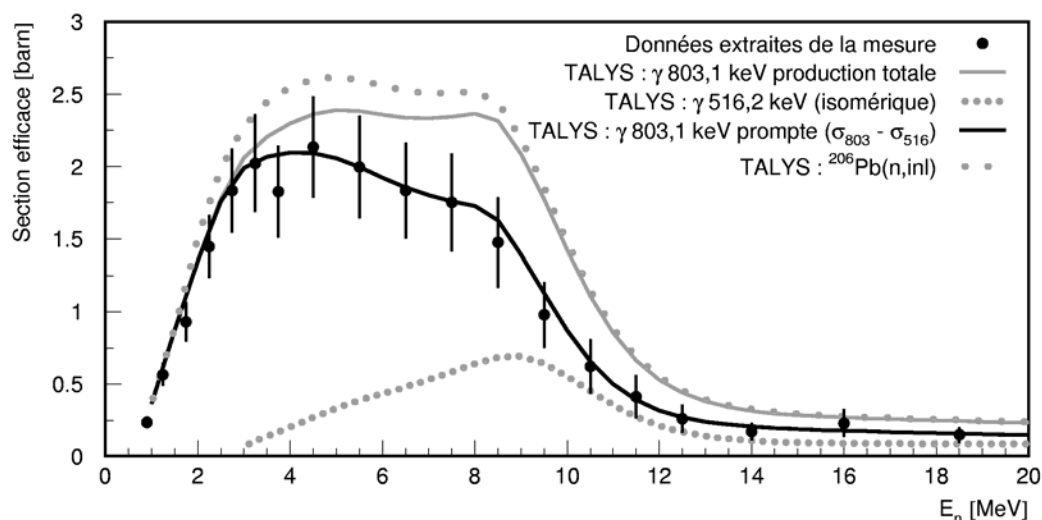


Figure 5.26 : Contribution de la diffusion inélastique à la transition de 803,1 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.

La figure 5.27 représente la comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{206}Pb par la diffusion inélastique déduite de nos mesures avec les résultats d'autres expériences dont plusieurs effectuées avec une cible de ^{206}Pb enrichie.

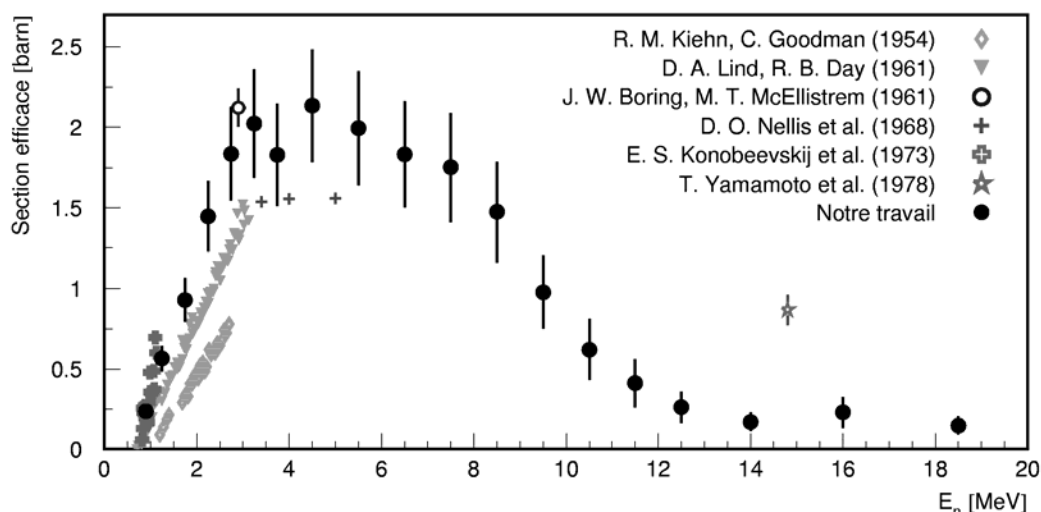


Figure 5.27 : Comparaison de la section efficace isotopique pour la production de la transition 803,1 keV par la diffusion inélastique avec les résultats d'autres expériences.

L'expérience de Kiehn et Goodman [58] couvre l'intervalle de 1,2 à 2,7 MeV avec un détecteur NaI pour les rayons γ . Le faisceau de neutrons était produit par la réaction du faisceau de protons avec une cible de ${}^7\text{Li}$.

Lind et Day [59] ont fait leur mesure du seuil à 3,1 MeV. La technique utilisée pour la détection des rayons γ était la même comme dans le travail de Day [54]. La cible était de plomb radiogénique avec 89% de ${}^{206}\text{Pb}$.

Dans l'expérience de Boring et McEllistrem [60], l'énergie des neutrons créés par la réaction $\text{D}(d,n){}^3\text{He}$ était de 2,9 MeV. La cible était de plomb radiogénique et les rayons γ ont été détectés à l'aide des détecteurs NaI sous 5 angles différents entre 0 et 90°. La série de polynômes de Legendre a été ajustée aux résultats et intégrée pour obtenir la section efficace totale. La position de la raie considérée est 814 keV, ce qui peut impliquer l'influence du fond non éliminé.

Nellis et al. [61] ont mesuré l'émission des rayons γ sous un angle de 55°, à l'aide d'un détecteur NaI, entre 3,4 et 5,0 MeV. Leurs résultats comprennent la section efficace différentielle. Les points dans la figure représentent ceux-ci multipliés par 4π pour obtenir la section efficace totale.

La mesure de Konobeevskij et al. [62] couvre l'intervalle de 0,81 à 1,12 MeV. Le faisceau quasimonoénergétique provenait de la réaction des protons sur le tritium. Les rayons γ étaient détectés à l'aide d'un détecteur Ge(Li). Pourtant, la pente de leur courbe semble être plus importante que celle de nos résultats.

L'expérience de Yamamoto et al. [63] a été faite auprès d'un faisceau de 14,8 MeV, produit par la réaction $\text{T}(d,n){}^4\text{He}$. Les rayons γ étaient détectés à l'aide d'un détecteur Ge(Li). La cible était de plomb naturel. Le fichier EXFOR cite la section efficace pour la production totale de la transition du premier état excité par la diffusion sur le ${}^{206}\text{Pb}$, mais il n'est pas clair si la contribution de ${}^{207}\text{Pb}(n,2n)$ a été soustraite, ni comment.

5.5.5 Contribution de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$

La section efficace pour la production de la transition de 803,1 keV par la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ déduite de nos données est comparée aux calculs par TALYS dans la figure 5.28. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

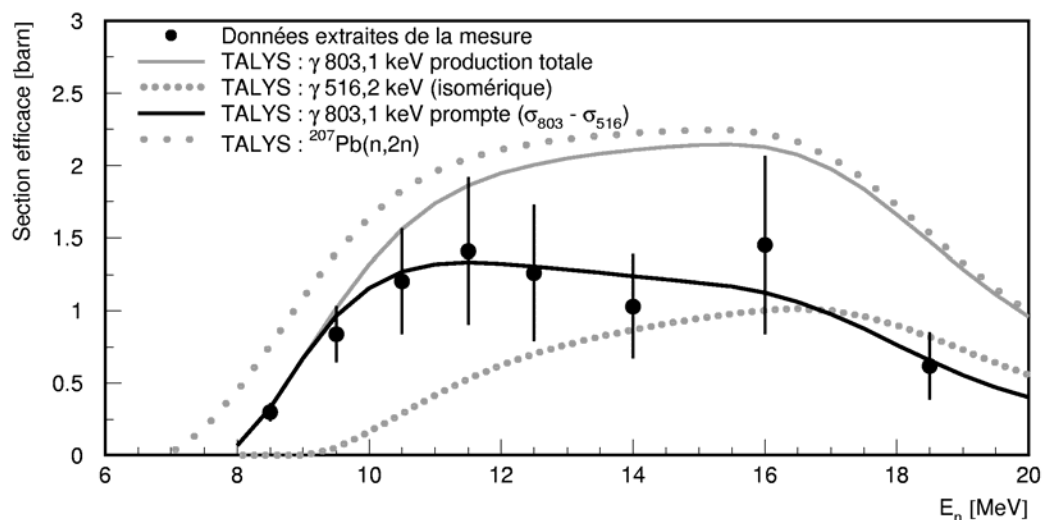


Figure 5.28 : Contribution de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ à la transition de 803,1 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.

La figure 5.29 compare nos résultats avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition. Il est important de noter que nos résultats proviennent d'un nombre total de **1370** rayons γ induits par la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ détectés pendant les 85 heures d'acquisition. Ce nombre est réparti entre les intervalles d'énergie de neutrons de sorte que le nombre de rayons détectés dans chaque intervalle se trouve entre 50, comme dans l'intervalle de 17 à 20 MeV, et 320, comme dans l'intervalle de 9 à 10 MeV. Cette faible statistique permet, néanmoins, de tracer la courbe de la section efficace concernée.

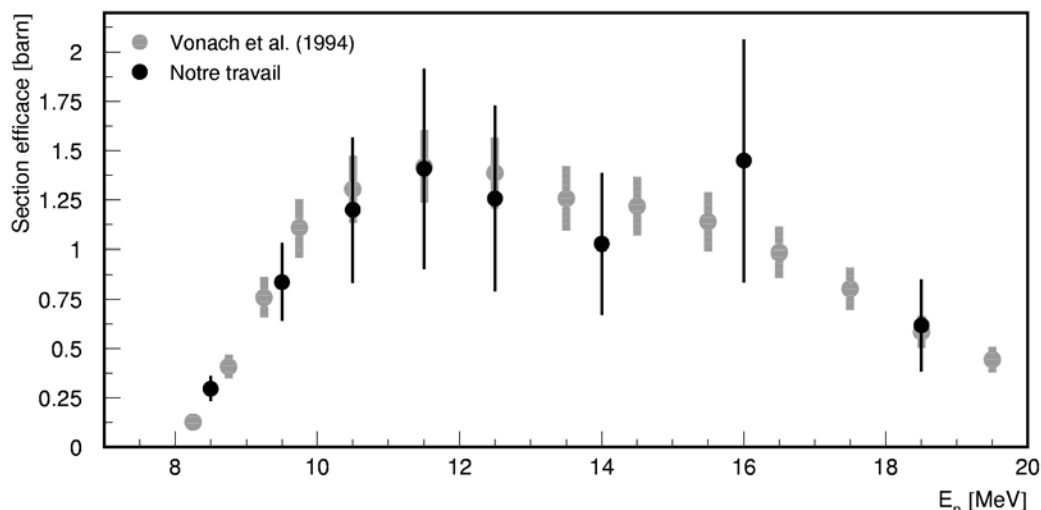


Figure 5.29 : Comparaison de la section efficace pour la production prompt de la transition du premier état excité par la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition.

La section efficace totale de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ peut être estimée à partir de la contribution mesurée de cette réaction à la transition de 803,1 keV, à l'aide des calculs théoriques. Dans ce but, la section efficace mesurée $^{207}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ a été multipliée par le rapport entre ces deux sections efficaces calculées par TALYS aux centres des intervalles d'énergie des neutrons. Cette estimation est comparée aux courbes $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ des bases de données ENDF/B-VI, JENDL-3 et BROND-2 dans la figure 5.30. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4. Toutes les bases de données, ainsi que le calcul par TALYS, s'accordent avec notre estimation dans les limites de l'incertitude de nos données.

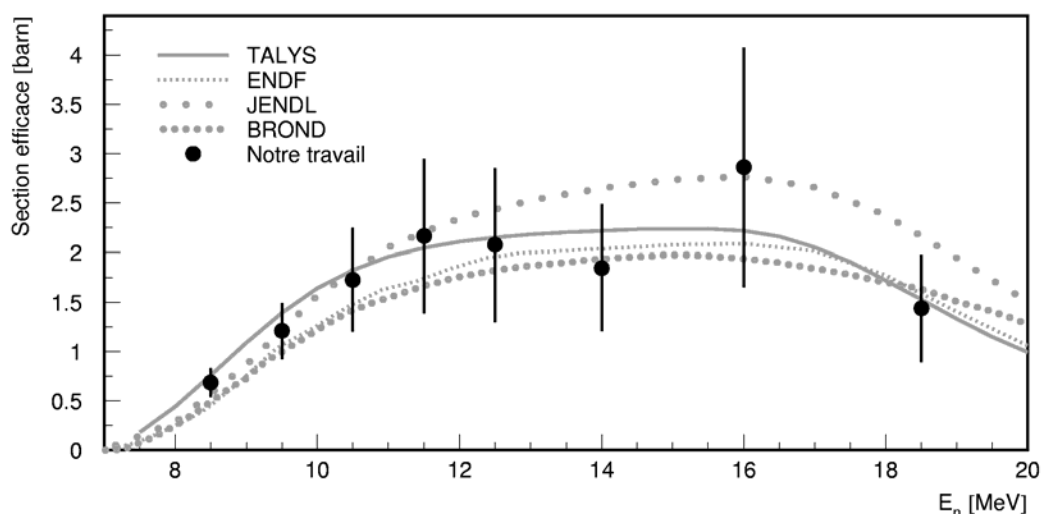


Figure 5.30 : Section efficace pour la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ déduite de nos mesures en comparaison avec le calcul par TALYS et les évaluations ENDF/B-IV [10], JENDL-3 [11] et BROND-2 [12].

La figure 5.31 compare nos résultats pour la section efficace totale de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ avec la mesure de J. Frehaut et al. [64]. Les mesures de Frehaut et al. ont été faites auprès d'un faisceau monoénergétique généré par la réaction deuteron – deutérium à l'aide d'un accélérateur Van de Graaff de 14 MeV. Les neutrons ont été détectés à l'aide d'un scintillateur 4π basé sur le gadolinium liquide.

