



DIRECTION DES APPLICATIONS MILITAIRES

CEA
Date: 18/11/88
N°: FR9900288
Destination: I+D

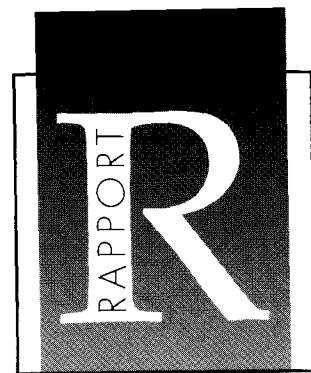
MESURE INTÉGRALE DE LA PRODUCTION DE NEUTRONS DANS DES CIBLES DE SPALLATION.

par

**J.FRÉHAUT, D.DENEUVILLE, X.LEDOUX, J.P.LOCHARD,
J.L.LONGUET, E.PETIBON, K.ALICK, D.BOWNAN,
F.CVERNA, N.S.P.KING, G.L.MORGAN, G.GREENE,
A.HANSON, L.SNEAD, G.HENRY, R.THOMPSON, T.WARD**

DIRECTION DES APPLICATIONS MILITAIRES
DIRECTION DES RECHERCHES EN ILE-DE-FRANCE
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE THÉORIQUE
ET APPLIQUÉE

CEA / Bruyères -le- Châtel



**RAPPORT
CEA-R-5809**

DIRECTION DE L'INFORMATION
SCIENTIFIQUE ET TECHNIQUE

CEA/SACLAY 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX FRANCE

1998

RAPPORT CEA-R-5809 - J. FRÉHAUT, D. DENEUVILLE, X. LEDOUX, J.P. LOCHARD, J.L. LONGUET, E. PETIBON, K. ALRICK, D. BOWNAN, F. CVERNA, N.S.P. KING, G.L. MORGAN, G. GREENE, A. HANSON, L. SNEAD, G. HENRY, R. THOMPSON, T. WARD

"MESURE INTÉGRALE DE LA PRODUCTION DE NEUTRONS DANS DES CIBLES DE SPALLATION"

Sommaire - La production de neutrons dans des cibles épaisses de différents diamètres de fer, tungstène et plomb caractéristiques des systèmes à spallation a été mesurée auprès de l'accélérateur SATURNE pour des protons incidents d'énergie comprise entre 400 MeV et 2 GeV. Les calculs à l'aide du système de codes TIERCE sont en bon accord avec l'expérience pour la cible de fer et les cibles de plomb et de tungstène de grand diamètre. Ils surestiment l'expérience pour les cibles de plomb et de tungstène de diamètre ≤ 20 cm.

1998 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

RAPPORT CEA-R-5809 - J. FRÉHAUT, D. DENEUVILLE, X. LEDOUX, J.P. LOCHARD, J.L. LONGUET, E. PETIBON, K. ALRICK, D. BOWNAN, F. CVERNA, N.S.P. KING, G.L. MORGAN, G. GREENE, A. HANSON, L. SNEAD, G. HENRY, R. THOMPSON, T. WARD

"INTEGRAL MEASUREMENTS OF NEUTRON PRODUCTION IN SPALLATION TARGETS"

Summary - Measurements of neutron production for thick iron, tungsten and lead targets of different diameter prototypic for spallation systems have been made at SATURNE in an incident proton energy range from 400 MeV to 2 GeV. TIERCE code system calculations are in good agreement with experiment for iron and large diameter tungsten and lead targets. They overestimate the measured neutron production for tungsten and lead targets of diameter ≤ 20 cm.

1998 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

- Rapport CEA-R-5809-

CEA Bruyères-le-Châtel
Direction des Applications Militaires
Directions des Recherches en Ile-de-France
Département de Physique Théorique et Appliquée

MESURE INTÉGRALE DE LA PRODUCTION DE NEUTRONS
DANS DES CIBLES DE SPALLATION.

par

J. FRÉHAUT, D. DENEUVILLE, X. LEDOUX, J.P. LOCHARD, J.L. LONGUET, E. PETIBON
K. ALRICK, D. BOWNAN, F. CVERNA, N.S.P. KING, G.L. MORGAN (1)
G. GREENE, A. HANSON, L. SNEAD (2)
G. HENRY(3)
R. THOMPSON (4)
T. WARD (5)

(1) Los Alamos National Laboratory
(2) Brookhaven National Laboratory
(3) Lawrence Livermore National Laboratory
(4) Bechtel, Las Vegas
(5) Department of Energy

- Juillet 1998 -

MESURE INTEGRALE DE LA PRODUCTION DE NEUTRONS DANS DES CIBLES DE SPALLATION

J. Fréhaut, D. Deneuille, X. Ledoux, J. P. Lochard, J. L. Longuet, E. Petibon, DPTA/SPN
K. Alrick, D. Bowman, F. Cverna, N. S. P. King, G. L. Morgan, Los Alamos National Laboratory
G. Greene, L. Snead, Brookhaven National Laboratory
G. Henry, Lawrence Livermore National Laboratory
R. Thompson, Bechtel, Las Vegas
T. Ward, Department Of Energy

Résumé

La production de neutrons dans des cibles épaisses de différents diamètres de fer, tungstène et plomb caractéristiques des systèmes à spallation a été mesurée auprès de l'accélérateur SATURNE pour des protons incidents d'énergie comprise entre 400 MeV et 2 GeV. Les calculs à l'aide du système de codes TIERCE sont en bon accord avec l'expérience pour la cible de fer et les cibles de plomb et de tungstène de grand diamètre. Ils surestiment l'expérience pour les cibles de plomb et de tungstène de diamètre ≤ 20 cm.

Abstract

Measurements of neutron production for thick iron, tungsten and lead targets of different diameter prototypic for spallation systems have been made at SATURNE in an incident proton energy range from 400 MeV to 2 GeV. TIERCE code system calculations are in good agreement with experiment for iron and large diameter tungsten and lead targets. They overestimate the measured neutron production for tungsten and lead targets of diameter ≤ 20 cm.

I - INTRODUCTION

La spallation est une interaction entre un noyau cible et une particule incidente, le plus souvent un proton, d'énergie de l'ordre de quelques centaines de MeV à quelques GeV. A ces énergies, la longueur d'onde associée à la particule incidente est de l'ordre de grandeur de la dimension d'un nucléon dans le noyau. Le projectile interagit donc avec les nucléons individuels du noyau selon les lois de la diffusion élastique et inélastique nucléon-nucléon, avec des corrections liées au principe d'exclusion de Pauli. Au cours de l'interaction, plusieurs nucléons peuvent être éjectés du noyau, dont certains avec une énergie importante, suffisante pour induire de nouvelles réactions de spallation avec les noyaux voisins. Le noyau cible est laissé dans un état excité. Il se désexcite en émettant des particules de basse énergie (quelques MeV tout au plus), selon le mécanisme d'évaporation; Ces particules sont surtout des neutrons, l'émission de particules chargées est limitée par la présence de la barrière coulombienne.

Typiquement, des protons de 1 GeV qui interagissent avec une cible de plomb de 50 cm d'épaisseur induiront des réactions de spallation dans une proportion de 95%. Avec une cible de telles dimensions, les particules émises lors d'une première spallation vont pouvoir créer elles-mêmes des réactions de spallation, et des réactions (n, xn) pour les neutrons, quand leur énergie est suffisante. Cela est d'ailleurs favorisé en donnant à la cible des dimensions latérales comparables à son épaisseur. On tire ainsi un profit maximum de l'énergie disponible pour créer des neutrons. Un proton de 1 GeV peut produire une trentaine de neutrons dans une cible épaisse de plomb.

La spallation induite par protons dans des cibles de masse atomique élevée est l'un des mécanismes les plus efficaces pour produire des neutrons. Grâce au développement d'accélérateurs de protons de haute intensité (quelques centaines de mA sont aujourd'hui envisagés), elle offre une alternative plus sûre que la fission pour de nouvelles applications telles que l'incinération des déchets radioactifs, la production d'énergie dans des réacteurs hybrides avec le développement de nouvelles filières, la production de tritium,

Dans un calcul de production de neutrons dans une cible épaisse, il est nécessaire de suivre toutes les particules secondaires créées, en plus des particules incidentes : C'est la notion de transport, qui décrit «l'histoire» de chaque particule dans le milieu, et que l'on peut poursuivre jusqu'au moment où les particules (essentiellement des neutrons) quittent la cible ou y sont capturées. En pratique, on étend souvent le transport à la zone de couverture de la cible, dans laquelle les neutrons sont utilisés pour une application spécifique : C'est à ce niveau que l'on peut juger des performances réelles d'une application.

Une cible opérationnelle (avec sa couverture) comporte également des éléments de structure et un circuit de refroidissement dont l'incidence sur les performances est loin d'être négligeable.