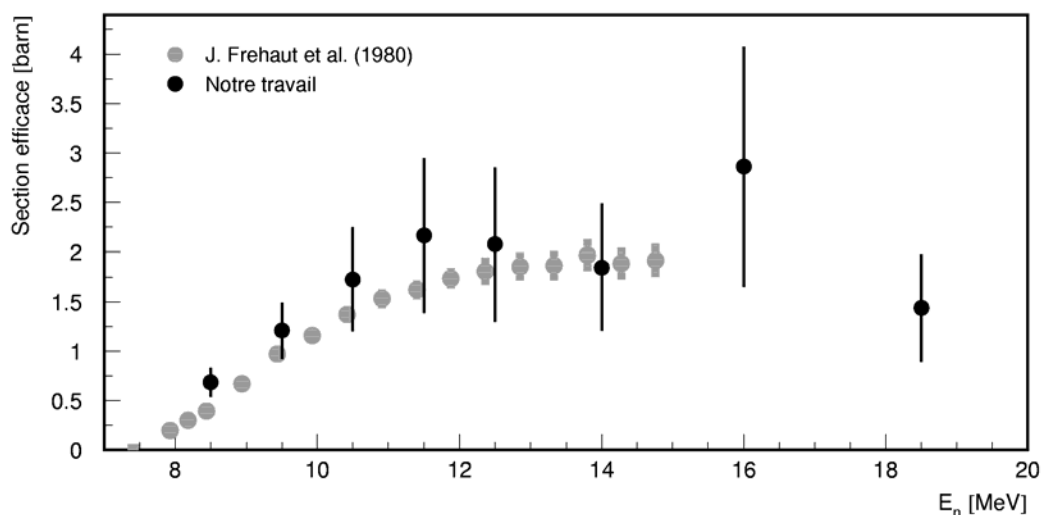


Figure 5.31 : Comparaison de nos résultats pour la section efficace $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ avec la mesure de J. Frehaut et al. [64]

5.5.6 Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n)$

La contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n)$ déduite de nos données est comparée aux calculs par TALYS dans la figure 5.32. Les valeurs numériques sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

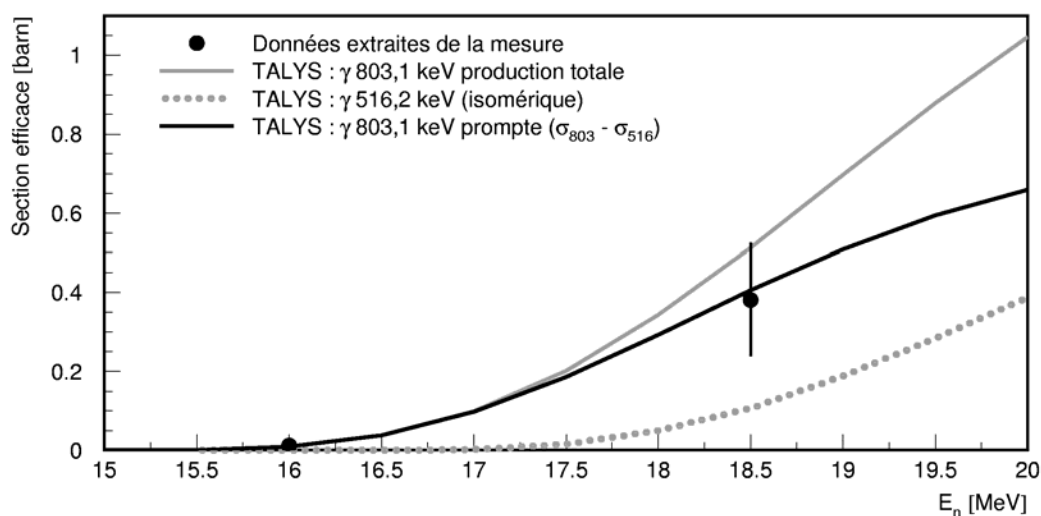


Figure 5.32 : Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n)$ à la transition de 803,1 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.

La figure 5.33 compare la section efficace pour la production prompt de la transition du premier état excité par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition. Le nombre total estimé de rayons γ induits par cette réaction et détectés pendant les 85 heures de notre mesure est de 90, dont 23 dans l'intervalle de 15 à 17 MeV et 67 dans l'intervalle de 17 à 20 MeV.

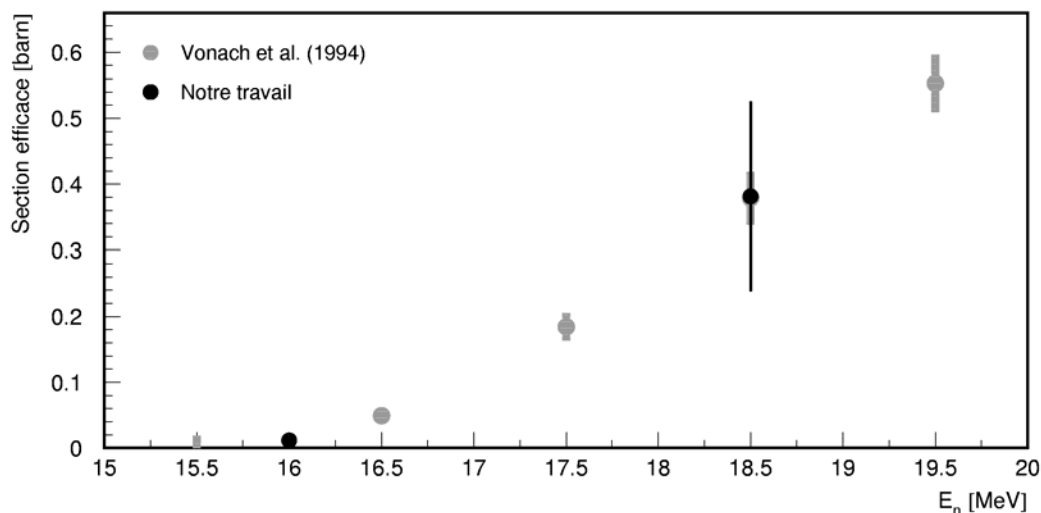


Figure 5.33 : Comparaison de la section efficace pour la production prompt de la transition du premier état excité par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,3n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition.

Ces résultats confirment la faisabilité des mesures $(n,xn\gamma)$, notamment $(n,2n\gamma)$, jusqu'à 20 MeV à GELINA. Ceci est la première mesure d'une réaction $(n,2n)$ auprès de ce faisceau. Des mesures peuvent être envisagées avec des cibles isotopiquement enrichies afin d'obtenir directement les sections efficaces des réactions $(n,2n\gamma)$. En même temps, une cible isotopiquement enrichie, ainsi qu'une acquisition plus longue permettrait d'obtenir une statistique plus importante et une meilleure précision sur les sections efficaces.

5.6 Transitions d'autres états excités de ^{206}Pb

La manière la plus directe de déterminer la section efficace totale d'une réaction avec un certain isotope résiduel serait de calculer la somme des sections efficaces pour les transitions directes vers l'état fondamental. Dans le cas des réactions dont l'isotope résiduel est ^{206}Pb , plusieurs faits nous empêchent de procéder de cette manière. La transition de l'état 0^+ à 1166 keV vers l'état fondamental passe par l'émission d'un électron et sa section efficace ne peut pas être déterminée par la spectroscopie γ . La transition de l'état 2^+ à 1784,2 keV n'est pas visible dans nos spectres à cause de sa faible intensité. Enfin, la mesure de la transition du premier état excité vers l'état fondamental est affectée par la présence de l'état isomérique 7^- à 2200,2 keV de la manière décrite dans la section 5.2.3.

Une évaluation simple de la section efficace totale de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$ a été effectuée à l'aide des calculs théoriques à partir de la section efficace partielle pour la transition du premier état excité produite par cette réaction.

La mesure des transitions d'autres états excités permet de tester les modèles, et surtout leur phase de décroissance. Leur analyse peut contribuer à la précision de la détermination de la section efficace totale de la réaction par laquelle ce noyau a été produit. Par exemple, dans le travail de Dickens en 1977, la section efficace totale de la diffusion inélastique a été déterminée à partir de la mesure détaillée du rayonnement γ émis par ^{208}Pb sous faisceau monoénergétique de neutrons de 5 à 8 MeV [46]. Dans le cas du noyau résiduel ^{206}Pb dans notre travail, d'autres transitions que la transition du premier état excité ont aussi pu être mesurées. L'inclusion de ces résultats dans l'évaluation de la section efficace totale des réactions (n,xn) dépasse la portée de ce travail. Pourtant, une brève comparaison des courbes pour plusieurs autres transitions avec les calculs de TALYS et les résultats d'autres expériences sera présentée dans ce qui suit afin d'illustrer les perspectives d'une mesure éventuelle avec une statistique plus importante.

5.6.1 Transitions de l'état 2^+ à 1466,8 keV

L'état 2^+ à 1466,8 keV peut décroître soit par la transition de 663,7 keV vers le premier état excité soit par la transition de 1466,7 keV vers l'état fondamental (Figure 5.21). Selon la table d'isotopes de Firestone [30], la décroissance passe par la transition de 1466,7 keV dans 22% de cas, et par la transition de 663,7 keV dans 78% de cas. Le rapport des sections efficaces de la production de ces deux transitions calculées par TALYS indique le même rapport de branchement utilisé.

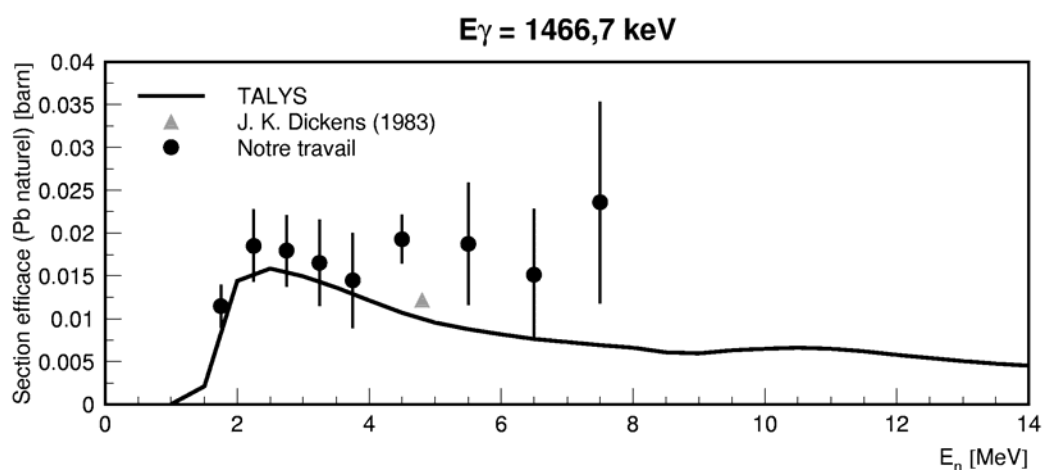


Figure 5.34 : La section efficace de la production de la transition de l'état 2^+ à 1466,8 keV vers l'état fondamental de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel par les neutrons.

La transition de 1466,7 keV est l'une des transitions qui passent à côté du premier état excité. La raie à 1466,7 keV est partiellement chevauchée par une raie plus intense à 1460 keV, qui provient de la transition de l'état 2^+ de ^{206}Pb à 1459,9 keV et de l'activité de ^{40}K ambiante. Nos résultats pour la section efficace de la production de la transition de 1466,7 keV sont

comparés au calcul par TALYS et au résultat de la mesure de Dickens de 1983 [65] dans la figure 5.34. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

L'expérience de Dickens consistait en la mesure détaillée des intensités relatives des transitions γ émises de la cible de plomb radiogénique avec 88% de ^{206}Pb sous faisceau de neutrons de 4.8 MeV. Puisque relatifs, ses résultats ont été normalisés à la valeur calculée par TALYS pour la transition de 803,1 keV à 4,8 MeV afin de pouvoir être comparés à nos résultats pour les autres transitions.

La seconde transition possible de l'état 2^+ à 1466,8 keV est celle de 663,7 keV vers le premier état excité (Figure 5.21). Indépendamment de la manière dont cet état est alimenté, le rapport du nombre des transitions de 1466,7 keV et de 663,7 keV est 29/100 [30]. La comparaison du nombre de coups dans ces deux raies permet de tester la fiabilité de la mesure. La raie à 663,7 keV est, elle aussi, chevauchée par celle à 661,7 keV provenant de l'activité de ^{137}Cs ambiante, mais de faible intensité. Nos résultats pour la transition de 663,7 keV sont comparés au calcul par TALYS et aux résultats d'autres mesures dans la figure 5.35. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

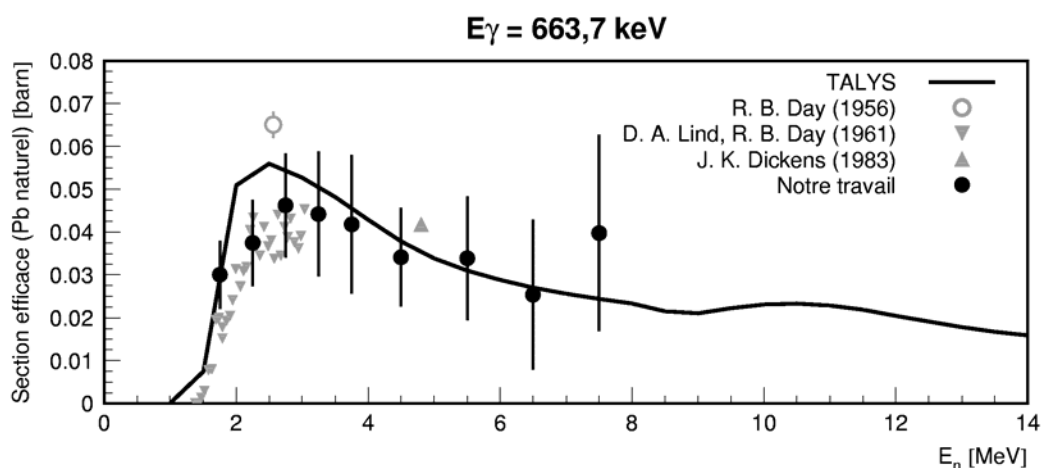


Figure 5.35 : La section efficace de la production de la transition de l'état 2^+ à 1466,8 keV vers le premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel.

L'expérience par Day [54] a été résumée dans la discussion de la figure 5.25 et l'expérience par Lind et Day [59] dans la discussion de la figure 5.27. L'expérience par Dickens [65] vient d'être résumée dans la discussion de la figure 5.34.

5.6.2 Transition de l'état 1^+ à 1703,5 keV

L'état 1^+ à 1703,5 keV décroît directement vers l'état fondamental [30]. Nos résultats pour cette transition sont comparés au calcul par TALYS et aux résultats d'autres mesures sur la figure 5.36. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

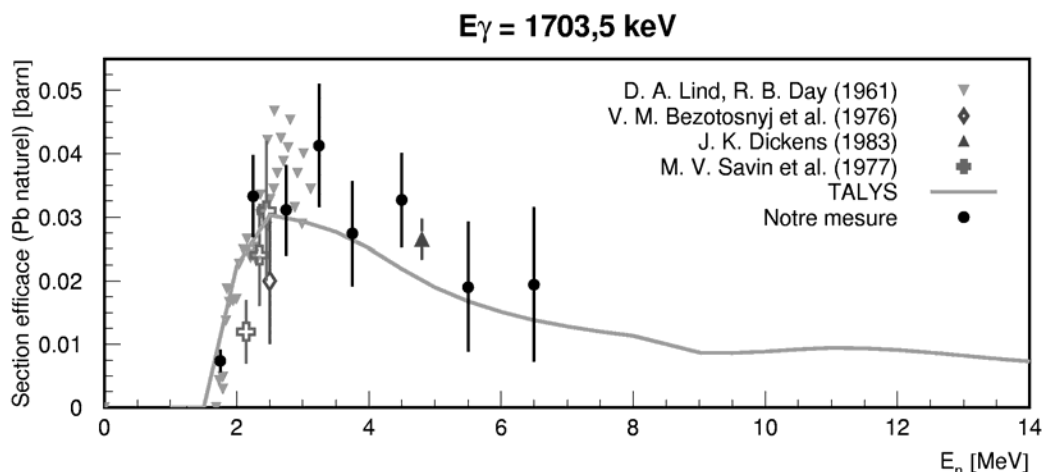


Figure 5.36 : La section efficace de la production de la transition de l'état 1^+ à 1703,5 keV vers l'état fondamental de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel.