La conception et l'optimisation des cibles de spallation, qui sont donc très complexes, nécessitent des simulations numériques multiples. Il ne s'agit plus maintenant d'étudier un phénomène physique, mais de fournir des réponses quantitatives qui vont guider la conception des cibles et définir les performances ultimes. Dans le passage de la recherche aux applications, il y a un aspect économique important. Les codes doivent être complets et inclure suffisamment de physique pour fournir des résultats quantitatifs fiables ; mais ils doivent aussi être suffisamment simples pour limiter les temps de calcul et permettre ainsi de multiplier les simulations.

Les différents systèmes de codes actuellement développés dans le monde sont tous basés sur les mêmes approches physiques. Au CEA/DAM, nous utilisons le système TIERCE pour les études préliminaires du programme TRISPAL (production de tritium par spallation). Un ensemble de codes équivalent, LAHET, a été mis en place à Los Alamos. Les deux systèmes font appel aux mêmes codes de base, notamment HETC pour la partie spallation. Les différences actuelles résultent des modifications et des évolutions réalisées par chaque laboratoire en vue d'améliorer son outil.

Un effort important a été consacré ces dernières années au CEA afin d'acquérir une base de données expérimentales variées pour assurer une validation optimale des codes : Mesures doublement différentielles, en angle et en énergie, de la production de neutrons dans des cibles minces et épaisses de différentes natures [1], mesures de résiduels de spallation sur cibles minces et épaisses [2]. Nous présentons ici des mesures plus intégrales de la production totale de neutrons dans des cibles épaisses.

Le laboratoire de Los Alamos a réalisé de telles mesures en 1993 sur différentes cibles irradiées par les protons de 800 MeV de LANSCE, dans le cadre des études ATW (Accelerator Transmutation of Waste) [3]. Ces études sont depuis en sommeil, mais le programme APT (Accelerator Production of Tritium) joue maintenant un rôle moteur important. Dans ce cadre, il apparaissait nécessaire d'élargir la gamme d'énergie des protons incidents. Des besoins similaires se sont dégagés dans les études TRISPAL. Un accord de coopération entre les projets APT et TRISPAL ayant été mis en place, ces mesures ont été réalisées en commun auprès de l'accélérateur SATURNE.

Le détecteur de neutrons de Los Alamos de 1993, le bain de sulfate de manganèse, a été installé à SATURNE au printemps 1996. Les mesures ont eu lieu en mai-juin et en octobre 1996. Le Comité d'Expériences n'ayant pas considéré cette expérience comme une mesure de physique, le faisceau a été payé, y compris pour les phases de mise au point. Dans ces conditions, la qualité des prises de mesures n'a pas toujours été idéale, en particulier en début d'expérience.

Chaque laboratoire a récupéré les données expérimentales de base. En octobre, les mesures d'activité ont été réalisées en parallèle avec des détecteurs germanium de Los Alamos et de PN, tandis que seul le détecteur de PN avait été utilisé en mai-juin. Ce rapport présente les résultats du dépouillement et des calculs effectués à PN. C'est un rapport technique, qui donne un maximum de détails sur les procédures utilisées et tous les résultats intermédiaires.

II - CHOIX DU DETECTEUR

II.1 - Généralités

Soit une source ponctuelle de neutrons d'activité S entourée d'un grand volume de milieu ralentisseur dont la section efficace de capture (disparition du neutron) est négligeable en dehors du domaine thermique. On peut alors écrire :

$$S = 4 \pi \int_0^{\infty} q(E, r) r^2 dr,$$

avec $q(E, r)$ = nombre de neutrons par unité de temps et de volume qui atteignent l'énergie E à la distance r de la source (on suppose implicitement que cette énergie E est inférieure à l'énergie des neutrons de la source). Si l'on considère un détecteur sensible uniquement aux neutrons d'énergie E , son activité $A(r)$ sera proportionnelle au nombre de neutrons qui atteignent cette énergie E par unité de temps et de volume :

$$q(E, r) = k A(r), \text{ donc } S = 4 \pi k \int_0^{\infty} A(r) r^2 dr \quad (1)$$

En pratique, on dispose de plusieurs types de détecteurs de bonne efficacité de détection sensibles uniquement aux neutrons thermiques, avec lesquels on peut mesurer la distribution $A(r)$. La constante k peut être déterminée en utilisant une source étalon de référence. Cette constante est indépendante de l'énergie initiale des neutrons, et la source étalon peut très bien avoir un spectre en énergie de neutrons complètement différent de celui de la source à mesurer. La seule condition est alors que le volume du milieu ralentisseur soit suffisant pour thermaliser tous les neutrons.

II.2 - Types de détecteurs

Les compteurs à ^3He ou à BF_3 sont des détecteurs possibles pour les neutrons thermiques. Ils sont basés sur la détection des particules chargées des réactions $^3\text{He}(n,p)\text{T}$ et $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. Ils ont l'avantage d'être peu sensibles au rayonnement gamma. Ils sont généralement utilisés en géométrie cylindrique, disposés en couronne autour de la source de neutrons, dans un massif ralentisseur de paraffine ou de polyéthylène. Dans ce cas, on ne mesure pas la distribution $A(r)$ dans sa totalité, mais, au mieux, à quelques valeurs particulières de r . Le principe de la mesure reste valable, à condition d'utiliser une source étalon de spectre en énergie de neutrons identique à celui de la source à mesurer. Ce type de détecteur a été largement utilisé pour l'étude des neutrons de fission.

Une variante de cette méthode consiste à utiliser la capture neutronique dans de petits échantillons disposés à différentes positions dans le milieu ralentisseur. Si la période des nucléides formés est bien adaptée au temps d'irradiation, on peut remonter a posteriori par spectrométrie gamma à l'intégrale sur ce temps d'irradiation de $A(r)$ à la position de l'échantillon.

Une autre possibilité est offerte par les scintillateurs liquides hydrogénés contenant du gadolinium en solution. Après thermalisation, le neutron est capturé par un noyau de gadolinium. Les rayons gamma de capture qui en résultent produisent des scintillations qui sont détectées par des photomultiplicateurs placés en périphérie du scintillateur. La capture volumique réalise directement l'intégration de la relation (1). Cela n'est plus vrai au niveau de la collection lumineuse, car le milieu est auto-absorbant. Comme précédemment, la source étalon doit donc avoir le même spectre en énergie que la source à mesurer. De plus, on ne peut utiliser qu'une épaisseur limitée de ralentisseur, ce qui impose des contraintes sur l'énergie maximum des neutrons que l'on peut détecter. Il est bien adapté pour la détection des neutrons d'évaporation, et son efficacité de détection élevée en a fait un détecteur de choix pour l'étude de la multiplicité des neutrons de fission.

Le bain de sulfate de manganèse est en principe l'un des meilleurs détecteurs. Le milieu ralentisseur est de l'eau contenant du manganèse en solution sous forme de sulfate. La capture des neutrons thermiques par ^{55}Mn est donc volumique. En mélangeant cette eau, on obtient une concentration uniforme en ^{56}Mn , de sorte qu'un petit échantillon est représentatif de la totalité et satisfait donc à la relation (1). Le nombre de noyaux de ^{56}Mn formés, de période 2,56 heures, est alors obtenu par spectrométrie gamma sur cet échantillon. Dans ce cas, la mesure s'effectue en deux temps : une phase de production de neutrons, avec une accumulation des

ENCADRE 1**AGE DE FERMI**

On considère un milieu qui ne capture pas les neutrons en dehors du domaine thermique, dans lequel le ralentissement se fait essentiellement par diffusion élastique, considérée comme isotrope dans le centre de masse. Ce milieu contient N atomes par cm^3 , de masse atomique A et de section efficace de diffusion $\sigma(E)$.

On considère des neutrons d'énergie initiale E_0 , et on définit la léthargie d'un neutron d'énergie E par la relation : $u = \text{Ln} (E_0/E)$

La perte moyenne de léthargie par collision élastique est indépendante de u et est donnée par le paramètre de ralentissement ξ :

$$\xi = 1 - \frac{(A-1)^2}{2A} \text{Ln} \frac{A+1}{A-1}$$

Le nombre moyen de collisions pour atteindre l'énergie E est $n = u/\xi$. L'angle moyen de diffusion $\langle \cos\theta_L \rangle$ est aussi indépendant de u et vaut $\langle \cos\theta_L \rangle = \frac{2}{3A}$. L'âge τ d'un neutron d'énergie E est défini par la relation:

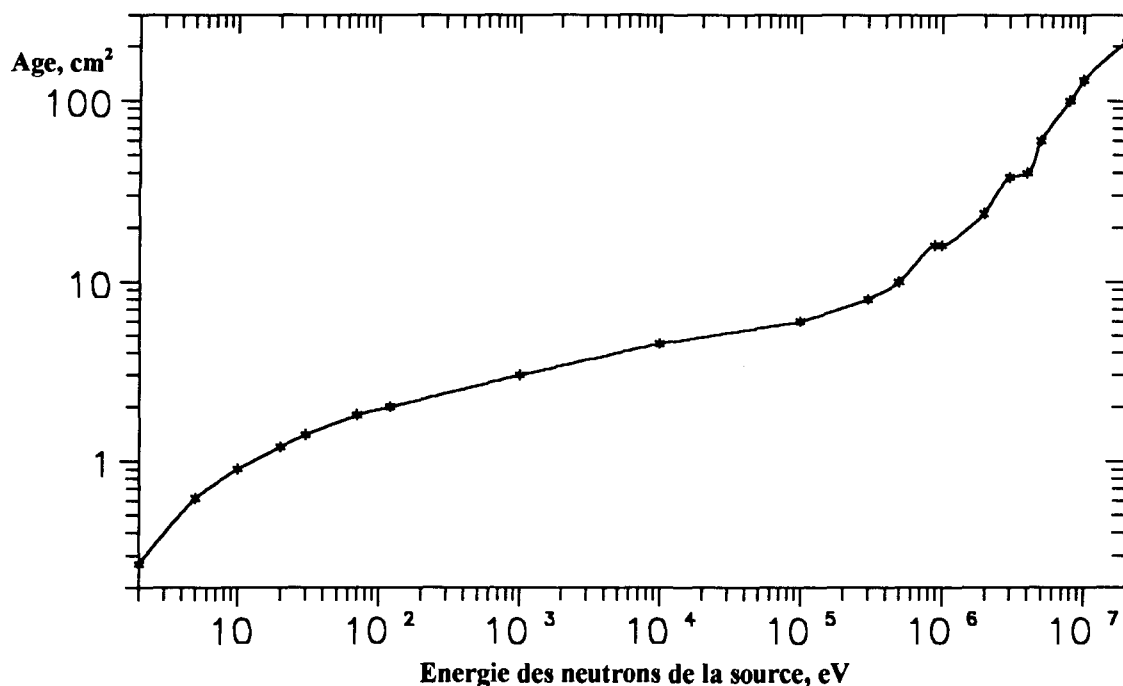
$$\tau = \frac{1}{3} \int_0^u \frac{du'}{N^2 \cdot \sigma^2(u') \cdot \xi \cdot (1 - \langle \cos\theta \rangle)}$$

Le ralentissement des neutrons est gouverné par l'équation de l'âge de Fermi, identique à celle de la conduction de la chaleur dépendant du temps, mais ici τ , qui a la dimension d'une surface, joue le rôle du temps:

$$\frac{\partial q(\vec{r}, \tau)}{\partial \tau} = \Delta q(\vec{r}, \tau) + S(\vec{r}) \cdot \delta(\tau)$$

où $q(\vec{r}, \tau)$ est la densité de ralentissement et $S(\vec{r})$ est la source de neutrons.

La figure ci-dessous donne, en fonction de l'énergie des neutrons monocinétiques de la source, l'âge correspondant au ralentissement dans l'eau jusqu'à l'énergie de 1,45 eV de la résonance de l'indium [4].



captures, puis une phase de mesure gamma sur un échantillon prélevé après mélange pour homogénéiser. C'est ce type de détecteur que nous avons retenu.

II.3 - Volume du détecteur

Le volume du milieu ralentisseur doit être suffisant pour thermaliser la quasi-totalité des neutrons de la source à mesurer. Dans quelle mesure peut-on réaliser cette condition? On peut répondre à cette question en évaluant le rayon de la sphère d'eau nécessaire pour thermaliser la quasi-totalité des neutrons monocinétiques d'énergie E_0 émis par une source ponctuelle et isotrope d'activité S placée en son centre. Une solution approchée est fournie par la résolution de l'équation de l'âge de Fermi, présentée en encadré, pour le nombre total de neutrons $N(\tau, R)$ dans une sphère de rayon R qui franchissent l'âge τ par unité de temps [5] :

$$N(\tau, R) = 4 \pi \int_0^R q(\tau, r) r^2 dr = 2S \sum_{p=1}^{\infty} (-1)^{p+1} e^{-\frac{p^2 \pi^2 \tau}{R^2}}$$

Cette fonction est représentée sur la fig. 1: On voit que la quasi-totalité des neutrons arrivent à l'âge τ dans une sphère de rayon $R = 6 \sqrt{\tau}$. On trouve dans la littérature une valeur plus conservatrice, $R = 7 \sqrt{\tau}$. Si on se réfère à la courbe de l'encadré, on en déduit que R est d'environ 90 cm pour des neutrons de 20 MeV. Ce rayon va croître considérablement à plus haute énergie, car le ralentissement est essentiellement gouverné par la section efficace de diffusion sur l'hydrogène, qui varie en $1/E$ au-dessus de 10 MeV. Il n'est donc pas possible de thermaliser totalement des neutrons rapides (au-delà de 15 à 20 MeV) dans un détecteur de taille raisonnable, de l'ordre du mètre de rayon.

II.4 - Détection des neutrons rapides

Pour conserver les avantages du bain de sulfate de manganèse, il faut un moyen plus efficace pour ralentir les neutrons. Cela peut être obtenu en plaçant un manchon de plomb autour de la source de neutrons. Ce matériau ne capture pratiquement pas les neutrons thermiques, mais possède une section efficace de réaction d'environ 2 barns pour les neutrons rapides, ce qui correspond à un libre parcours moyen de 15 cm. Ce sont surtout des réactions (n, xn) qui se produisent. Les neutrons émis ont un spectre d'évaporation, mais le prix à payer est une multiplication du nombre de neutrons.

L'épaisseur du manchon, 17,5 cm, et celle, 30 cm, du bloc d'arrêt placé en aval de la cible et jouant le même rôle que le manchon, ont été déterminées par des simulations à l'aide des codes de calcul TIERCE [6] et LAHET [7]. La cible productrice de neutrons que l'on étudie, placée au centre du détecteur, participe par elle-même au ralentissement (et à la multiplication) des neutrons primaires de spallation. Dans ces conditions, les fuites hors du détecteur (décrit dans le paragraphe suivant) obtenues par le calcul sont typiquement inférieures à 0,5% des neutrons produits. Ces fuites correspondent aux neutrons qui n'ont pas été thermalisés.

Une autre façon de présenter les choses est de dire que l'on augmente les dimensions de la cible productrice de neutrons à l'aide du manchon et du culot de plomb, de sorte que le spectre en énergie des neutrons qui sortent de l'ensemble soit adapté aux possibilités du détecteur. On mesure correctement le nombre total de neutrons produits, et on utilise le code de calcul pour déterminer la proportion des neutrons issus de la cible elle-même. Sans manchon ni culot, le nombre de neutrons produits n'est pas mesuré correctement, et il faut passer par le calcul pour estimer les fuites. En fait, comme nous le verrons par la suite, nous avons utilisé les deux approches, en effectuant aussi quelques mesures sans manchon. Nous avons toutefois toujours utilisé un culot, sinon les fuites dans l'axe du faisceau incident, où sont émis les neutrons les plus énergétiques, deviennent trop importantes.

Tout système de détection implique la présence de matière autour de la cible productrice de neutrons. Cette matière peut rétrodiffuser des neutrons vers la cible. Cela a deux conséquences. D'abord, si la cible est captivante pour les neutrons thermiques, la mesure est faussée par défaut. D'autre part, la mesure est aussi faussée, par excès cette fois, lorsque les neutrons rétrodiffusés peuvent avoir une énergie supérieure au seuil de réaction $(n, 2n)$. Ces effets sont d'autant plus importants que le volume de la cible est grand, ce qui est toujours