Toutes les expériences représentées dans la figure ont déjà été résumées dans la discussion des figures précédentes.

Les données de Savin et al. ne séparent pas la contribution de la transition de 1770,2 keV, de l'état $7/2^-$ à 2339,9 keV de vers le premier état excité de ^{207}Pb . Pour cette raison, les données de Savin n'ont été représentées que jusqu'à 2,5 MeV d'énergie des neutrons. La transition de l'état 2^+ à 1784,2 keV vers l'état fondamental de ^{206}Pb influe aussi, mais cette transition ne représente que 3,8% de transitions de cet état [30]. Dans notre spectre intégral, cette transition ne se voit pas (Figure 5.5). Le seuil de la production de la transition de 1725,7 keV qui se voit dans notre spectre intégral est de 2,6 MeV. Il s'agit de la transition de l'état $5/2^+$ à 2623,5 keV vers l'état $3/2^-$ à 897,8 keV de ^{207}Pb .

5.6.3 Transitions de l'état 4^+ à 1684,0 keV et 3^+ à 1340,5 keV

L'état 4^+ à 1684,0 keV peut décroître soit vers le premier état excité de ^{206}Pb par une transition E2 de 881,0 keV, soit vers l'état 3^+ à 1340,5 keV par une transition M1 de 343,5 keV. L'état 3^+ à 1340,5 keV décroît uniquement vers le premier état excité par la transition M1 de 537,4 keV [30]. Parmi les transitions de ^{206}Pb , la transition de 537,4 keV est la deuxième la plus intense après celle de 803,1 keV. La raie à 343,5 keV est trop faible et superposée sur un fond trop intense pour être analysée dans ce travail.

La transition principale (99,9%) de l'état isomérique 7^- à 2200,2 keV est celle vers l'état 4^+ à 1684,0 keV. Donc, la mesure prompt des transitions de l'état 4^+ à 1684,0 keV et 3^+ à 1340,5 keV est affectée par cette transition. Pour ajuster les calculs de TALYS à la situation expérimentale, la section efficace de la transition de l'état isomérique, multipliée par la probabilité de la transition de 881,0 keV,⁵ a été soustraite de la section efficace totale de la

⁵ Par rapport à l'alimentation totale de l'état 4^+ à 1684,0 keV.

transition de 881,0 keV. Pour la transition de 537,4 keV, la section efficace de la transition de l'état isomérique, multipliée par la probabilité de la transition de 343,5 keV, a été soustraite de la section efficace totale de la transition de 537,4 keV. Les calculs des sections efficaces des différentes réactions qui contribuent à la production de ^{206}Pb ont été combinés selon l'équation (5.22).

Nos résultats pour la transition de 881,0 keV et pour celle de 537,4 keV sont comparés aux calculs par TALYS et aux résultats d'autres mesures dans la figure 5.37. Les valeurs numériques de nos résultats se trouvent dans l'appendice 4.

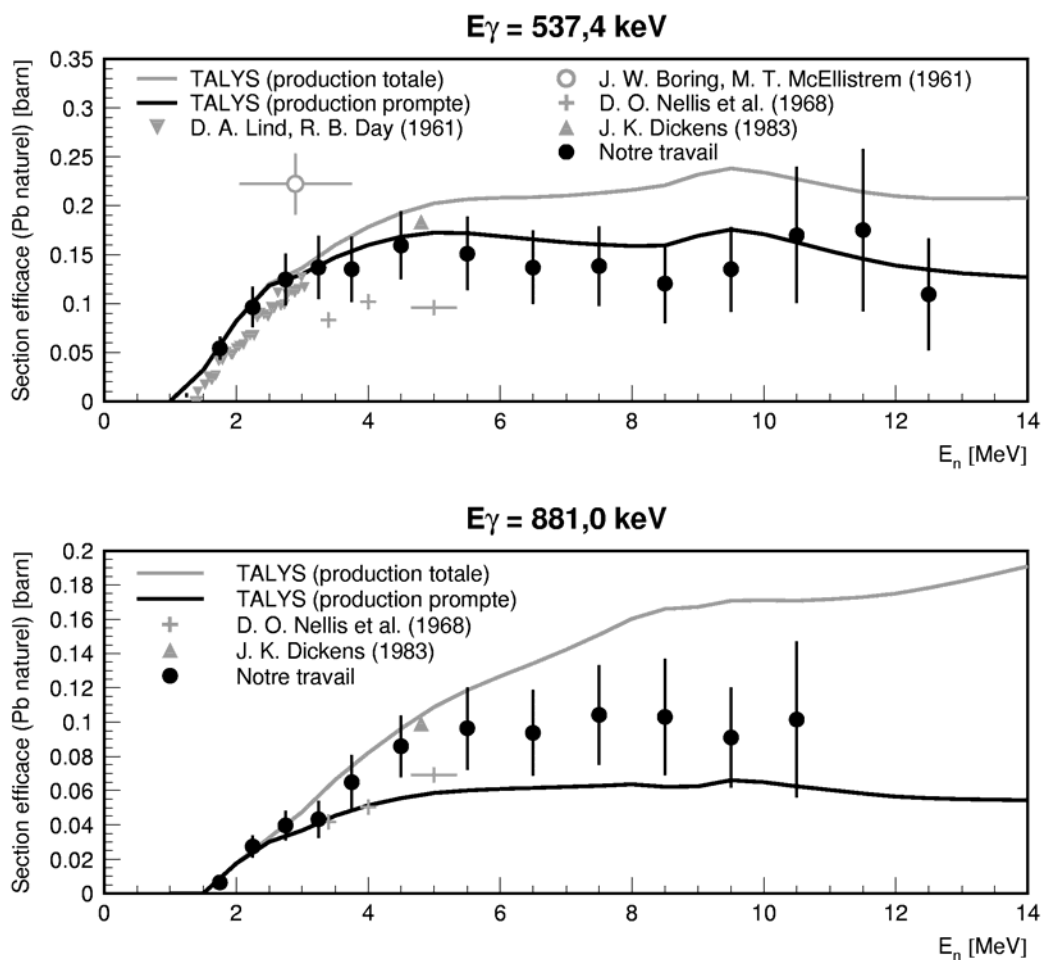


Figure 5.37 : La section efficace de la production de la transition de l'état 4^+ à 1684,0 keV et de l'état 3^+ à 1340,5 keV vers le premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel.

Les expériences représentées dans la figure ont déjà été résumées dans la discussion des figures précédentes.

La section efficace pour la transition de 881,0 keV prompt calculée par TALYS est systématiquement inférieure à nos données. Ce désaccord ne s'explique pas par l'erreur systématique liée aux distributions angulaires (voir section 3.3 *Le Détecteur*). Les courbes calculées d'autres transitions E2 comme, par exemple, celle de 803,1 keV, s'accordent beaucoup mieux à nos données.

Les données de Nellis et al. [61] qui semblent confirmer la prédiction de TALYS, sont systématiquement inférieures aux résultats d'autres expériences pour les autres transitions.

La section efficace de la transition de 343,5 keV calculée par TALYS indique que 37,3% de décroissances de l'état 4^+ à 1684,0 keV passent par cette transition, tandis que le rapport de branchement qui figure dans la table d'isotopes de Firestone [30] indique seulement 26,1%. Le choix de rapport de branchement affecte directement la prédiction de la transition de 881,0 keV. La transition de 537,4 keV est, aussi, affectée à travers la transition de 343,5 keV qui alimente l'état 3^+ à 1340,5 keV. Pour ajuster les calculs de TALYS au rapport de branchement de Firestone, la prédiction de la section efficace de la transition de 881,0 keV doit être multipliée par un facteur de 73,9/62,7. Cela vaut pour la section efficace totale, ainsi que pour la section efficace prompt de la transition de 881,0 keV. Puisque, en même temps, la section efficace de la transition de 343,5 keV diminue, la section efficace de la transition de 537,4 keV doit diminuer de la même valeur. La prédiction de la section efficace de la transition de 343,5 keV, multipliée par un facteur de 26,1/37,3 a été soustraite de la prédiction pour la transition de 537,4 keV. La fraction alimentée par la décroissance de l'état isomérique a, aussi, été modifiée. La figure 5.38 compare nos résultats aux calculs de TALYS ajustés au rapport de branchement de Firestone.

Avec le rapport de branchement de Firestone, les courbes de TALYS s'accordent mieux à nos données, mais un décalage existe toujours pour la transition de 881,0 keV. Il est généralement reconnu que les prédictions des codes théoriques pour les transitions γ individuelles sont moins fiables que les prédictions pour les sections efficaces totales de la diffusion inélastique et des réactions telles que les réactions (n, xn) [38].

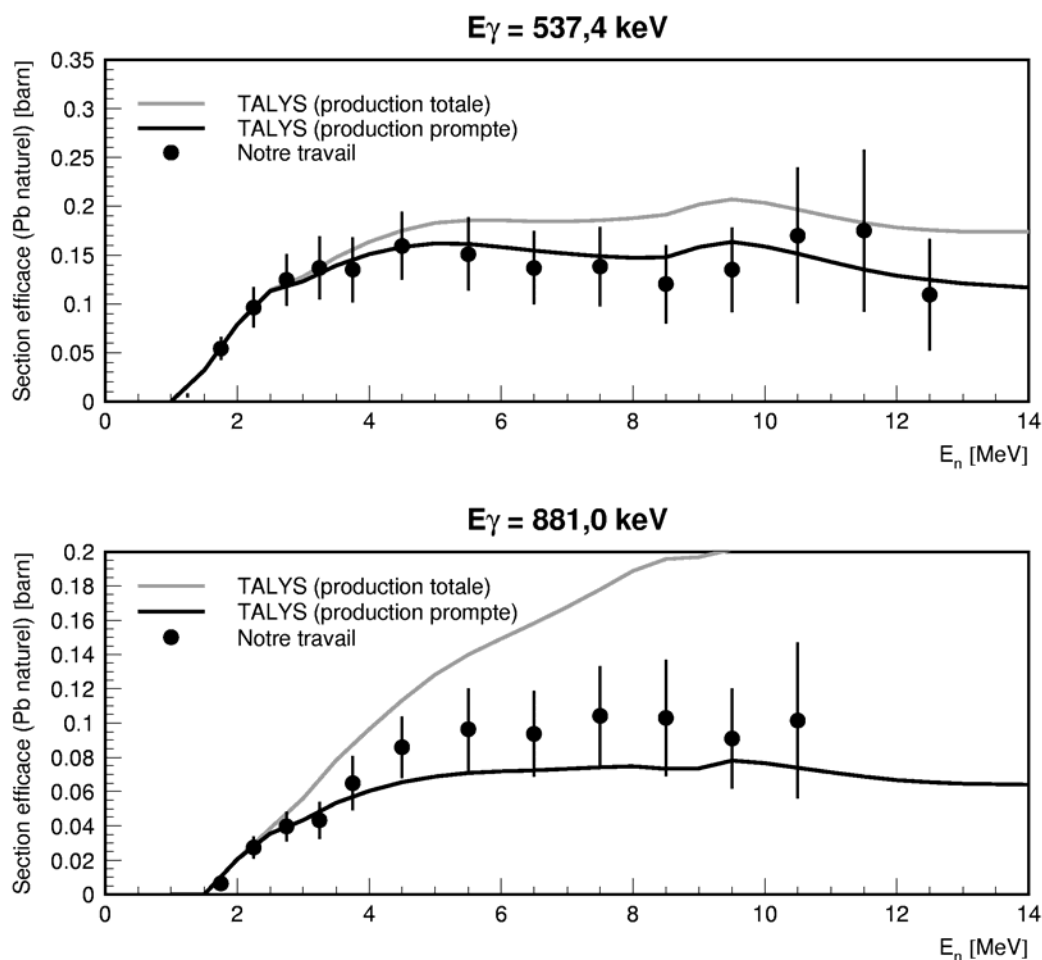


Figure 5.38 : La section efficace de la production de la transition de l'état 4^+ à 1684,0 keV et de l'état 3^+ à 1340,5 keV vers le premier état excité de ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel. Les courbes de TALYS ont été ajustées au rapport de branchement de l'état 4^+ à 1684,0 keV de Firestone.

5.7 Transitions caractéristiques de ^{207}Pb

Lors des réactions des neutrons de 1 à 20 MeV avec le plomb naturel, le ^{207}Pb peut être produit à travers trois réactions différentes, $^{206}\text{Pb}(n,\gamma)$, $^{207}\text{Pb}(n,inl)$ et $^{208}\text{Pb}(n,2n)$. Les contributions des réactions $^{207}\text{Pb}(n, n')$ et $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ sont de même ordre de grandeur, tandis que la contribution de la capture sur le ^{206}Pb est de deux à trois ordres de grandeur inférieure sur toute la gamme d'énergies de neutrons à partir du seuil de la diffusion inélastique [10] - [12]. Pour cette raison elle sera négligée dans ce qui suit. La figure 5.39 représente la comparaison, sur l'échelle logarithmique, de l'évaluation ENDF des sections efficaces des réactions $^{207}\text{Pb}(n,inl)$ et $^{206}\text{Pb}(n,\gamma)$, pondérées des abondances naturelles des isotopes initiaux respectifs.

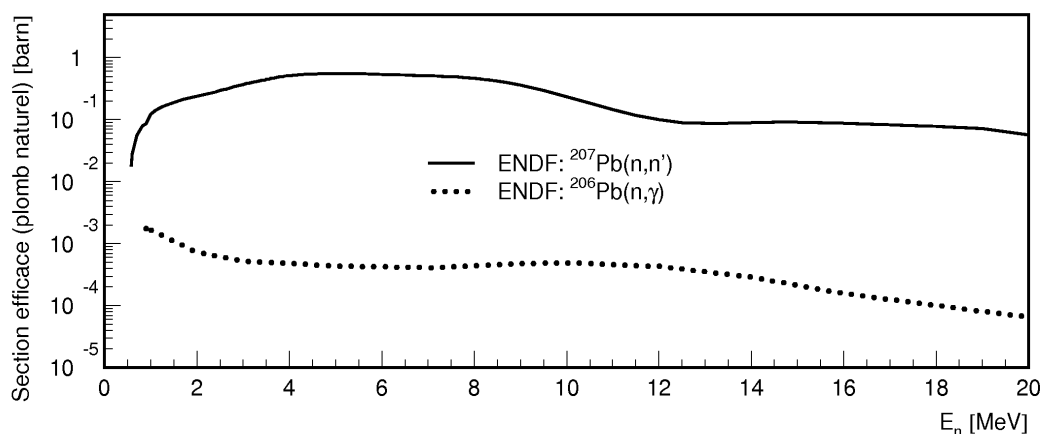


Figure 5.39 : Sections efficaces ENDF des réactions $^{208}\text{Pb}(n, inl)$ et $^{207}\text{Pb}(n, \gamma)$ pondérées des abondances de leurs isotopes initiaux et comparées sur l'échelle logarithmique.