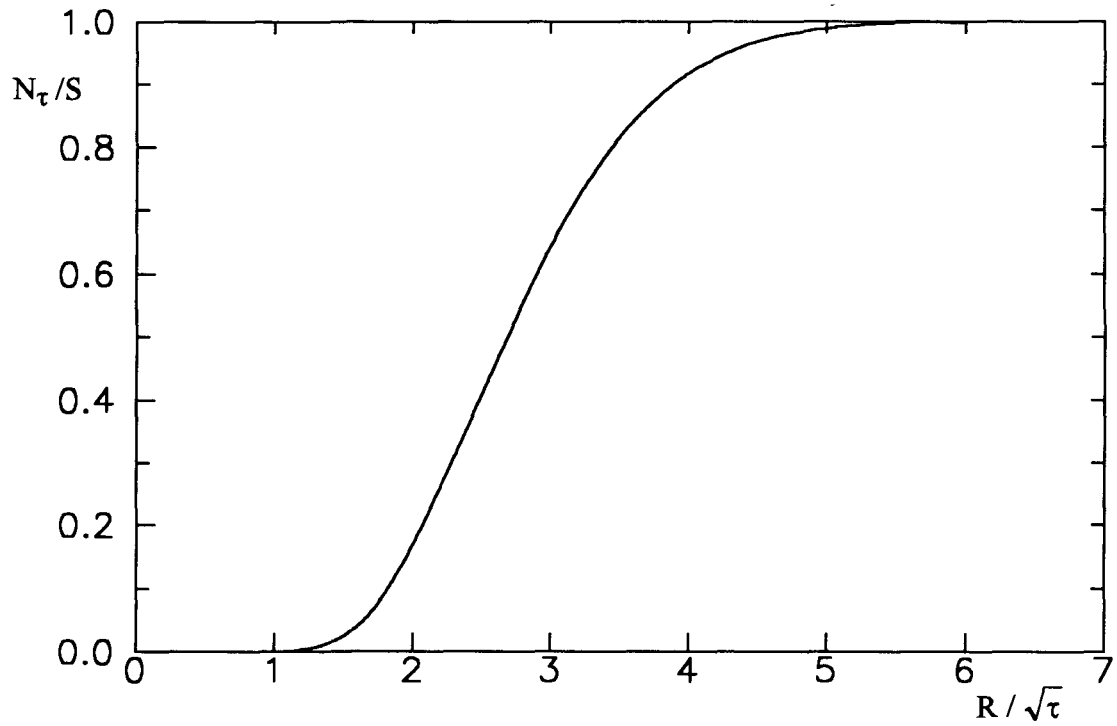


Fig. 1 - Fraction des neutrons qui franchissent l'âge τ dans une sphère de rayon R .

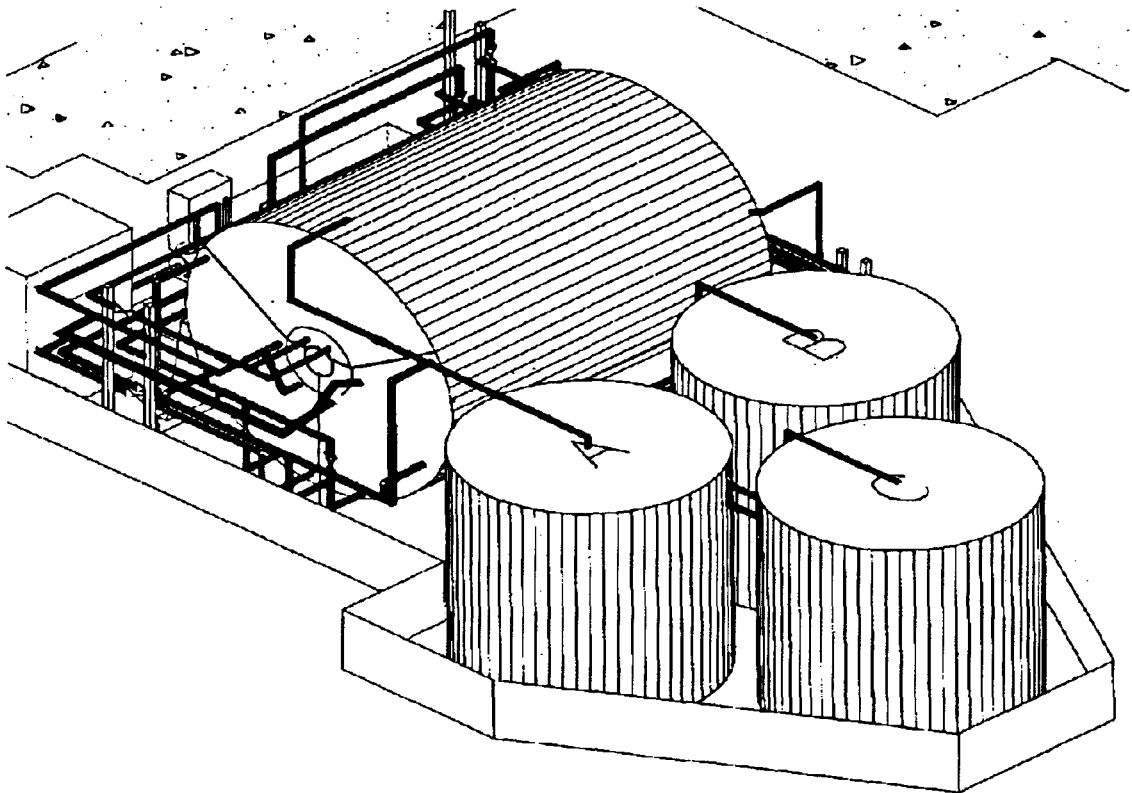


Fig. 2 - Schéma d'implantation du dispositif expérimental. Le faisceau de protons incidents, centré sur l'axe du détecteur, arrive par la droite.

le cas pour les cibles de spallation. Dans tous les cas, la mesure doit être complétée par des simulations numériques pour estimer ces effets.

III - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

III.1 - Détecteur de neutrons

Le dispositif expérimental est présenté sur la figure 2. Le détecteur est cylindrique, de 3 m de longueur et de 2,5 m de diamètre. Il est séparé en 3 secteurs à 120°. Le secteur supérieur, d'un volume de 4500 l, est amovible, pour pouvoir accéder à la cible, située sur l'axe. De ce fait, il ne contient que de l'eau pure, pour éviter toute dissémination de ^{56}Mn radioactif en cas de fuite, et pour éviter d'attendre la décroissance complète de cet élément pour procéder à un changement de cible. Cette eau est stockée dans la cuve A, située sur la droite, lors d'un changement de cible. Les deux secteurs du bas contiennent environ 9000 l d'une solution aqueuse de MnSO_4 . Cette solution peut être stockée dans les cuves B et C, en cas de fuite par exemple. L'étanchéité des circuits dans cette zone a fait l'objet de contrôles approfondis. Un système de tuyauteries, associées à des pompes situées sur la gauche, permet d'une part les transvasements entre le détecteur et les cuves, d'autre part la circulation en série entre les deux secteurs inférieurs, de façon à assurer l'homogénéisation de la concentration en ^{56}Mn après irradiation.

Tout cet ensemble est placé dans un bac de rétention capable de retenir toute la solution radioactive en cas d'accident majeur.

La solution, d'une concentration en MnSO_4 de 0,83% en poids au début, que l'on a portée ensuite à 1,66% en poids, a été réalisée dans les cuves B et C, en diluant une masse connue de sulfate dans un volume connu d'eau déminéralisée. L'homogénéisation a été obtenue par plusieurs remplissages et vidages du détecteur, en profitant du système de circulation à chaque remplissage. Cette concentration, et sa stabilité dans le temps, ont été confirmées par des dosages chimiques sur des échantillons.

La figure 3 présente une coupe schématique du détecteur avec une cible de plomb, ainsi que les principales cibles utilisées. La cible de plomb, de 25 cm de diamètre et de 120 cm de longueur avec le culot, a sa face d'entrée (arrivée du faisceau de protons incidents) à 20 cm en avant du centre du détecteur. La production maximum de neutrons, qui a lieu à environ 20 cm de la face d'entrée des protons dans la cible, se situe ainsi au milieu du détecteur. La cible est précédée d'un canal de 10 cm de diamètre percé dans un bloc de polyéthylène, par lequel arrive le faisceau de protons incidents. Elle est suivie d'un bloc plein de polyéthylène, de façon à assurer la continuité du milieu ralentisseur. L'ensemble cible + blocs de polyéthylène est placé dans un tube d'aluminium amovible pour le changement de cible.

Autour de ce tube, sur 2 m de longueur, on trouve le manchon de plomb, de 60 cm de diamètre extérieur. Celui-ci est constitué de 100 demi-couronnes de 4 cm de largeur, avec un système d'emboîtement, et s'encastre dans une cavité ménagée dans le corps du détecteur. Pour changer la cible, il faut d'abord vider et enlever la partie supérieure du détecteur, puis extraire les 50 demi-couronnes supérieures.

III.2 - Cibles étudiées

En plus de la cible de plomb déjà mentionnée, une cible massive de tungstène fritté de 81 cm de longueur a été étudiée. Pour des problèmes de coût, son diamètre a été limité à 15 cm. Compte tenu de la densité élevée du tungstène, ce diamètre est équivalent, au niveau du transport des neutrons, aux 25 cm de la cible de plomb. Cette cible, sous forme de 32 disques jointifs de 2,54 cm d'épaisseur, est placée dans un tube d'aluminium secondaire, lui-même maintenu dans le tube principal par deux supports annulaires en nylon de 7,5 cm de largeur. Elle est complétée par un culot de plomb de 40 cm d'épaisseur et par les mêmes blocs de polyéthylène que pour la cible de plomb.

Le tungstène a une section efficace de capture importante pour les neutrons thermiques. Pour minimiser cet effet et étudier son influence, nous avons aussi utilisé une cible constituée de 9 disques de 2,54 cm d'épaisseur séparés chacun par un espace de 10 cm, et complétée par un culot en plomb de 120 cm de longueur. La face d'entrée du premier disque était à 95 cm en amont du centre du détecteur. Des blocs de polyéthylène d'épaisseur appropriée ont été utilisés pour compléter le tube porte-cible.

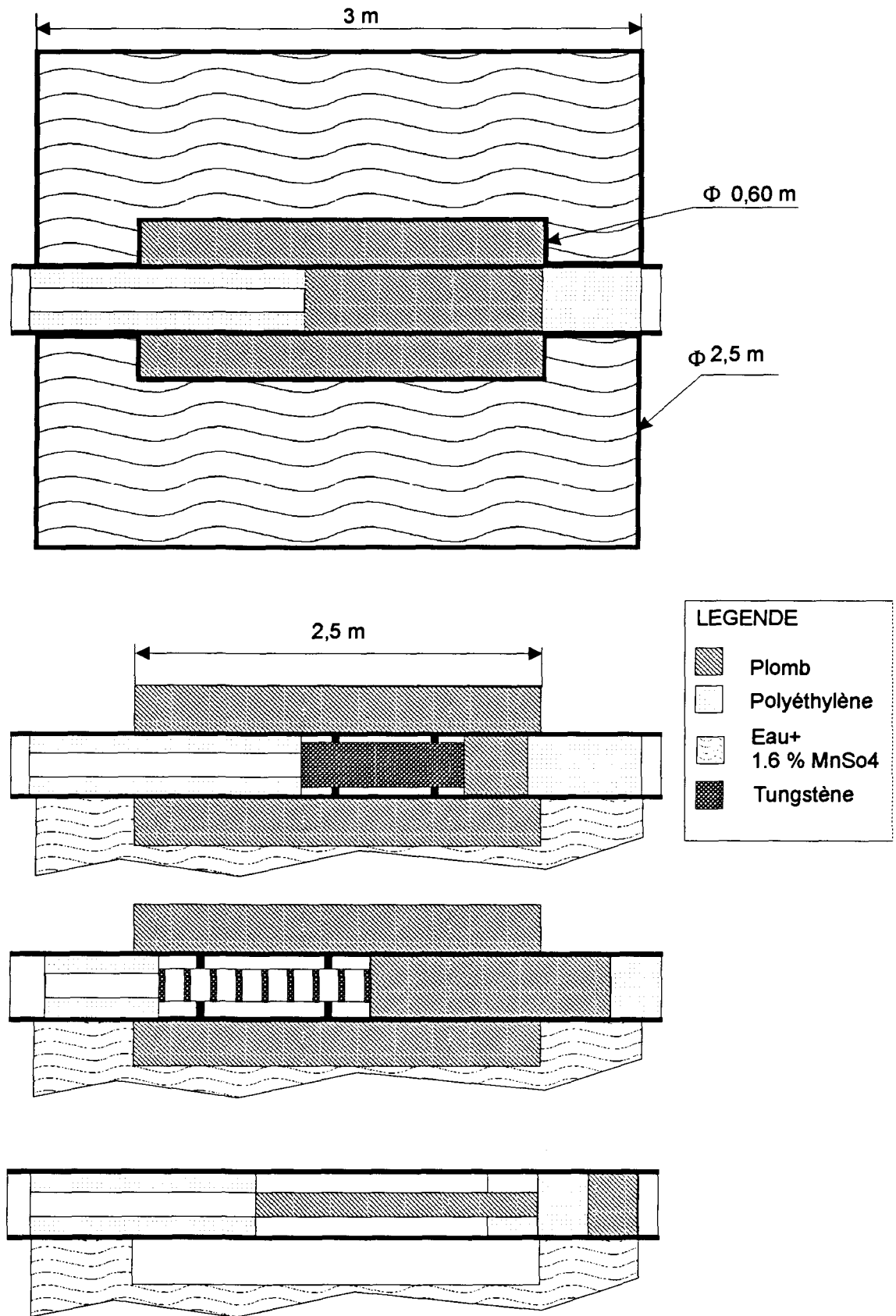


Fig. 3 - Coupe schématique du détecteur de neutrons et des différentes cibles utilisées.

Deux autres cibles, l'une de plomb et l'autre de fer (non représentée sur la figure 3), ont été utilisées pour des mesures ponctuelles. De 10 cm de diamètre et 110 cm de longueur, elles ont été utilisées sans manchon. Elles étaient complétées par un culot en plomb de 30 cm de longueur et 10 cm de diamètre, entouré par un manchon de polyéthylène de 25 cm de diamètre. Derrière ce culot, sur un diamètre de 25 cm, étaient placés un bloc de polyéthylène puis un bloc de plomb, chacun de 25 cm d'épaisseur. Comme pour la cible de tungstène, ces cibles étaient placées dans un tube d'aluminium annexe, maintenu ici dans le tube principal par 4 supports annulaires en aluminium de 7,5 mm d'épaisseur. La face d'entrée de ces cibles était aussi à 20 cm en amont du centre du détecteur. Le canal d'entrée était identique à celui des autres cibles.

III.3 - Séquences d'irradiation

Puisque le tiers supérieur du détecteur ne contient que de l'eau pure, il est important que le faisceau de protons incidents soit bien centré sur la cible pour que la mesure soit correcte. Pour cela, un écran d'alumine était placé sur la face d'entrée de la cible. La lumière émise sous l'impact des protons était reprise à l'extérieur du canal d'entrée par un miroir de faible épaisseur (Kapton aluminisé), et l'image transmise à une caméra avec intensification ajustable. Les réglages de la focalisation et du centrage du faisceau ont pu ainsi être effectués en ligne.

Une procédure mise au point indépendamment par l'équipe de l'accélérateur permettait de faire ces réglages à faible intensité, puis de passer ensuite rapidement à l'intensité maximum pour les irradiations, sans dégradation notable de la qualité des réglages. En réduisant l'intensité d'un facteur ~ 100 , les réglages ont pu être réalisés sans induire d'activation significative de ^{55}Mn , par rapport à l'activation induite par l'irradiation proprement dite. Le centrage a été effectué avec une précision inférieure au mm, et le diamètre du faisceau sur la cible était typiquement de l'ordre du cm.

Avant chaque irradiation, une feuille d'aluminium de 10 cm de diamètre et 0,3 mm d'épaisseur était centrée sur l'axe du faisceau, juste devant le canal d'entrée du détecteur. Après l'irradiation, la détermination par spectrométrie gamma du nombre de noyaux de ^{24}Na formés, de période 14,65 heures, a permis de remonter au nombre total de protons incidents, en utilisant la section efficace de production correspondante.

Une irradiation durait typiquement 30 mn. L'intensité maximum possible, de l'ordre de 10^{11} protons par seconde, n'a pas toujours pu être utilisée, notamment à haute énergie durant la journée, pour respecter les normes de radio-exposition dans les bâtiments voisins. Des dérogations ont pu être obtenues durant la nuit. Pour compenser ce déficit par rapport aux prévisions, nous avons été amenés à doubler la concentration en sulfate de manganèse.

Après l'irradiation, la feuille d'aluminium était récupérée pour comptage gamma, et la circulation forcée était mise en place durant 20 mn pour assurer l'homogénéisation de la concentration en ^{56}Mn . On prélevait alors un échantillon de 50 cm^3 de solution sur chacun des deux éléments du détecteur. La production de ^{56}Mn était alors déterminée par spectrométrie gamma sur ces échantillons. Une chronométrie précise de ces diverses opérations a été établie.

Les irradiations ont eu lieu à des intervalles d'environ 8 heures. L'activité résiduelle due à l'irradiation précédente, de l'ordre de 5%, a été calculée à partir de la production de ^{56}Mn alors mesurée. Après une irradiation, l'activité du ^{56}Mn ne posait pas de problème particulier pour intervenir auprès du détecteur. L'activité induite dans les cibles de spallation a, par contre, imposé des temps de refroidissement de 12 à 48 heures pour les changements de cible, selon les taux d'irradiation atteints.

IV - TRAITEMENT DES DONNEES

IV.1 - Généralités

L'encadré 2 détaille le formalisme qui permet de déduire le nombre de noyaux radioactifs créés lors de l'irradiation à partir d'une mesure d'activité ultérieure. Ces mesures d'activité ont été réalisées à l'aide de détecteurs au germanium. Avant de détailler les différentes séquences de mesures, nous allons tout d'abord présenter les mesures d'efficacité de ces détecteurs, dont la précision influe directement sur la qualité des résultats.