Les courbes mesurées de sections efficaces pour les transitions de ce noyau contiennent, donc, les contributions des deux réactions :

$$\sigma^* = a_{207} \sigma_{207(n, n' \gamma)} + a_{208} \sigma_{208(n, 2n \gamma)} \quad (5.24)$$

Ici, $\sigma_{207(n, n' \gamma)}$ et $\sigma_{208(n, 2n \gamma)}$ sont les sections efficaces de la production prompt de la transition concernée, par les réactions $^{207}\text{Pb}(n, n' \gamma)$ et $^{208}\text{Pb}(n, 2n \gamma)$ respectivement, et $a_{207} = 0,221$ et $a_{208} = 0,524$ sont les abondances naturelles des isotopes initiaux de ces réactions. Comme dans le cas de la transition du ^{206}Pb , les trois contributions ne peuvent pas être séparées l'une de l'autre à partir des seules données expérimentales sur le plomb naturel. Les contributions individuelles seront estimées à l'aide du calcul théorique.

Le schéma des niveaux du ^{207}Pb jusqu'à 1633 keV est représenté dans la figure 5.40. Dans cette région se trouvent les transitions les plus importantes pour cette étude. Les transitions directes des deux premiers états excités vers l'état fondamental sont marquées par les lignes noires.

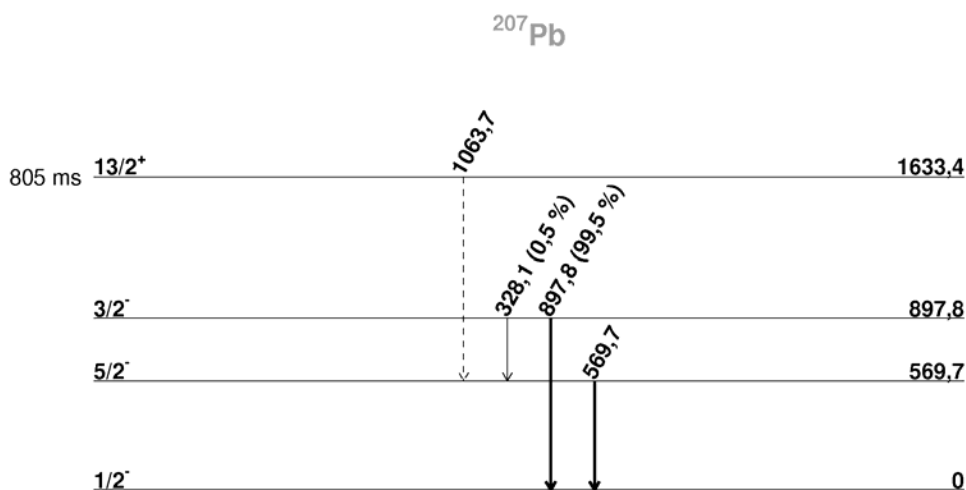


Figure 5.40 : Schéma des niveaux de ^{207}Pb [30] jusqu'à 1633 keV. Les intensités relatives sont notées pour les niveaux avec plusieurs voies de décroissance.

L'état isomérique $13/2^+$ à 1633,4 keV décroît vers l'état $5/2^-$ à 569,7 keV, en émettant un rayon γ de 1063,7 keV. Dans la figure, cette transition est marquée par la ligne discontinue. Sa durée de vie est de 0,805 s, ce qui est très supérieur à la période des impulsions du faisceau. Alors, au bout d'un temps de l'ordre de la seconde, le taux de comptage des rayons γ de 1063,7 keV devient pratiquement constant. L'alimentation du premier état excité par cette transition affecte la mesure prompte de la transition de 569,7 keV de la manière décrite dans la section 5.2.3. La transition de l'état $3/2^-$ à 897,8 keV vers l'état fondamental n'est pas affectée par l'état isomérique.

5.7.1 Transition du premier état excité de ^{207}Pb

Le premier état excité du noyau du ^{207}Pb se trouve à l'énergie de 569,7 keV, et son spin/parité est $5/2^-$ [30]. La transition vers l'état fondamental se passe par l'émission d'un rayon γ de 569,7 keV. Dans le spectre intégral du rayonnement γ détecté pendant les 85 heures de notre mesure, l'intensité de la raie à cette énergie était de 35.000 coups.

La fraction retardée des transitions de 569,7 keV due à l'alimentation par la transition de l'état isomérique est distribuée uniformément en temps entre les impulsions du faisceau et peut être traitée comme un fond constant. Comme la période des impulsions du faisceau est de 1,25 ms, et la durée de la fenêtre d'acquisition est de 25 μs , seulement 2 % de transitions retardées se passent pendant que l'acquisition est active. Parmi les intervalles d'énergie de neutrons choisis pour notre analyse, le seul qui se trouve au-dessous du seuil de la diffusion inélastique sur le ^{207}Pb est celui de 0,3 à 0,5 MeV. Le nombre de coups dans la raie à 569,7 keV dans cet intervalle a été utilisé pour déterminer le taux de comptage des transitions retardées. Celles-ci ont été soustraites du nombre de coups dans la raie à 569,7 keV dans tous les autres intervalles d'énergie de neutrons, en tenant compte des longueurs des intervalles de temps de vol correspondants. La section efficace de la production *prompte* de la transition de 569,7 keV ainsi obtenue est égale à la différence entre la section efficace totale pour cette transition et la section efficace de la transition isomérique de 1063,7 keV.

Pour ajuster les calculs par TALYS à la situation expérimentale avant de les comparer aux résultats, la section efficace calculée pour la transition de 1063,7 keV a été soustraite à celle calculée pour la transition de 569,7 keV. L'équation (5.24) a, aussi, été appliquée aux calculs pour rendre compte de la cible naturelle.

Les résultats pour la transition du premier état excité du ^{207}Pb sont représentés dans la figure 5.41. Les points représentent les valeurs mesurées et normalisées par le facteur α_{570} obtenu selon l'équation (5.15). Les erreurs des valeurs expérimentales ont été estimées à partir de l'incertitude du nombre d'événements dans la raie excitée, l'incertitude de l'intensité du faisceau de neutrons dans l'intervalle correspondant d'énergies de neutrons et l'incertitude du facteur de normalisation α_{570} . Les valeurs numériques des résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

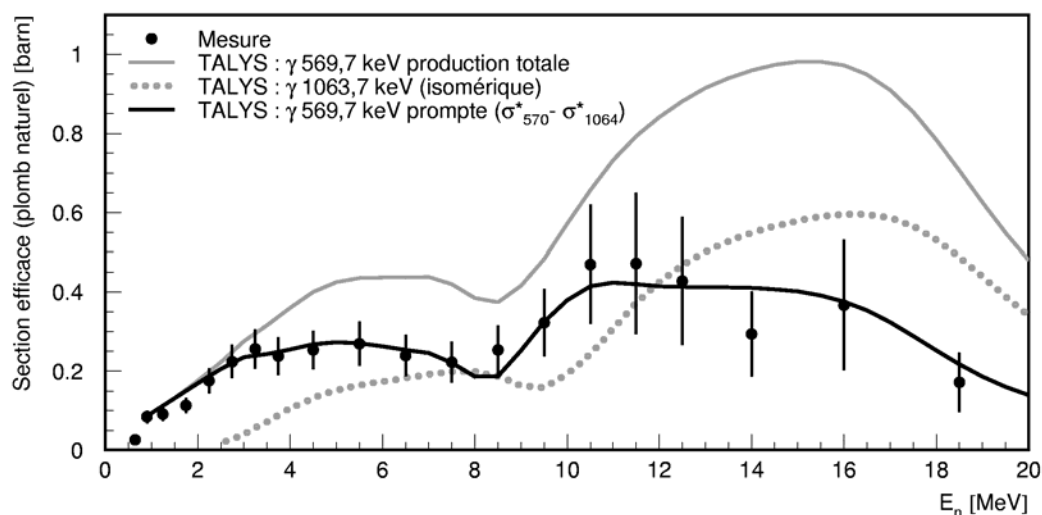


Figure 5.41 : La courbe d'excitation de la transition fondamentale du ^{206}Pb dans la cible de plomb naturel par les neutrons.

La ligne grise représente la production de la transition du premier état excité et la ligne en pointillé la transition isomérique. La différence entre ces deux sections efficaces, la production prompt de la transition du premier état excité, est représentée par la ligne solide.

La forme de la courbe expérimentale est bien reproduite par le calcul de TALYS. La différence relative entre la valeur du facteur de normalisation obtenue selon l'équation (5.15) et celle qui serait obtenue directement par TALYS est de 5 %.

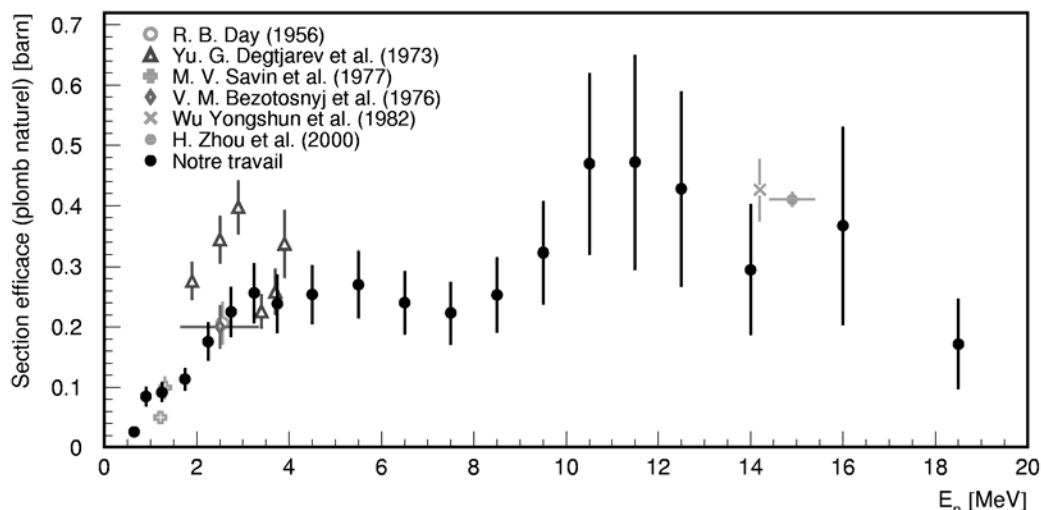


Figure 5.42 : Comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le plomb naturel.

La figure 5.42 compare nos résultats aux autres mesures de l'émission prompte du rayon de 569,7 keV par le plomb naturel sous faisceau de neutrons. Toutes les mesures représentées ont déjà été résumées dans la discussion de la figure 5.17 et 5.25.

Les données de Savin et al. ne séparent pas la contribution des transitions de 537,4 keV du ^{206}Pb et de 583,2 keV du ^{208}Pb . Les seuils de ces deux transitions sont de 1,3 et 3,2 MeV. Pour cette raison, les données de Savin et al. n'ont été représentées que jusqu'à 1,3 MeV.

5.7.2 Contribution de la diffusion inélastique sur ^{207}Pb

Pour séparer les contributions des deux réactions qui induisent la transition de 569,7 keV, la même procédure a été appliquée comme pour la transition du premier état excité du ^{206}Pb (voir paragraphe 5.5.4). La figure 5.43 représente le résultat pour la contribution de la diffusion inélastique, comparé avec les calculs de TALYS. Les valeurs obtenues, ainsi que leurs incertitudes ont été divisées par les abondances naturelles des isotopes initiaux afin de revenir aux sections efficaces isotopiques. Les valeurs numériques des résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

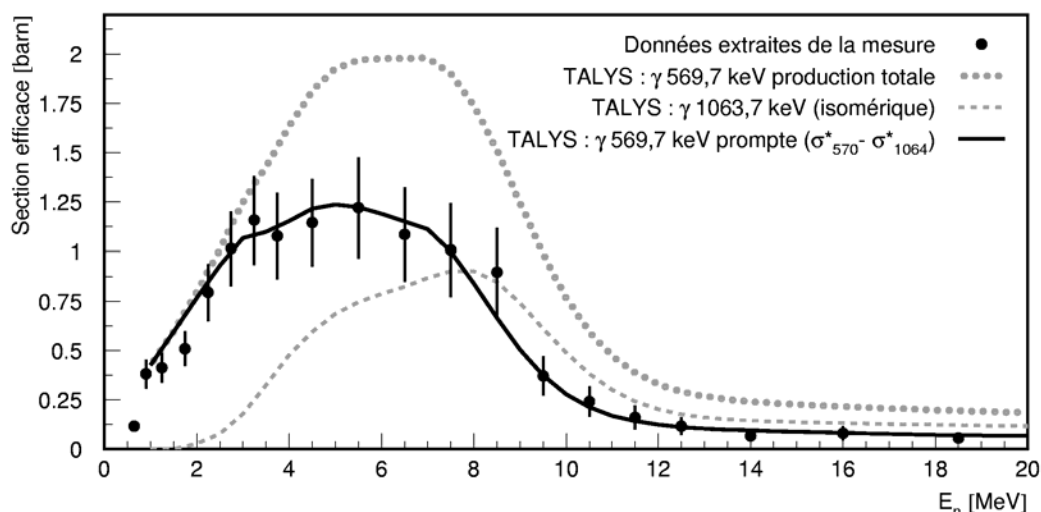


Figure 5.43 : Contribution de la diffusion inélastique à la transition de 569,7 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.

La figure 5.44 représente la comparaison de la section efficace pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la diffusion inélastique déduite de nos mesures avec les résultats d'autres expériences. Les mesures représentées ont déjà été résumées dans la discussion de la figure 5.27.

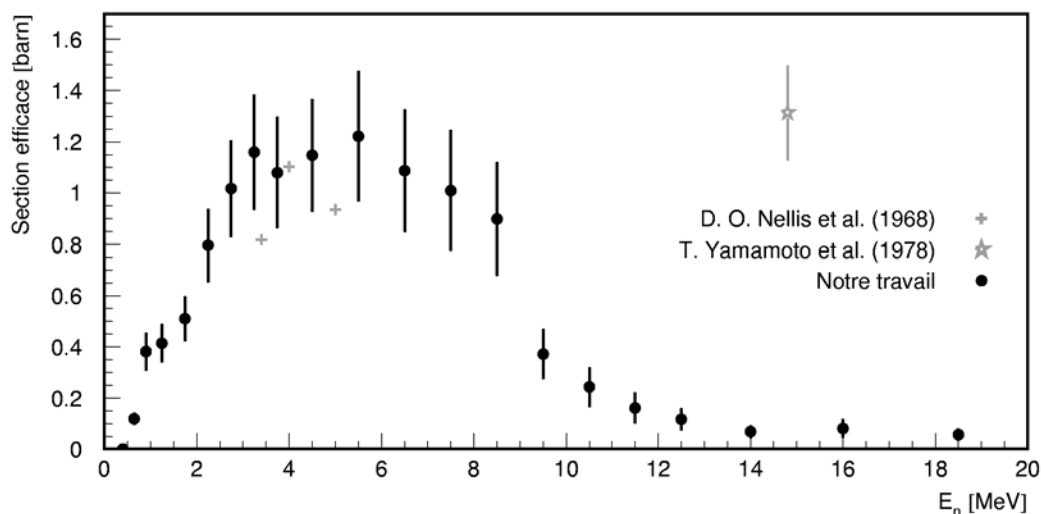


Figure 5.44 : Comparaison de la section efficace isotopique pour la production prompte de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la diffusion inélastique des neutrons sur le ^{206}Pb .

Le résultat de la mesure de Yamamoto et al. semble confirmer qu'il s'agit de la section efficace mesurée sur le plomb naturel et divisée par l'abondance naturelle du ^{207}Pb sans soustraction de la contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n\gamma)$. Leur résultat pour la transition de 2614,5 keV, induite par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,n'\gamma)$, s'accorde bien avec les autres mesures parce que la diffusion inélastique est la seule réaction susceptible d'induire cette transition. Dans le cas de la transition du premier état excité du ^{206}Pb et ^{207}Pb , la contribution de la réaction

($n,2n$) sur le ^{207}Pb et ^{208}Pb , respectivement, influe significativement le résultat, surtout dans le cas de la transition du premier état excité du ^{207}Pb , parce que l'abondance naturelle du ^{208}Pb est plus importante que l'abondance du ^{207}Pb .

5.7.3 Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$

La section efficace pour la production de la transition de 569,7 keV par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ déduite de nos données est comparée aux calculs par TALYS dans la figure 5.45. Les valeurs numériques des résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

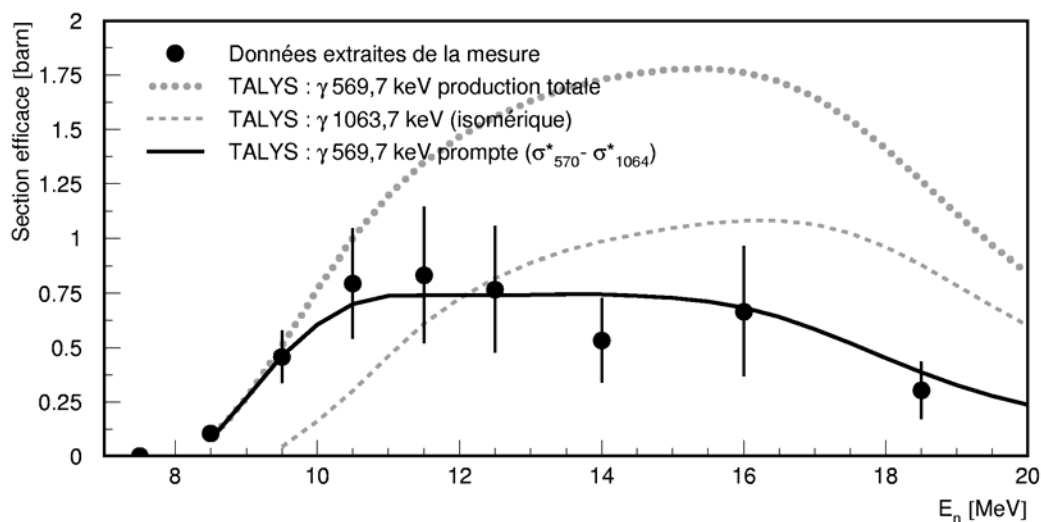


Figure 5.45 : Contribution de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ à la transition de 569,7 keV séparée à l'aide du calcul par TALYS.

La figure 5.46 compare notre résultat avec d'autres mesures. Dans notre expérience, le nombre total de rayons γ de 569,7 keV, induits par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$, détectés pendant les 85 heures d'acquisition, était de **1930**. Ce nombre est réparti entre les intervalles d'énergie de neutrons de sorte que le nombre de rayons détectés dans chaque intervalle se trouve entre 70, comme dans l'intervalle de 17 à 20 MeV, et 460, comme dans l'intervalle de 9 à 10 MeV.

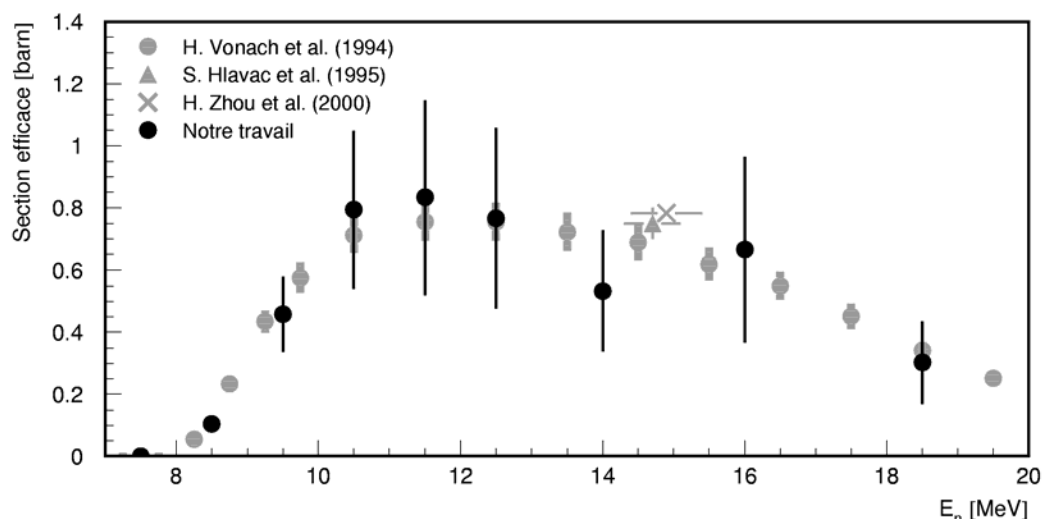


Figure 5.46 : Comparaison de la section efficace pour la production prompt de la transition du premier état excité du ^{207}Pb par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ déduite de nos mesures avec les résultats de Vonach et al. pour la même transition.

La section efficace totale de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ a été estimée de manière similaire à celle dans le paragraphe 5.5.5 à partir de la contribution mesurée de cette réaction à la transition de 569,7 keV. Cette estimation est comparée aux courbes $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ des bases de données ENDF/B-VI, JENDL-3 et BROND-2 dans la figure 5.47. Les valeurs numériques de nos résultats sont représentées sous forme de tableau dans l'appendice 4.

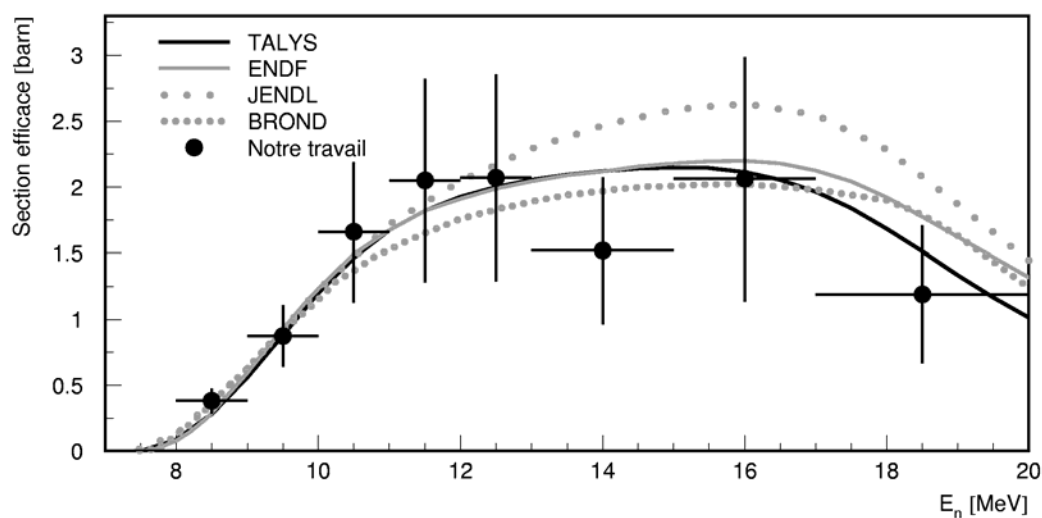


Figure 5.47 : Comparaison de notre résultat pour la section efficace $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ avec les bases de données.

La figure 5.48 compare nos résultats pour la section efficace totale de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ avec la mesure de J. Frehaut et al. [64]. La mesure de J. Frehaut et al. a déjà été résumée dans le paragraphe 5.5.5.

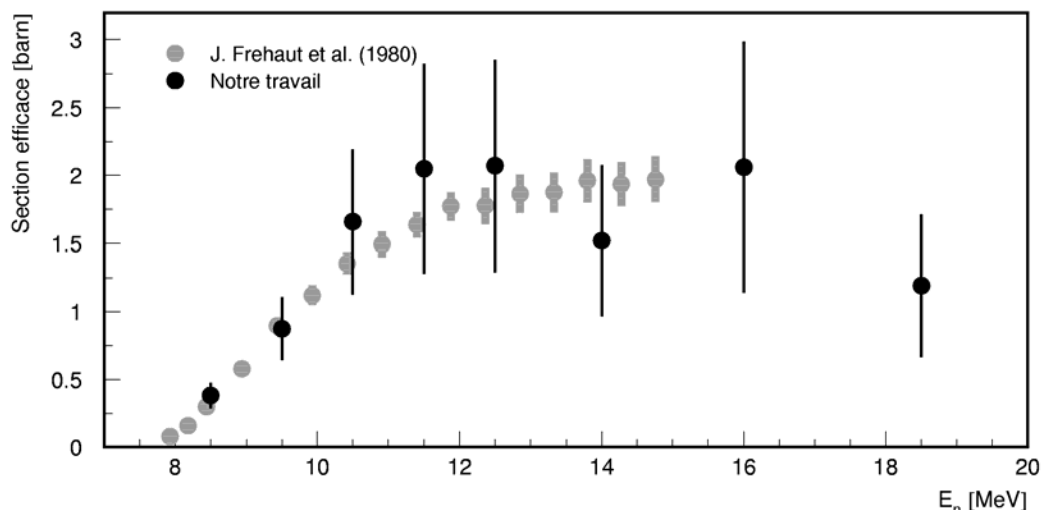


Figure 5.48 : Comparaison de nos résultats pour la section efficace $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ avec la mesure de J. Frehaut et al. [64]

5.7.4 Transition de l'état $3/2^-$ à 897,8 keV

Le deuxième état excité de ^{207}Pb est l'état $3/2^-$ à 897,8 keV [30]. La transition vers l'état fondamental se passe par l'émission d'un rayon γ de 897,8 keV. Dans le spectre intégral du rayonnement γ détecté pendant les 85 heures de notre mesure, le nombre de coups dans la raie à cette énergie était de 16.400.

Dans le spectre γ , la transition de 897,8 keV est mélangée avec la transition de 899,2 keV du premier état excité de ^{204}Pb . Pour les séparer, il faudrait une résolution de 1,4 keV, ce qui dépasse la performance des meilleurs systèmes spectroscopiques. La résolution de notre système mesurée à 881 keV était de 2,4 keV. Si on suppose que la section efficace isotopique pour la transition du premier état excité de ^{204}Pb soit de même ordre de magnitude que celle pour la transition du premier état excité de ^{206}Pb , on peut s'attendre à environ 3.000 coups de 899,2 keV dans le spectre intégral. Ceci représente une contribution significative au total de 16.400 coups dans la raie.

L'état $3/2^-$ à 897,8 keV n'est pas alimenté par la décroissance de l'état isomérique. La figure 5.49 compare notre résultat au calcul par TALYS et aux résultats d'autres expériences.

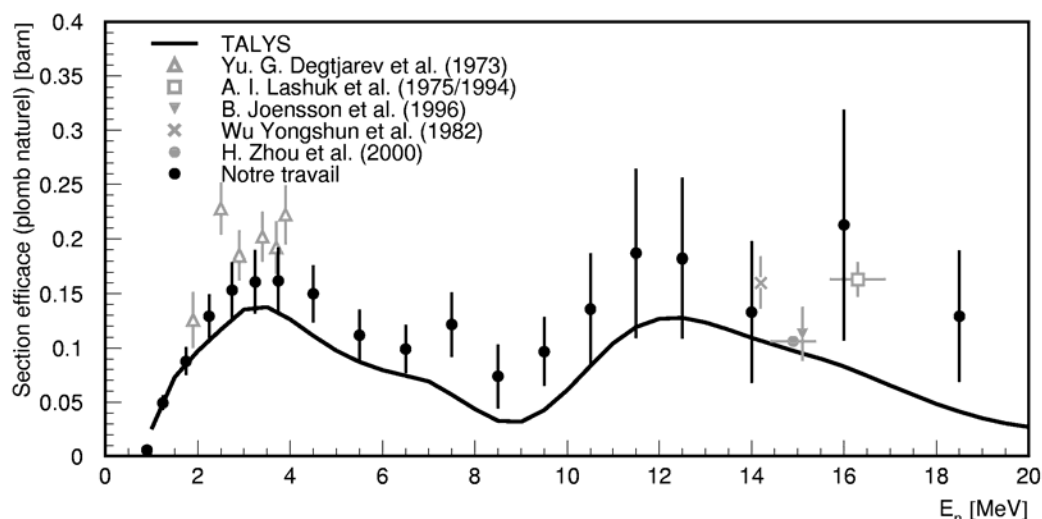


Figure 5.49 : Courbe de la section efficace de la production de la transition de l'état $3/2^-$ à 897,8 keV vers l'état fondamental de ^{207}Pb .

Nos valeurs sont systématiquement supérieures à celles calculées par TALYS, ainsi qu'aux résultats des expériences les plus récentes à 15 MeV. Ce désaccord peut être expliqué par la contribution de la transition du premier état excité de ^{204}Pb dans la région d'énergie où domine la diffusion inélastique (1,0 – 9,0 MeV), ainsi que, en partie, dans la région où domine la réaction $(n,3n)$ (16 – 20 MeV). Puisque l'isotope ^{205}Pb n'est pas présent dans le plomb naturel, la production de ^{204}Pb dans la région de 9 à 16 MeV provient uniquement de la diffusion inélastique dont la section efficace est relativement faible dans cette région. Quant à la distribution angulaire, la transition de 897,8 keV est du type M1, comme celle de 537,4 keV de ^{206}Pb pour laquelle nos données sont inférieures à la prédiction de TALYS. Enfin, la prédiction de TALYS pour la production de la transition de 897,8 keV par la réaction $(n,2n)$, dans l'intervalle présenté dans la figure 5.49, s'accorde bien aux résultats de Vonach et al. [50] obtenues avec une cible de ^{208}Pb enrichie, avec moins de 0,01% de ^{204}Pb , ainsi qu'aux résultats de Hlaváč et al. [48] et de Zhou et al. [49].