ENCADRE 2**DE L'IRRADIATION A LA MESURE D'ACTIVITE :**
DETERMINATION DU NOMBRE DE NOYAUX FORMES

On irradie une cible à flux Φ constant, dans laquelle on produit des noyaux radioactifs de constante de décroissance λ . La population de ces noyaux est gouvernée par l'équation :

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t) + K\Phi,$$

avec $K = n\sigma$, produit du nombre de noyaux/cm² de la cible par la section efficace de réaction. A la fin de l'irradiation, qui a duré un temps t_i , on a créé $N_0 = K\Phi t_i$ noyaux radioactifs, et il en reste :

$$N(t_i) = N_0 \left(\frac{1 - e^{-\lambda t_i}}{\lambda t_i} \right)$$

Après un temps d'attente t_a , il en reste : $N(t_a) = N(t_i) e^{-\lambda t_a}$. On mesure pendant un temps t_m avec un détecteur d'efficacité ε une raie gamma de décroissance du noyau radioactif dont le rapport de branchement est r . L'intégrale du pic est alors :

$$M = N(t_a) (1 - e^{-\lambda t_m}) r \varepsilon$$

A partir de cette mesure, on peut en déduire N_0 :

$$N_0 = \frac{M \lambda t_i e^{\lambda t_a}}{r \varepsilon (1 - e^{-\lambda t_i}) (1 - e^{-\lambda t_m})}$$

Cas de l'aluminium : production de ²⁴Na

$N_0 = n \sigma \Phi t_i$, et le nombre total de protons incidents est : $N_p = \Phi t_i = \frac{N_0}{n \sigma}$

Cas du détecteur de neutrons : production de ⁵⁶Mn

Le nombre total de noyaux formés dans l'échantillon est N_0 , le nombre total de noyaux formés dans le détecteur est $N_c = N_0 V_d / V_e$, où V_d est le volume du détecteur (partie contenant du $MnSO_4$) et V_e le volume de l'échantillon.

Activité résiduelle : Au cours d'une irradiation précédente pendant un temps t_i' , il a été produit N_0' noyaux radioactifs. Entre la fin de cette irradiation antérieure et celle de l'irradiation considérée, il s'est écoulé un temps θ . A la quantité $N(t_i)$, s'ajoute donc une contribution $N'(t_i)$ résiduelle de l'irradiation précédente :

$$N'(t_i) = N_0' \frac{1 - e^{-\lambda t_i'}}{\lambda t_i'} e^{-\lambda \theta}$$

On a :

$$\frac{N(t_i) + N'(t_i)}{N(t_i)} = 1 + \frac{N_0' t_i (1 - e^{-\lambda t_i'})}{N_0 t_i' (1 - e^{-\lambda t_i'})} e^{-\lambda \theta} = 1 + A \cdot N_0' / N_0$$

Si l'on n'en tient pas compte explicitement, on va obtenir une valeur de N_0 multipliée par ce facteur, que l'on note \mathcal{N} , et la valeur exacte N_0 est obtenue en lui appliquant le facteur correctif :

$$N_0 / \mathcal{N} = 1 - A \cdot N_0' / \mathcal{N}$$

Dans le cas plus général d'irradiations successives, N_0' doit être remplacé par la quantité \mathcal{N}' correspondante.

Tableau I : Efficacité des détecteurs gamma à l'énergie de la raie à 834,826 keV du ^{54}Mn .

date	hr.mn	T.mesures	position cm	coups	+/-	activité source réf.	efficacité E-4
03/06/96	16:51	1500	15	19854	149	35471.0	3.7323
11/06/96	21:55	1500	15	18668	137	34830.4	3.5740
12/06/96	06:50	2000	15	24228	156	34802.2	3.4819
12/06/96	09:38	2504.3	15	30784	179	34792.5	3.5340
13/06/96	00:25	603.4	15	7826	90	34745.1	3.7345
13/06/96	23:50	3000	15	37368	201	34669.6	3.5937
14/06/96	13:34	1502.7	15	18242	145	34625.9	3.5068
14/06/96	10:48	1500	15	18729	142	34789.0	3.5899
Efficacité moyenne : 3.577E-4 +/- 0.66%							
12/06/96	07:15	421.3	5	22136	149	34800.3	15.1 +/- 2%
Efficacité moyenne : 14.43E-4 +/- 0.50%							
23/10/96	00:26	323	20	11879	110	25916,2	14.1952
23/10/96	00:50	353,9	20	13525	120	25915,3	14.7498
23/10/96	17:56	11550,3	20	431185	679	25870,7	14.4335
23/10/96	22:22	545,5	20	20305	145	25863,7	14.3965
23/10/96	23:36	666,9	20	24558	161	25860,8	14.2434
24/10/96	22:36	700,1	20	25940	166	25803,4	14.3623
24/10/96	23:52	514	20	19295	141	25800,4	14.5539
Efficacité moyenne : 22.77E-4 +/- 0.66%							
25/10/96	23:52	571	15	33775	187	25743,2	22.9813
26/10/96	00:25	543,6	15	31488	196	25742,6	22.5080

IV 2 - Efficacité de détection pour ^{56}Mn

La décroissance du ^{56}Mn , de période $2,5785 \pm 0,0006$ heures, est caractérisée par une raie gamma à $846,812 \pm 0,020$ keV, avec un rapport de branchement de $98,9 \pm 0,3$ %. Les échantillons de 50 cm^3 étaient prélevés dans des flacons de polyéthylène normalisés (type E) de $\varnothing 39 \times 75$ mm. Ce choix a été dicté par l'existence de sources étalon de ^{54}Mn de mêmes volume et conditionnement. La décroissance du ^{54}Mn , de période $312,20 \pm 0,07$ jours, est caractérisée par une raie gamma à $834,826 \pm 0,021$ keV, avec un rapport de branchement de $99,975 \pm 0,002$ %. L'étalonnage et les mesures ont donc pu être réalisés dans des conditions géométriques identiques. De plus, la différence d'efficacité due à la différence d'énergie est très faible. La source étalon utilisée, fournie par le CEA/LMRI, est de type MN54-ELSE15, N° 4866/3. Elle avait une activité de $47360,8 \text{ Bq}$ à la date du 25/01/96, à 12h00 TU, avec une incertitude globale de ± 2 %.

Les mesures d'efficacité à l'énergie de la raie du ^{54}Mn pour les deux détecteurs utilisés en juin et octobre 1996 sont présentées dans le tableau I. La position donne la distance approximative l du centre du flacon à la face d'entrée du cristal de germanium. Les fluctuations observées pour l'efficacité sont supérieures à la précision statistique et sont plutôt caractéristiques de la précision $dl = \pm 0,5$ mm avec laquelle on peut positionner l'échantillon sur le plateau de mesure. L'incertitude sur l'efficacité moyenne a donc été prise égale à $2dl/l$, d'après la loi en $1/l^2$ pour la variation de l'efficacité.

En échelles logarithmiques, l'efficacité des détecteurs est une fonction linéaire de l'énergie. A partir de sources étalonnées, nous avons mesuré une pente de $-1,05$ pour le détecteur utilisé en mai, et de $-0,67$ pour

celui utilisé en octobre. Les facteurs correctifs correspondants pour passer de la calibration en ^{54}Mn à l'efficacité pour ^{56}Mn sont respectivement 0,9851 et 0,9905 pour les mesures de mai et octobre 1996.

IV.3 - Efficacité de détection pour ^{24}Na

Le nombre de protons incidents est déterminé par l'intermédiaire de la production de ^{24}Na dans un écran d'aluminium placé dans l'axe du faisceau de protons, à l'entrée du détecteur de neutrons. Pour éviter des erreurs liées à l'éjection de noyaux de ^{24}Na de recul hors de la cible, les irradiations ont systématiquement été effectuées avec un empilement de trois feuilles, et seule la feuille centrale a été utilisée pour le comptage.

La décroissance du ^{24}Na , de période $14,659 \pm 0,004$ heures, est caractérisée par une raie gamma à $1368,598 \pm 0,006$ keV, d'intensité 100%. Cette énergie est voisine des raies de décroissance du ^{60}Co , de période $5,271 \pm 0,001$ années, qui est couramment disponible sous forme de sources étalonnées. Il possède deux raies caractéristiques, l'une à $1173,237 \pm 0,004$ keV, d'intensité $99,90 \pm 0,02\%$, l'autre à $1332,501 \pm 0,005$ keV, d'intensité $99,9824 \pm 0,0005\%$.

Nous avons utilisé pour ces mesures les mêmes détecteurs au germanium que pour les mesures sur le manganèse. Nous avons prévu en juin de nous baser sur une courbe d'étalonnage établie sur une large gamme en énergie à l'aide de sources calibrées. Le détecteur ayant été déplacé entre l'étalonnage et les mesures, des écarts systématiques de quelques pour-cent sont apparus lors d'étalonnages de contrôle à l'aide d'une source de ^{60}Co . Nous avons donc décidé de baser notre calibration sur des mesures en ^{60}Co effectuées en ligne, en plaquant la source devant la feuille d'aluminium en cours de comptage. Cette technique a été systématiquement utilisée en octobre 1996. A partir de ces résultats, nous avons déterminé l'efficacité intrinsèque du détecteur selon la procédure présentée dans l'encadré 3. Nous avons utilisé pour ces étalonnages la source n° 5507 dont l'activité était de 397750 Bq le 05/02/79 à 12h00, et accessoirement la source n° 14260 dont l'activité était de 5090 Bq le 29/12/88 à 12h00. Par comparaison avec d'autres sources de Co, on peut estimer à $\pm 2\%$ la précision de l'activité de ces sources.