REFERENCES :

- [29] A. J. Koning, *Upgrading JEFF-3 With TALYS – Low and Intermediate Energy Data*, Présentation orale à la réunion JEFF tenue du 24 au 26 avril 2000, Aix en Provence, France.
- [30] R. B. Firestone, *Table of Isotopes*, CD-ROM, eighth edition, Wiley – Interscience, (1996).
- [31] G. Duchêne et al., *The Clover: a new generation of composite Ge detectors*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A432** (1999) 90-110
- [32] Hubbell, J. H. and Seltzer, S. M. (1997), *Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients* (version 1.03). [Online] Available: <http://physics.nist.gov/xaamdi> [2004, January 29]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- [33] Cross Section Evaluation Working Group, *ENDF/B-VI Summary Documentation*, Report **BNL-NCS-17541 (ENDF-201)** (1991), edited by P.F. Rose, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, USA.
- [34] T. Nakagawa, et al., *Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version 3, Revision 2*, J. Nucl. Sci. Technol. **32**, 1259 (1995).
- [35] A. I. Blokhin, et al., *Current Status of Russian Nuclear Data Libraries*, Nuclear Data For Science and Technology, Volume 2, p. 695, edited by J. K. Dickens (American Nuclear Society, LaGrange Park, IL, 1994).
- [36] L. Valentin, *Noyaux et particules*, Hermann (1989)
- [37] W. E. Kinney, F. G. Perey, *^{206}Pb , ^{207}Pb , and ^{208}Pb Neutron Elastic and Inelastic Scattering Cross Sections from 5.50 to 8.50 MeV*, ORNL-4909 (1974)
- [38] S. Hilaire, communication privée.
- [39] A. I. Lashuk, I. P. Sadokhin, *Gamma Quanta Production Cross-Sections at Neutron Inelastic Scattering at the Energy 3 MeV*, Voprosi Atomnie Nauki I Tekhn., Ser. Yadernye Konstanty December 1996, 59. Les données téléchargées de la base de données CSIRS, fichier EXFOR 41245.028 du 31 mai 1997. Disponible en ligne sur le site <http://www.nndc.bnl.gov/>.
- [40] Yu. G. Degtjarev, V. N. Protopopov, *Gamma-Spectra And Cross-Sections of the Reactions (n,γ) on ^{27}Al , ^{51}V , ^{52}Cr , ^{55}Mn , ^{56}Fe , ^{93}Nb , ^{208}Pb and ^{209}Bi Isotopes*, Izvjestiya Rossiiskoi Akademii Nauk, Ser. Fizika **35** (1971) 2341. Fichier EXFOR 40278.008 du 29 mars 1985. Source : idem.
- [41] Yu. G. Degtjarev et al., *Gamma-Ray Production Cross-Sections for Al, Fe and Pb Nuclei at the interaction with 1.9-4.0 MeV Neutrons*, The 2nd Conference on Neutron Physics, Kiev 1973. Fichier EXFOR 40266.004 du 29 mars 1985. Source : idem.

- [42] A. I. Lashuk et al., *Gamma-Quanta Production Cross-Sections at Inelastic Scattering of the Neutrons on the Nuclei of Reactor Construction Materials*, Voprosi Atomnie Nauki I Tekhn., Ser. Yadernye Konstanty (1994) 26. Fichier EXFOR 41186.032 du 15 avril 1996. Source : idem.
- [43] V. M. Bezotosnyj et al., *Cross-Section of γ -Ray Production at Inelastic Interaction of 14 MeV Neutrons With Different Nuclei*, Voprosi Atomnie Nauki I Tekhn., Ser. Yadernye Konstanty **19** (1975) 77. Fichier EXFOR 40340.009 du 18 septembre 1986. Source : idem.
- [44] V. M. Bezotosnyj et al., *Cross-Sections for Gamma-Production By the Interaction of 2.5-MeV Neutrons With Various Nuclei*, Voprosi Atomnie Nauki I Tekhn., Ser. Yadernye Konstanty **22** (1976) 21. Fichier EXFOR 40521.007 du 17 avril 1986. Source: idem.
- [45] M. V. Savin et al., *Cross-Sections for Discrete Gamma-Lines Production on Lead at Neutron Energies 1 – 10 MeV*, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya **24** (1977) 11. Fichier EXFOR 40542.003 du 7 janvier 1980. Source : idem.
- [46] J. K. Dickens, *Neutron-Induced Gamma-Ray Production in ^{208}Pb for Incident Neutron Energies Between 4.9 and 8.0 MeV and in ^{209}Bi for an Incident Neutron Energy of 5.4 MeV*, Nuclear Science and Engineering **63**, 101 (1977). Fichier EXFOR 10692.005 du 15 mai 1979. Source: idem.
- [47] Wu Yongshun et al., *Production cross section of discrete gamma-rays resulting from interaction of 14.2 MeV neutrons with Pb and Bi*, Chinese Journal of Nuclear Physics (Beijing) **4** (1982) 299. Fichier EXFOR 32617.002 du 27 juin 1995. Source: idem.
- [48] S. Hlaváč et al., *Study of gamma radiation from interaction of 14.7 MeV neutrons with ^{208}Pb* , Nuclear Science and Engineering **119**, 195 (1995) Fichier EXFOR 31450.xxx du 09 août 1995. Source: idem.
- [49] H. Zhou et al., *Discrete Gamma Radiation in Interaction of 14.9-MeV Neutrons with Natural Lead*, Nuclear Science and Engineering **134**, 106 (2000). Fichier EXFOR 31492.xxx du 21 mars 2002. Source: idem.
- [50] H. Vonach et al., *$^{207,208}\text{Pb}(n,xn\gamma)$ reactions for neutron energies from 3 to 200 MeV*, Physical Review **C50** (1994) 1952. Fichier EXFOR 13644.xxx du 18 mars 1997. Source : idem.
- [51] J. H. Towle, W. B. Gilboy, *Inelastic Neutron Scattering in ^{208}Pb* , Nuclear Physics **44** (1963) 256. Fichier EXFOR 21128.004 du 28 mars 1980. Source : idem
- [52] S. P. Simakov et al., *14 MeV Facility and Research in IPPE*, Voprosi Atomnie Nauki I Tekhn., Ser. Yadernye Konstanty **4** (1993) 93. Fichier EXFOR 41156.009 du 02 septembre 1994. Source : idem.
- [53] V. E. Scherrer et al., *Gamma-Radiation from Interaction of 3.2 MeV Neutrons with Various Materials*, Physical Review **96** (1954) 386. Fichier EXFOR 11672.014 du 1

- novembre 1983. Source : idem.
- [54] R. B. Day, *Gamma-Rays From Neutron Inelastic Scattering*, Physical Review **102** (1956) 767. Données prises de l'article et adaptées.
- [55] R. B. Day, M. Walt, *Gamma-Rays From Inelastic Scattering in ^{10}B , ^{19}F and ^{56}Fe* , Physical Review **117** (1960) 1330.
- [56] V. M. Bezotosnyi et al., *Cross-Sections for the Production of γ -Quanta in Inelastic Interaction Between 14-MeV Neutrons and C, O, Al, Fe, and Pb Nuclei*, Soviet Journal of Nuclear Physics **3** (1966) 632. Fichier EXFOR 40777.003 du 6 juillet 1984. Disponible en ligne au site <http://www.nndc.bnl.gov/>.
- [57] B. Joensson et al., *High Resolution Measurements of γ -Rays Produced by 15-MeV Neutrons*, Arkiv foer Fysik **39** (1969) 295. Fichier EXFOR 20164.028 du 18 avril 1969. Source : Idem.
- [58] R. M. Kiehn, C. Goodman, *Neutron Inelastic Scattering*, Physical Review **95** (1954) 989. Fichier EXFOR 11477.008 du 15 mars 1993. Source : Idem.
- [59] D. A. Lind, R. B. Day, *Studies of Gamma-Rays from Neutron Inelastic Scattering*, Annals of Physics **12** (1961) 485. Fichier EXFOR 11188.016 du 14 août 1980. Source : Idem.
- [60] J. W. Boring, M. T. McEllistrem, *Differential Cross-Sections for $(n,n'\gamma)$ Reactions in Several Nuclei*, Physical Review **124** (1961) 1531. Fichier EXFOR 11489.008 du 24 novembre 1982. Source : Idem.
- [61] D. O. Nellis et al., *Gamma-Ray Production Cross-Sections for $^{206,207}\text{Pb}$* , Washington AEC Office Reports **1124** (1968) 182. Fichier EXFOR 13008.002 du 4 septembre 1991. Source : Idem.
- [62] E. S. Konobeevskij et al., *Neutron Inelastic Scattering on Nuclei of $^{198,200,202}\text{Hg}$ and ^{206}Pb in Energy Range Near Threshold*, Bulletin of the Academy of Sciences of the USSR, Physics Series **37 (9)** (1973) 87. Fichier EXFOR 40215.005 du 29 mars 1985. Source : Idem.
- [63] T. Yamamoto et al., *Gamma-Ray Production Cross-Sections for Interaction of 14.8 MeV Neutrons with O, Na, Al, Cl, Cr, Fe, Ni, Cu and Pb*, Nuclear Science and Technology, Tokyo, **15** (1978) 797. Fichier EXFOR 21304 du 6 janvier 1986. Source : Idem.
- [64] J. Frehaut et al., *Status of $(n,2n)$ Cross-Section Measurements at Bruyères-Le Châtel*, Contribution to the Symposium on Neutron Cross-Sections From 10 to 50 MeV, Upton, Etats-Unis, du 12 au 14 mai 1980. Fichier EXFOR 20416 du 26 septembre 1986. Source : Idem.
- [65] J. K. Dickens, *Gamma-Ray Transitions among levels of ^{206}Pb* , Physical Review **C28** (1983) 916. Fichier EXFOR 12841.002 du 8 novembre 1983. Source : Idem.

Conclusions

6 Conclusions

Lorsque ce travail a été commencé, le but annoncé était de mettre au point une méthode de mesure des réactions (n,xn) applicable auprès du faisceau de neutrons n_TOF. Il s'agit de la spectroscopie γ prompt adaptée aux faisceaux à très haut flux instantané. La spectroscopie γ sous faisceau avait été utilisée intensément auprès d'accélérateurs d'ions chargés, comme le Vivitron, mais seulement très peu de temps auparavant auprès d'un faisceau de neutrons, à Los Alamos.

D'abord, il a été nécessaire de vérifier que les détecteurs HPGe survivent assez longtemps auprès d'un faisceau de neutrons. Dans ce travail, la dose reçue par notre détecteur auprès du faisceau de GELINA en 85 heures a été mesurée égale à $1,6 \times 10^4$ neutrons par cm^2 , soit cinq ordres de grandeur en dessous de la dose acceptable. Ceci confirme clairement que l'utilisation des détecteurs HPGe auprès d'un faisceau de neutrons est possible.

La première véritable difficulté réside dans le fait que le temps utile par impulsion du faisceau est très court. Le PS au CERN envoie essentiellement une impulsion de faisceau toutes les 14 s vers la base de vol de n_TOF, longue de 185 m. Les réactions (n,xn) ont un seuil d'environ 6–8 MeV, ce qui correspond à un temps de vol inférieur à 6 μs (appendice 1). Le temps utile pour ces réactions s'étend donc de 1 μs pour les neutrons de 250 MeV à 6 μs pour ceux au seuil, donc 5 μs toutes les 14 s, soit moins d'une seconde par mois du faisceau.

La seconde difficulté provient de l'existence d'un flash créé par la source de neutrons, et qui arrive à la cible pratiquement en même temps que les neutrons les plus rapides. A n_TOF ce flash donne un signal intense (équivalent à l'énergie du rayonnement γ de 150 MeV) dans le détecteur après diffusion sur la cible. Il faut donc être capable de détecter, avec une résolution de l'ordre du keV, les rayons γ qui arrivent seulement quelques μs après le flash. Par exemple, dans le cas des neutrons de 30 MeV, la séparation en temps par rapport au flash est de seulement 2 μs (appendice 1). Les chaînes d'acquisition classiques conduisent à des empilements lorsque cette séparation est environ dix fois plus longue. La durée de la mise en forme des signaux peut être réduite, mais alors la résolution en énergie devient rapidement inacceptable.

Ce travail a consisté en la mise au point d'une nouvelle méthode, basée sur une électronique numérisée. En étudiant précisément la forme du signal à la sortie du préamplificateur nous avons réussi à développer une méthode du traitement numérique de ce signal qui nous a permis d'obtenir une résolution voisine de celle des meilleures chaînes analogiques avec un temps mort de 3 μs . Pour un détecteur coaxial de type CLOVER, cette résolution ne se détériore de façon significative que lorsque ce temps mort descend au-dessous de 2 μs . La résolution en temps de vol est de l'ordre de 20 ns, ce qui correspond à une résolution sur l'énergie du neutron de 0,25 MeV à 20 MeV, ce qui est largement suffisant pour décrire la courbe d'excitation d'une réaction $(n,2n)$ avec assez de précision.

Pour valider la méthode, nous avons mesuré pendant 85 heures les rayons γ produits par des neutrons du faisceau de GELINA qui bombardaient une cible de Pb naturel. Le flash gamma

de GELINA est moins intense que celui à n_TOF, de même que l'intensité instantanée. Mais, puisque la distance de vol était la même (200 m) et le taux de comptage dû au flash était nettement plus élevé que celui dû à la réaction, les conditions essentielles pour mettre la méthode au point étaient réunies. La mesure a consisté à recueillir les oscillogrammes de tous les signaux, donc une masse de données très importantes. Ceci nous a permis de traiter les mêmes signaux en faisant varier les paramètres du traitement numérique, et d'étudier leur influence sur la résolution en énergie, le temps mort et le taux d'empilement.

Finalement, un spectre a été constitué avec des paramètres permettant une résolution en énergie de 2,3 keV pour la raie à 803 keV et 3,2 keV pour la raie à 2615 keV, avec un temps mort de 3 μ s seulement, correspondant à des neutrons de 15 MeV.

L'objectif de cette mesure était le développement et la validation de la méthode. Les résultats en sont des sections efficaces relatives pour la production de différentes transitions dans le plomb naturel par les réactions (n, xn), ainsi que par la diffusion inélastique des neutrons. La courbe de la transition de 2615 keV, produite exclusivement par la diffusion inélastique sur ^{208}Pb , était normalisée à l'aide du code théorique TALYS. La normalisation de cette courbe a été utilisée pour déduire les facteurs de normalisation des autres transitions mesurées.