Le tableau II présente l'ensemble de ces étalonnages. Les efficacités intrinsèques obtenues à partir des mesures à différentes distances sont cohérentes entre elles. A partir des valeurs moyennes obtenues pour les deux raies du ^{60}Co , nous avons déterminé deux valeurs de l'efficacité intrinsèque pour la raie du ^{24}Na , en

ENCADRE 3

EFFICACITE INTRINSEQUE

Soit un détecteur cylindrique de rayon R et de longueur x, et une source ponctuelle isotrope placée sur son axe, à une distance d de sa face d'entrée. L'efficacité de détection peut s'exprimer par la relation :

$$\varepsilon = \int_{\Omega} (1 - e^{-l(\omega)/l_0}) d\omega$$

où Ω est l'angle solide du détecteur vu de la source, $l(\omega)$ la longueur du rayon vecteur à l'intérieur du détecteur pour l'élément d'angle solide $d\omega$, et l_0 la longueur effective d'interaction du photon dans le détecteur. L'efficacité intrinsèque du détecteur se définit alors par la relation :

$$\varepsilon_i = 4\pi (1 - e^{-x/l_0})$$

A grande distance du détecteur, la valeur moyenne sur l'angle solide de $l(\omega)$ est très voisine de x, et le rapport $\varepsilon/\varepsilon_i$ tend vers $\Omega/4\pi$. Nous avons utilisé une meilleure approximation, à partir du développement au premier ordre :

$$\varepsilon / \varepsilon_i = \frac{1}{4\pi x} \int_{\Omega} l(\omega) d\omega = \frac{1}{2x} [d \text{Ln}(\cos\theta_1) - (d+x) \text{Ln}(\cos\theta_2) + R(\theta_1 - \theta_2)]$$

avec $\text{tang}(\theta_1) = R/d$ et $\text{tang}(\theta_2) = R/(d+x)$

Tableau II : Efficacité des détecteurs gamma aux énergies des raies du ^{60}Co .

date	hr,mn	t. mes. s	pos. cm	coups 1,17	coups 1,33	activité réf., Bq	eff. 1,17 E-4	eff. 1,33 E-4	eff. intr. 1,17, E-2	eff. intr. 1,33, E-2	préc. %
06/06	00:14	3783,56	24,9	23223	20428	40715,3	1,5092	1,3263	8,0195	7,0485	0,75
07/06	12:33	794,7	14,9	12466	10947	40692,7	3,8587	3,3857	8,0688	7,0798	1,11
11/06	00:45	1000	19,9	9321	8187	40641,2	2,2958	2,0148	8,0777	7,0891	1,02
								moyen.	8,0554	7,0725	0,53
22/10	23:33	1211,51	34,9	1253	1047	1821,3	5,67862	4,74502	23,7401	19,837	7,5
23/10	00:28	4794,92	24,9	7656	7076	1821,2	8,76724	8,10306	19,8232	18,3215	2,45
23/10	21:09	558,7	29,9	13732	12510	38714,8	6,3486	5,78364	19,984	18,2056	1,17
23/10	21:26	589	29,9	14996	13389	38714,6	6,57636	5,87162	20,7009	18,4825	1,07
23/10	22:24	873,54	29,9	21878	20027	38715,4	6,46906	5,92174	20,3631	18,6402	0,87
24/10	20:29	571,86	29,9	14149	12785	38703,7	6,39269	5,77642	20,1227	18,1829	1,12
24/10	20:42	509,68	29,9	12622	11639	38703,8	6,39848	5,90017	20,141	18,5724	1,18
24/10	23:25	548,38	29,9	13943	12638	38702,6	6,56953	5,95465	20,6797	18,744	1,16
25/10	21:49	718,1	35,4	13153	11863	38687,1	4,7345	4,27015	20,3102	18,3182	1,10
25/10	21:58	684,2	29,9	16628	15277	38686,9	6,28193	5,77153	19,7741	18,1675	1,01
25/10	22:26	706,5	29,9	17498	15948	38686,8	6,40197	5,83487	20,1519	18,3668	1,00
25/10	22:43	715,14	29,9	17890	16103	38686,5	6,46636	5,82045	20,3546	18,3215	0,92
								moyen.	20,2582	18,4002	0,50

utilisant la même procédure que pour le manganèse (§ IV-2). La moyenne de ces deux valeurs a servi de base pour déterminer l'efficacité de détection au niveau des feuilles d'aluminium placées à différentes distances du détecteur (Tableau III). En particulier, l'écart de 1 mm entre la position de la feuille d'aluminium et celle de la source de ^{60}Co accolée a été pris en compte. La précision statistique de cet étalonnage est d'environ 0,5%; elle a été déterminée à partir de la dispersion des mesures, elle est légèrement supérieure à la valeur de 0,33% qui résulte de la seule statistique sur l'intégrale des pics gamma.

Tableau III : Efficacités de détection à différentes distances pour la raie du ^{24}Na à 1,368 MeV. La position 0 correspond à l'efficacité intrinsèque des détecteurs.

position, cm	0	15	20	25	30	35
effic. juin, E-4	686.53	3.2636	1.9422	1.2870	0.9157	
effic. oct., E-4	1817.13			7.9791	5.7377	4.3237

V - RESULTATS EXPERIMENTAUX

V.1 - Nombre de protons incidents

Le tableau IV présente la détermination du nombre de protons incidents selon le formalisme présenté dans l'encadré 2. Les différentes irradiations sont définies par la date, l'heure de début d'irradiation, le numéro atomique Z de la cible, l'énergie E_p des protons incidents, et le numéro de repère de la feuille d'aluminium utilisée. Les mesures de juin ont été réalisées avec la cible massive de tungstène, celles d'octobre avec la cible à plaques séparées. Pour chaque irradiation, on trouve ensuite le nombre de coups dans le pic du ^{24}Na , l'efficacité de détection correspondante (tableau III), la durée de l'irradiation, le temps d'attente entre la fin de l'irradiation et le début du comptage, la durée du comptage. La section efficace de production du ^{24}Na est tirée de l'évaluation de Toboilem et al. [8]. Le nombre d'atomes par cm^2 de feuille d'aluminium a été obtenu à partir d'une pesée : Le diamètre des feuilles étant de $105_{-0,0}^{+0,5}$ mm, on obtient une précision de l'ordre du

Tableau V : Détermination du nombre de neutrons capturés par proton, Mn/p, selon le formalisme développé dans l'encadré 2. La présentation est la même que celle du tableau IV.