Avec une cible de Pb naturel, la plupart des raies sont produites par des réactions différentes sur des isotopes différents. Les différentes contributions ont été déconvoluées à l'aide de TALYS.

Le résultat le plus attendu a été l'extraction de la section efficace de la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$. Le bon accord de notre résultat avec des données connues valide la méthode. Accessoirement, ceci représente le premier résultat avec des neutrons de plus de 10 MeV obtenu à GELINA.

Mais nous avons pu aller plus loin. Les sections efficaces des réactions (n, n') sur $^{206,207,208}\text{Pb}$ ont été extraites et comparées à des données ou à TALYS. Les réactions $^{208}\text{Pb}(n,2n)$ et $^{208}\text{Pb}(n,3n)$ ont aussi été mesurées. Mieux, il a été démontré que plusieurs raies correspondant à une même réaction peuvent être étudiées, ce qui permet de tester les modèles, et surtout leur phase de décroissance.

Ces résultats justifient une suite de mesures avec la méthode mise au point dans ce travail. Une expérience avec une cible de 90 g de ^{207}Pb enrichi à 92% s'est déroulée du 10 mai au 23 juillet 2004. L'algorithme décrit dans le chapitre 4 a été imprimé dans la carte d'acquisition, de telle façon que les paramètres physiques, le temps de vol et l'énergie γ , ont été calculés en ligne et ont été les seules données écrites sur disque. Les détecteurs utilisés étaient non pas des CLOVER, comme dans ce travail, mais des cristaux de gros volume. Les paramètres utilisés par l'algorithme de calcul du temps et de l'énergie ont été ajustés aux caractéristiques de ces détecteurs sous faisceau, aucun détecteur de gros volume n'étant disponible à l'IREs. Avec un détecteur d'efficacité 100%, la résolution sur la raie à 803 keV était de 3,5 keV pour un temps mort de 2,5 μ s, ce qui a permis de mesurer les sections efficaces jusqu'à des énergies de neutrons de 22 MeV sans empilement.

Ce travail ouvre la voie à l'utilisation de cette méthode pour mesurer des réactions sur les actinides, et en particulier la réaction $^{233}\text{U}(n,2n)$ qui a une importance capitale dans le cycle du Thorium. A cause de l'activité de cet isotope, le rapport signal/bruit qu'on peut obtenir à GELINA est insuffisant. Il faut donc le cycle utile très faible de n_TOF pour faire cette mesure. Pour utiliser la méthode développée dans ce travail à n_TOF, il est nécessaire d'améliorer la collimation du faisceau. Une partie de la solution du problème du flash se trouve en l'utilisation des détecteurs segmentés ou modulaires. Le dépôt d'énergie par le flash dans les segments individuels d'un détecteur segmenté est moins grand que celui dans un détecteur conventionnel avec une efficacité égale à l'efficacité totale du détecteur segmenté.

Appendices

7 Appendices

7.1 Relation temps de vol – énergie des neutrons

Le tableau suivant résume la relation temps de vol (t_n) – énergie des neutrons (E_n) pour les faisceaux à Geel et à n_TOF. La base de vol à Geel est de 198,6 m, tandis que celle à n_TOF est de 185 m. Le temps de vol du flash est noté dans la deuxième ligne. La séparation en temps par rapport au flash (Δt) est, aussi, notée. Cette dernière quantité est importante pour la considération de l'empilement des impulsions causé par le flash.

Tableau 7.1 : Relation temps de vol (t_n) – énergie des neutrons (E_n) pour les faisceaux à Geel et à n_TOF.

E_n [MeV]	t_n @ 185m [μ s]	Δt @ 185m [μ s]	t_n @ 199m [μ s]	Δt @ 199m [μ s]
le flash	0,617	-	0,662	-
250	1,006	0,389	1,080	0,418
30	2,50	1,88	2,68	2,02
20	3,04	2,42	3,26	2,60
15	3,49	2,88	3,75	3,09
6	5,48	4,87	5,89	5,23
1	13,4	12,8	14,4	13,7

7.2 Défaut balistique résiduel dans le cas général

Dans le paragraphe 4.5.2 (*Calcul de l'énergie déposée – élimination du défaut balistique*), nous avons estimé le défaut balistique sur l'exemple d'un courant de collection constant pendant la collection des charges et nul avant et après. Après l'application de l'algorithme de l'élimination du défaut balistique, le défaut balistique résiduel dû à l'approximation (4.19) est $\frac{1}{2} \frac{T_s}{\tau}$. La dispersion de cette valeur est nulle. Donc, dans le cas d'un courant constant, la contribution du défaut balistique à la dispersion en énergie γ est éliminée.

En réalité, le courant de collection est une fonction complexe qui varie d'une impulsion à l'autre. Elle peut être approximée par une somme de fonctions constantes et d'une durée égale à la période de l'échantillonnage (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, haut),

$$i_k(t) = \begin{cases} 0 & ; & t < kT_s \\ \langle i \rangle_k & ; & kT_s < t < (k+1)T_s \\ 0 & ; & (k+1)T_s < t \end{cases} \quad (\text{a7.1})$$

$$I(t) = \sum_k i_k(t)$$

La constante $\langle i \rangle_k$ représente la valeur moyenne du courant réel dans l'intervalle k .

Le signal à la sortie du préamplificateur est, alors, égal à la somme des signaux qui correspondraient aux éléments de la somme (a7.1).

$$v_o(t) = \sum_k v_k(t) \quad (\text{a7.2})$$

Puisque le filtre de l'élimination de la décroissance exponentielle est linéaire, sa réponse s_n au signal $v_o(t)$ est égale à la somme des réponses aux signaux $v_k(t)$. Supposons que l'intégral en temps de la somme (a7.1) est égal à l'unité, comme dans le paragraphe 4.5.2. La hauteur de l'impulsion après l'application du filtre est, alors, égale à la valeur exprimée dans l'équation (4.24). Ce résultat est, donc, valide avec l'approximation (a7.1), qui est plus proche à la réalité. La dispersion des hauteurs des impulsions après l'application du filtre provient, donc, des variations de la forme de la montée de l'impulsion sur l'échelle d'une période de l'échantillonnage.

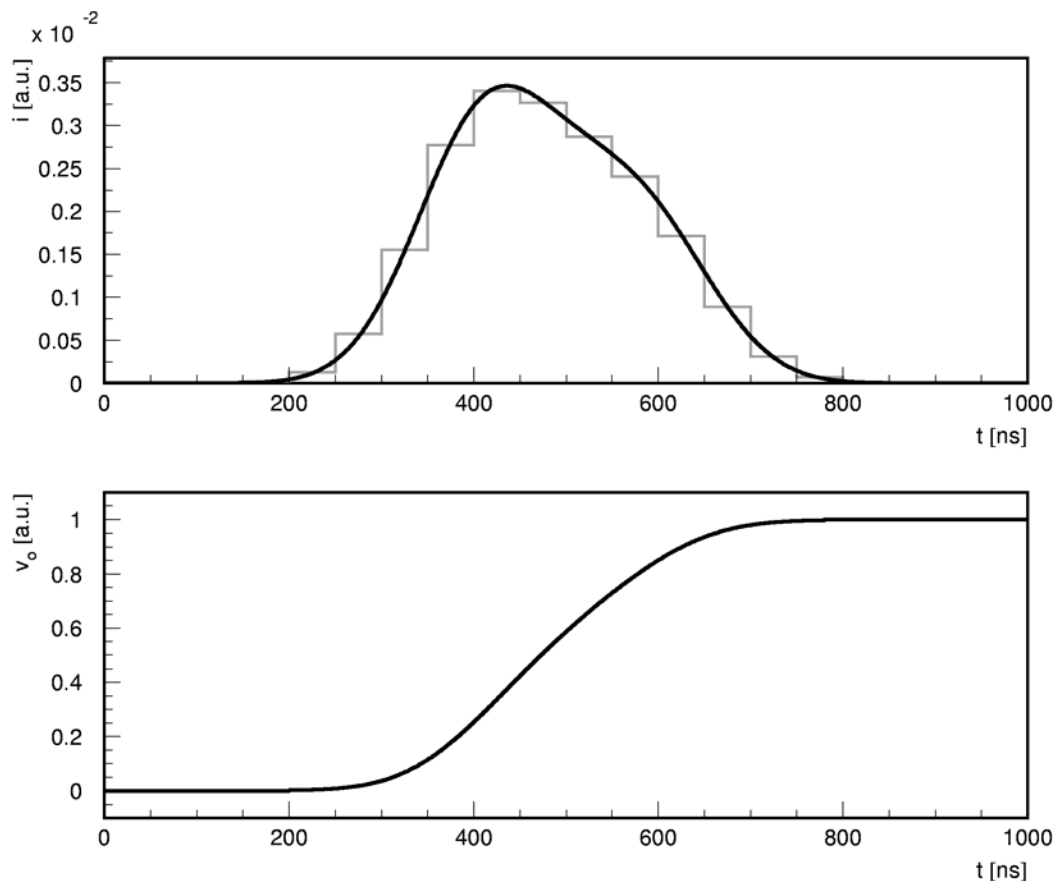


Figure 7.1 : Illustration du courant de collection des charges (haut, ligne noire) et de son approximation par une combinaison des fonctions constantes (haut, ligne grise). Signal à la sortie du préamplificateur (bas).

Une fois le signal échantillonné, l'information de sa valeur entre les points de l'échantillonnage est perdue. La seule information retenue est la valeur instantanée du signal aux moments de l'échantillonnage. Pourtant, la valeur du signal entre les points de l'échantillonnage est limitée par la condition que le signal ne décroisse jamais plus vite que ce qui est permis par le temps de décroissance τ . La figure 7.2 illustre cette idée sur l'exemple de deux échantillons v_{k-1} et v_k dans la montée de l'impulsion ($v_{k-1} < v_k$). Les lignes discontinues représentent la limite supérieure et la limite inférieure sur le signal entre les points v_{k-1} et v_k . Le signal réel doit être une fonction intermédiaire entre ces deux extrêmes, comme celle représentée par la ligne solide.

La limite inférieure est représentée par l'expression (4.19) par laquelle nous avons approximé le signal entre les points v_{k-1} et v_k dans le paragraphe 4.5.3. Dans la figure 7.2, cette fonction est représentée par la ligne discontinue au-dessous de la ligne solide.

Nous la répétons ici :

$$v_{<}(t) \approx v_{k-1} e^{-\frac{t-(k-1)T_s}{\tau}} \tag{a7.3}$$

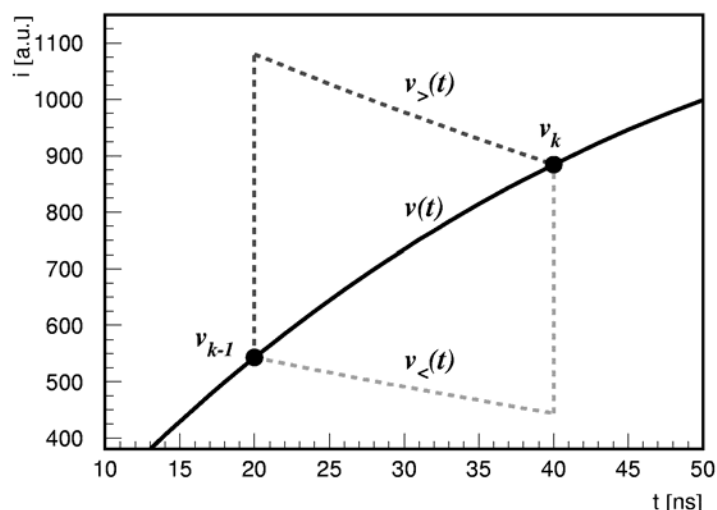


Figure 7.2 : Illustration des limites physiques sur le signal entre deux échantillons donnés v_{k-1} et v_k . Les lignes discontinues représentent la limite supérieure et la limite inférieure sur le signal. La ligne solide représente un exemple du signal réel.

Avec cette approximation, la hauteur de l'impulsion obtenue est (4.24) :

$$s_n \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{T_s}{\tau} ; \left(n > \frac{a}{T_s} \right) ; \quad (\text{a7.4})$$

La limite supérieure du signal entre les points v_{k-1} et v_k est,

$$v_{>}(t) \approx v_k e^{-\frac{t-kT_s}{\tau}} \quad (\text{a7.5})$$

La limite supérieure (a7.5) du signal est représentée par la ligne discontinue au-dessus de la ligne solide.

Si dans l'équation (4.19), au lieu de sous-estimer le signal par l'expression (a7.3), nous l'avons surestimé par l'expression (a7.5), nous aurions obtenu pour la hauteur de l'impulsion,

$$s_n \approx 1 + \frac{1}{2} \frac{T_s}{\tau} ; \left(n > \frac{a}{T_s} \right) \quad (\text{a7.6})$$

On voit que l'estimation de la hauteur de l'impulsion diffère de $\frac{T_s}{\tau}$ entre les deux cas extrêmes. Les cas réels se trouvent entre ces deux extrêmes. Les variations des signaux réels sur l'échelle d'une période de l'échantillonnage induisent une dispersion relative inférieure à $\frac{T_s}{\tau}$.

Rajoutons encore que des signaux proches aux extrêmes (a7.3) et (a7.5) ne sont pas possibles dans la réalité, puisque la bande passante du préamplificateur ne permet pas de telles

discontinuités dans le signal. Les signaux réels sont toujours beaucoup plus proches du signal intermédiaire illustré dans la figure 7.2. De même, la dispersion réelle reste très inférieure à $\frac{T_s}{\tau}$.

7.3 Incertitude du rapport des taux d'auto-absorption

Dans la section 5.3.3, lors du calcul du facteur de l'auto-absorption du rayonnement γ dans la cible, les approximations suivantes ont été faites :

- L'atténuation du faisceau dans la cible a été négligée.
- On a supposé que tous les rayons γ détectés sont émis sous l'angle de 135° .
- Le parcours plus court des rayons émis de la région proche au bord de la cible du côté détecteur a été négligé.

Les erreurs du rapport des facteurs de l'auto-absorption produites par la première et la troisième approximation vont être estimées.

7.3.1 Atténuation du faisceau

L'atténuation du faisceau au bout du parcours x dans la cible est donnée par l'expression :

$$I(x) = I_0 e^{-\sigma n x} \quad (\text{a7.7})$$

Ici, σ est la section efficace non élastique pour le neutron de l'énergie considérée, et n est la densité spatiale des atomes de plomb. Pour rendre compte de l'atténuation du faisceau lors du calcul du facteur de l'auto-absorption, il faut introduire le facteur $e^{-\sigma n x}$ dans la fonction de la distribution dans l'équation (5.18) :

$$k_{E\gamma} = \frac{\int_0^h e^{-\sigma n x} e^{-\frac{\mu_{E\gamma} x}{\cos \alpha}} dx}{\int_0^h dx} \quad (\text{a7.8})$$

Selon l'évaluation ENDF, la section efficace non élastique pour le neutron dans le plomb, dans la région 0,3 – 20 MeV ne dépasse pas 3 barn. Pour estimer l'erreur du rapport $\frac{k_{2614}}{k_{E\gamma}}$, la valeur de 3 barn va être utilisée pour toute la gamme d'énergie de neutrons. Le tableau 7.2 compare les facteurs d'auto-absorption pour plusieurs énergies γ calculés selon l'équation (5.18) et (a7.8). Les valeurs du rapport $\frac{k_{2614}}{k_{E\gamma}}$ correspondant sont comparées, aussi, et la différence relative entre ces deux valeurs est donnée dans la dernière colonne.

Tableau 7.2 : Comparaison des facteurs d'auto-absorption, calculés avec ou sans prise en compte de l'atténuation du faisceau, pour plusieurs énergies γ .

E_γ [keV]	k_{E_γ} (5.18)	k_{E_γ} (a7.8)	$\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}}$ (5.18)	$\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}}$ (a7.8)	$\Delta_{\text{rel}}\left(\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}}\right)$ [%]
516,2	0,519	0,507	1,572	1,566	0,4
803,1	0,673	0,656	1,212	1,210	0,2
1466,7	0,783	0,762	1,0421	1,0420	0,01
2614,5	0,816	0,794	1	1	-

Le rapport $\frac{k_{2614}}{k_{E_\gamma}}$ est très peu sensible à l'atténuation du faisceau dans la cible.

7.3.2 Effet de bord

Le volume total de la cible est $V_{\text{tot}} = hr^2\pi = 16,96 \text{ cm}^3$. Le volume de la région où le parcours du rayonnement γ est raccourci peut être calculé comme suit (Figure 7.3):

$$V_\Delta = \int_0^h dx \int_{-r}^r dy \int_{\sqrt{r^2-y^2}-x}^{\sqrt{r^2-y^2}} dz \quad (\text{a7.9})$$

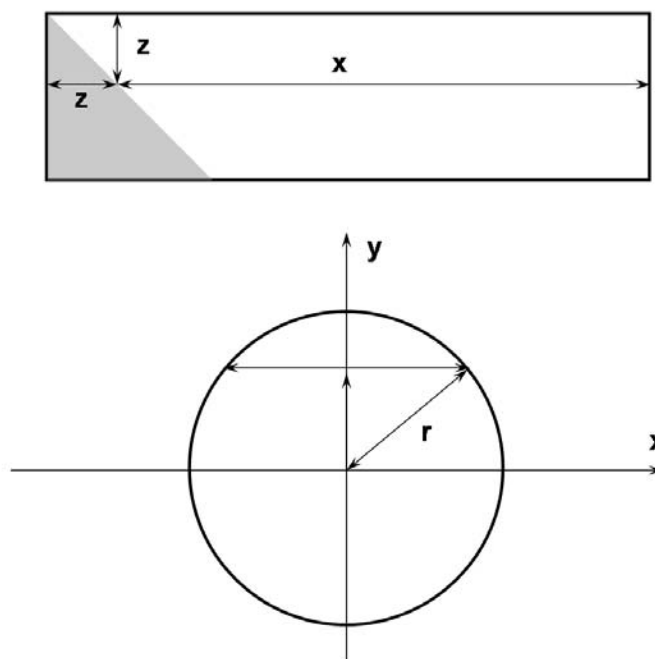


Figure 7.3 : Illustration du calcul du volume de la région de bord où le parcours du rayonnement γ est raccourci.

La solution de l'intégrale (a7.9) est $V_\Delta = rh^2 = 1,08 \text{ cm}^3$. Supposons que les rayons γ qui partent de cette région ne subissent aucune absorption. Ainsi l'erreur produite lorsqu'on

néglige cette région est surestimée. Le volume V_{Δ} représente 6,4% du volume total de la cible. Dans 93,6% du volume, le facteur de l'auto-absorption est k , comme calculé selon l'équation (5.18). Dans 6,4%, le facteur est 1. Effectivement, si on suppose que l'intensité du faisceau est uniforme sur toute la surface de la cible, $k^*=0,936k + 0,064$. Le tableau 7.3 compare la valeur de k à celle de k^* , ainsi que les rapports correspondants pour plusieurs transitions, et cite l'erreur relative du rapport.

Tableau 7.3 : Comparaison des facteurs d'auto-absorption, calculés avec ou sans prise en compte de l'effet de bord, pour les transitions γ étudiées dans ce travail.

E_{γ} [keV]	$k_{E_{\gamma}}$	$k_{E_{\gamma}}^*$	$\frac{k_{2614}}{k_{E_{\gamma}}}$	$\frac{k_{2614}^*}{k_{E_{\gamma}}^*}$	$\Delta_{\text{rel}}\left(\frac{k_{2614}}{k_{E_{\gamma}}}\right)$ [%]
516,2	0,519	0,550	1,572	1,506	4,4
537,4	0,533	0,563	1,531	1,471	4,1
569,7	0,558	0,586	1,462	1,412	3,6
583,2	0,568	0,596	1,437	1,390	3,4
663,7	0,609	0,634	1,340	1,306	2,6
803,1	0,673	0,694	1,212	1,193	1,6
881	0,693	0,713	1,177	1,162	1,4
897,8	0,697	0,716	1,171	1,155	1,3
1466,7	0,783	0,797	1,042	1,039	0,3
1703,5	0,795	0,808	1,026	1,024	0,2
2614,5	0,816	0,828	1	1	0

7.3.3 Incertitude totale

Le rapport des facteurs d'auto-absorption est assez peu sensible aux approximations faites dans le calcul simple. Si on suppose que l'erreur produite en négligeant l'angle solide du détecteur et de la cible se comporte d'une manière similaire, il semble juste de prendre la surestimation de l'erreur relative produite en négligeant l'effet de bord comme l'erreur totale relative du rapport.

7.4 Valeurs numériques des sections efficaces mesurées dans ce travail

Les tableaux ci-dessous contiennent les valeurs numériques des sections efficaces mesurées dans ce travail. Les énergies des neutrons citées correspondent au centre de l'intervalle d'énergie des neutrons dans lequel la section efficace a été intégrée.

7.4.1 Réactions menant vers le noyau ^{208}Pb

Tableau 7.4 : Valeurs numériques de la section efficace isotopique pour la production de la transition du premier état excité de ^{208}Pb et de la section efficace totale pour la diffusion inélastique des neutrons sur ^{208}Pb .

$E_{n,\min}$ [MeV]	$E_{n,\max}$ [MeV]	$^{208}\text{Pb}(n,n'\gamma_{2614})$ [barn]	$^{208}\text{Pb}(n,inl)$ [barn]
0,3	0,5	0	0
0,5	0,8	0	0
0,8	1,0	0	0
1,0	1,5	0	0
1,5	2,0	0	0
2,0	2,5	0	0
2,5	3,0	0,204(30)	0,204(30)
3,0	3,5	0,648(92)	0,648(92)
3,5	4,0	1,06(15)	1,06(15)
4,0	5,0	1,73(22)	1,94(24)
5,0	6,0	2,11(29)	2,48(34)
6,0	7,0	1,98(28)	2,32(33)
7,0	8,0	2,14(33)	2,46(38)
8,0	9,0	1,73(30)	1,93(34)
9,0	10,0	1,12(26)	1,23(28)
10,0	11,0	0,71(23)	0,78(25)
11,0	12,0	0,56(23)	0,61(25)
12,0	13,0	0,29(14)	0,32(16)
13,0	15,0	0,32(16)	0,36(18)
15,0	17,0	0,22(16)	0,25(18)
17,0	20,0	0,22(12)	0,24(14)

7.4.2 Réactions menant vers le noyau ^{206}Pb

Tableau 7.5 : Valeurs numériques de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{206}Pb dans le plomb naturel et de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{206}Pb par la diffusion inélastique et par les réactions $^{207}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ et $^{208}\text{Pb}(n,3n\gamma)$.

$E_{n,\min}$ [MeV]	$E_{n,\max}$ [MeV]	$^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{803})$ [barn]	$^{206}\text{Pb}(n,n'\gamma_{803})$ [barn]	$^{207}\text{Pb}(n,2n\gamma_{803})$ [barn]	$^{208}\text{Pb}(n,3n\gamma_{803})$ [barn]
0,3	0,5	0	0	0	0
0,5	0,8	0	0	0	0
0,8	1,0	0,0570(96)	0,236(40)	0	0
1,0	1,5	0,136(19)	0,566(80)	0	0
1,5	2,0	0,224(32)	0,93(13)	0	0
2,0	2,5	0,349(52)	1,45(22)	0	0

2,5	3,0	0,442(70)	1,83(29)	0	0
3,0	3,5	0,487(81)	2,02(34)	0	0
3,5	4,0	0,440(77)	1,83(32)	0	0
4,0	5,0	0,514(85)	2,13(35)	0	0
5,0	6,0	0,481(85)	1,99(35)	0	0
6,0	7,0	0,441(80)	1,83(33)	0	0
7,0	8,0	0,422(82)	1,75(34)	0	0
8,0	9,0	0,422(89)	1,48(31)	0,298(63)	0
9,0	10,0	0,421(98)	0,98(23)	0,84(20)	0
10,0	11,0	0,42(13)	0,62(19)	1,20(37)	0
11,0	12,0	0,41(15)	0,41(15)	1,41(51)	0
12,0	13,0	0,34(13)	0,26(10)	1,26(47)	0
13,0	15,0	0,269(94)	0,171(60)	1,03(36)	0
15,0	17,0	0,38(16)	0,230(97)	1,45(61)	0,0117(49)
17,0	20,0	0,37(14)	0,149(56)	0,62(23)	0,38(14)

Tableau 7.6 : Valeurs numériques de la section efficace pour la réaction $^{207}\text{Pb}(n,2n)$

$E_{n,\text{min}}$ [MeV]	$E_{n,\text{max}}$ [MeV]	$^{207}\text{Pb}(n,2n)$ [barn]
8,0	9,0	0,69(15)
9,0	10,0	1,21(28)
10,0	11,0	1,73(53)
11,0	12,0	2,17(78)
12,0	13,0	2,08(78)
13,0	15,0	1,85(64)
15,0	17,0	2,87(121)
17,0	20,0	1,44(54)

Tableau 7.7 : Valeurs numériques de la section efficace pour la production de la transition de 663,7, 1466,7, 881,0 et 537,4 keV dans le plomb naturel.

$E_{n,\text{min}}$ [MeV]	$E_{n,\text{max}}$ [MeV]	$^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{664})$ [barn]	$^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{1467})$ [barn]	$^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{881})$ [barn]	$^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{537})$ [barn]
0,3	0,5	0	0	0	0
0,5	0,8	0	0	0	0
0,8	1,0	0	0	0	0
1,0	1,5	0	0	0	0,0066(22)
1,5	2,0	0,0300(79)	0,0115(25)	0,0065(25)	0,054(12)
2,0	2,5	0,037(10)	0,0185(42)	0,0274(66)	0,096(21)
2,5	3,0	0,046(12)	0,0179(42)	0,0398(87)	0,124(27)

3,0	3,5	0,044(15)	0,0165(51)	0,043(11)	0,137(32)
3,5	4,0	0,042(16)	0,0145(56)	0,065(16)	0,135(33)
4,0	5,0	0,034(11)	0,0193(29)	0,086(18)	0,159(35)
5,0	6,0	0,034(14)	0,0187(72)	0,096(24)	0,151(37)
6,0	7,0	0,025(17)	0,0152(77)	0,094(25)	0,137(37)
7,0	8,0	0,040(23)	0,024(12)	0,104(29)	0,138(41)
8,0	9,0		0,0097(80)	0,103(34)	0,120(40)
9,0	10,0		0,0070(71)	0,091(29)	0,135(43)
10,0	11,0		0,019(15)	0,101(46)	0,170(70)
11,0	12,0				0,175(83)
12,0	13,0				0,110(57)

Tableau 7.8 : Valeurs numériques de la section efficace pour la production de la transition de 1703,5 keV dans le plomb naturel.

$E_{n,\min}$ [MeV]	$E_{n,\max}$ [MeV]	${}^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{1703})$ [barn]
0,3	0,5	0
0,5	0,8	0
0,8	1,0	0
1,0	1,5	0
1,5	2,0	0,0074(18)
2,0	2,5	0,0333(65)
2,5	3,0	0,0311(71)
3,0	3,5	0,0413(98)
3,5	4,0	0,0274(83)
4,0	5,0	0,0327(75)
5,0	6,0	0,019(10)
6,0	7,0	0,019(12)

7.4.3 Réactions menant vers le noyau ^{207}Pb

Tableau 7.9 : Valeurs numériques de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{207}Pb dans le plomb naturel, de la section efficace pour la production de la transition du premier état excité de ^{207}Pb par la diffusion inélastique et par la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ et de la réaction $^{208}\text{Pb}(n,2n)$.

$E_{n,\min}$ [MeV]	$E_{n,\max}$ [MeV]	$^{\text{nat}}\text{Pb}(n,xn\gamma_{570})$ [barn]	$^{207}\text{Pb}(n,n'\gamma_{570})$ [barn]	$^{208}\text{Pb}(n,2n\gamma_{570})$ [barn]	$^{208}\text{Pb}(n,2n)$ [barn]
0,3	0,5	0	0	0	0
0,5	0,8	0,0262(53)	0,119(24)	0	0
0,8	1,0	0,084(16)	0,382(74)	0	0
1,0	1,5	0,092(17)	0,415(75)	0	0
1,5	2,0	0,113(20)	0,511(88)	0	0
2,0	2,5	0,176(32)	0,80(14)	0	0
2,5	3,0	0,225(42)	1,02(19)	0	0
3,0	3,5	0,256(50)	1,16(23)	0	0
3,5	4,0	0,239(48)	1,08(22)	0	0
4,0	5,0	0,254(49)	1,15(22)	0	0
5,0	6,0	0,270(56)	1,22(26)	0	0
6,0	7,0	0,240(53)	1,09(24)	0	0
7,0	8,0	0,223(52)	1,01(24)	0	0
8,0	9,0	0,253(62)	0,90(22)	0,104(26)	0,382(94)
9,0	10,0	0,322(86)	0,37(10)	0,46(12)	0,88(23)
10,0	11,0	0,47(15)	0,243(78)	0,79(25)	1,66(53)
11,0	12,0	0,47(18)	0,161(61)	0,83(31)	2,05(77)
12,0	13,0	0,43(16)	0,118(45)	0,77(29)	2,07(78)
13,0	15,0	0,29(11)	0,069(25)	0,53(19)	1,52(56)
15,0	17,0	0,37(16)	0,082(37)	0,67(30)	2,06(92)
17,0	20,0	0,171(75)	0,057(25)	0,30(13)	1,19(52)

*Imprimé à l'Institut de Recherches Subatomiques
23, rue du Loess
B.P.28 – 67037 Strasbourg Cedex 2*