Z/Ep/Al# ./GeV/.	coups	effic. E-5	t. irr. s	t. att. s	t. mes. s	vol. cm3	corr. bdf	Mn cap. E+13	protons E+14	Mn/p	Mn/p moyen.
82/.4/03	3291	35.24	1800	5785	4072.60	50.05	1.000	1.07359	1.90869	0.05698	
82/.4/03	2275	35.24	1800	10530	3746.56	49.65	1.000	1.14561	1.90869	0.05883	0.05758
82/.8/04	3939	35.24	1798	7380	4173.12	49.52	0.769	1.43272	0.66487	0.16788	
82/.8/04	4341	35.24	1798	11919	7210.52	47.99	0.769	1.47036	0.66487	0.17246	0.17039
82/2./05	5446	35.24	1802	5895	3516.18	48.5	0.952	2.09921	0.35134	0.57622	
82/2./05	3069	35.24	1802	9890	2628.42	47.98	0.952	2.08796	0.35134	0.59012	0.57957
L82/.8/08	5040	35.24	1805	7110	2912.00	49.21	1.000	2.47751	0.71317	0.35193	
L82/.8/08	5779	35.24	1805	10402	4019.20	56.17	1.000	2.39857	0.71317	0.34994	0.34080
L82/2./09	4624	35.24	1802	5440	1566.22	48.59	0.937	3.59785	0.36171	0.94434	0.94434
B82/2./11	2519	35.24	1813	5250	2301.16	49.18	0.979	1.33524	0.19293	0.68646	
B82/2./11	2184	35.24	1813	7774	2388.90	50.02	0.979	1.32799	0.19293	0.70232	0.69327
B82/.8/12	8336	35.24	2702	5890	3706.40	46.22	0.967	3.32607	1.01815	0.32003	
B82/.8/12	7337	35.24	2702	9765	5389.26	47.29	0.967	2.78841	1.01815	0.30122	0.31182
B26/.8/13	11335	148.9	2097	8340	2754.76	49.97	0.311	1.51328	0.33377	0.14294	
B26/.8/13	15229	148.9	2097	5170	2913.72	49.67	0.311	1.53506	0.33377	0.14794	0.14616
82/.8/14	2294	35.24	2000	5530	3604.00	47.57	0.952	0.86482	0.24776	0.33653	
82/.8/14	1792	35.24	2000	9270	3513.66	47.99	0.952	0.90519	0.24776	0.35120	0.34209
82/1.6/15	8958	35.24	6351	5160	2873.02	48.02	0.981	4.63886	0.55613	0.82906	0.82906
74/1.6/16	10239	35.24	2465	4155	1227.90	51.48	1.000	8.81640	1.87520	0.47630	
74/1.6/16	11591	35.24	2465	5420	1465.20	48.06	1.000	9.93284	1.87520	0.53662	
74/1.6/16	13583	35.24	2465	7060	2000.00	48.06	1.000	9.82816	1.87520	0.53096	
74/1.6/16	3999	35.24	2465	25245	2000.00	48.06	1.000	11.2472	1.8752	0.53539	0.51982
74/1.6/17	14602	35.24	1226	6847	2716.00	51.15	0.831	7.05770	1.12522	0.52828	
74/1.6/17	13586	35.24	1226	9946	3472.12	48.89	0.831	6.95936	1.12522	0.52092	
74/1.6/17	5797	35.24	1226	20371	3000.00	51.15	0.831	7.03387	1.12522	0.53838	0.52592
74/.8/18	4804	35.24	2698	4410	3109.72	50.42	0.557	1.83537	0.51450	0.20112	
74/.8/18	5316	35.24	2698	7650	5058.22	47.74	0.557	1.79964	0.51450	0.20149	0.20132
74/2./19	11713	35.24	1790	5430	1914.00	47.54	0.972	7.71070	1.09224	0.69550	
74/2./19	10134	35.24	1790	7635	1865.76	48.78	0.972	7.84946	1.09224	0.71218	0.70264
74/2./20	10470	35.24	1263	4935	1970.34	48.5	0.853	6.21658	0.81331	0.66025	
74/2./20	19090	35.24	1263	7020	4615.94	48.42	0.853	6.22508	0.81331	0.66115	
74/2./20	11640	35.24	1263	11790	3913.48	48.5	0.853	6.22510	0.81331	0.66131	
74/2./20	3480	35.24	1263	27600	3684.64	48.5	0.853	6.38288	0.81331	0.66969	0.66119
74/.4/21	7036	35.24	2704	4320	2764.60	49.46	0.777	3.02460	3.59880	0.06619	
74/.4/21	8271	35.24	2704	7280	4264.06	49.63	0.777	3.02301	3.59880	0.06615	
74/.4/21	1812	35.24	2704	24405	3273.68	49.46	0.777	3.00096	3.59880	0.06727	0.06620
74/.8/22	9522	35.24	1803	4420	1734.98	48.91	0.938	6.19563	2.74474	0.21441	
74/.8/22	8107	35.24	1803	6260	1703.30	48.71	0.938	6.18239	2.74474	0.21797	0.21591
74/2./24	21837	142.9	2220	7214	231.74	49.24	0.992	29.8660	3.63837	0.82833	
74/2./24	23235	142.9	2220	7575	250.16	49.45	0.992	30.1346	3.63837	0.83578	0.83229
74/1.6/27	23247	142.9	2402	5665	331.68	49.56	0.988	19.7918	2.93003	0.68163	
74/1.6/27	194292	142.9	2402	11420	5042.32	49.56	0.988	19.8187	2.93003	0.68255	
74/1.6/27	21501	142.9	2402	7575	361.82	48.21	0.988	19.9165	2.93003	0.68592	
74/1.6/27	132025	142.9	2402	16800	5285.82	48.21	0.988	19.9031	2.93003	0.68546	0.68347
74/.8/30	58056	142.9	2403	8470	2031.10	49.27	0.993	10.7029	3.74661	0.28827	
74/.8/30	29487	142.9	2403	6957	903.00	47.95	0.993	10.7674	3.74661	0.29001	0.28863
74/1.2/33	57838	225.5	2399	7885	920.76	48.57	0.994	13.9042	2.79354	0.50258	
74/1.2/33	40144	225.5	2399	6140	566.80	47.65	0.994	13.8457	2.79354	0.50047	0.50189

pour-cent pour le nombre d'atomes. Cette procédure est plus précise que d'utiliser la valeur de $0,3 \pm 0,02$ mm donnée pour l'épaisseur des feuilles. Le nombre de protons est donné par seconde et pour la totalité de l'irradiation. Lorsque plusieurs comptages ont été réalisés pour une même feuille, on donne également la valeur moyenne du nombre total de protons.

Pour les mesures d'octobre, on a aussi mesuré chacune des trois feuilles irradiées en même temps. On n'observe pas d'effet probant lié à l'éjection de noyaux de ^{24}Na de recul, qui devrait se traduire par un comptage plus important pour la feuille centrale, dans laquelle les pertes sont compensées (feuilles n° 27, 30 et 33). On observe plutôt un taux de comptage qui croît de l'aval vers l'amont du faisceau incident. Cet effet, qui reste dans les limites de la précision, pourrait être dû à des réactions (n, α) induites par les neutrons rapides créés par spallation au sein même des cibles d'aluminium, et qui sont émis préférentiellement vers l'avant. Nous avons choisi de prendre la valeur moyenne des trois feuilles, qui reste très proche de celle de la feuille centrale.

V.2 - Nombre de captures par proton dans ^{55}Mn

Le tableau V présente la détermination du nombre de captures dans le ^{55}Mn , Mn capt., et du nombre de captures par proton, Mn/p. La présentation est similaire à celle du tableau IV, auquel on peut se référer pour retrouver la date et l'heure de début d'irradiation correspondant à un $(Z/E_p/Al\#)$ donné. L'efficacité de détection est tirée du tableau I. Le volume des échantillons, au nombre de deux par irradiation, a été déterminé par une pesée différentielle. La densité de la solution a été prise égale à 1.00533 pour la faible concentration, et à 1.01351 pour la plus forte concentration utilisée à partir du 4 juin. Ces valeurs ont été établies à la température ambiante de l'aire expérimentale. Le volume de solution dans le détecteur et le circuit de circulation est de 9033 litres, il a été déterminé avec une précision de 1% lors du premier remplissage, en utilisant notamment les échelles graduées intégrées aux réservoirs de stockage. La colonne "corr. bdf" est le facteur correctif défini dans l'encadré 2 pour tenir compte de l'activité résiduelle due aux irradiations précédentes.

La dernière colonne donne, pour chaque irradiation, la valeur du nombre de captures dans le ^{55}Mn par proton incident, qui résulte de la moyenne pondérée des différentes déterminations.

V.3 - Précision des mesures

L'incertitude sur les mesures peut être déterminée par dérivation des formules de base données dans l'encadré 2. Les différents temps ont été mesurés avec une précision de la seconde, et les constantes de décroissance sont bien connues : l'incertitude correspondante est toujours négligeable devant les autres sources d'incertitude.

Pour la mesure du nombre de protons, il n'y a pas d'incertitude sur le rapport de branchement. La précision statistique est de 0,5% pour l'efficacité, et de 1,5% pour le nombre de noyaux par cm^2 de la cible, d'après la dispersion des résultats expérimentaux. L'incertitude statistique est donc :

$$\left(\frac{\Delta N_p}{N_p}\right)^2 = \left(\frac{\Delta M}{M}\right)^2 + 0.00025$$

La précision sur l'intégrale M du pic gamma est toujours voisine de \sqrt{M} . La partie systématique de l'incertitude comprend l'incertitude de 2% sur l'activité de la source étalon utilisée pour les mesures d'efficacité, et l'incertitude sur la section efficace de référence pour la production de ^{24}Na . Celle-ci peut être estimée à 2% pour des protons incidents d'énergie inférieure à 1 GeV, et à 10% à plus haute énergie. Des mesures sont prévues au BNL pour améliorer cette précision.

Pour la mesure du nombre de captures dans le manganèse, l'incertitude sur le rapport de branchement est de 0,3%, et la précision statistique de la mesure d'efficacité est de 0,7%. Le volume des échantillons est déterminé avec une précision de 0,5%. L'incertitude sur le nombre apparent de captures, avant soustraction de l'activité résiduelle, est donc :

$$\left(\frac{\Delta N_c}{N_c}\right)^2 = \left(\frac{\Delta M}{M}\right)^2 + 0.00083$$

Si x est le facteur correctif, donné dans le tableau V, pour l'activité résiduelle, la précision sur le nombre de captures est :

$$x^2 \left(\frac{\Delta N_c}{N_c} \right)^2 = \left(\frac{\Delta \mathcal{N}_c}{\mathcal{N}_c} \right)^2 + (1-x)^2 \left(\frac{\Delta \mathcal{N}_c'}{\mathcal{N}_c'} \right)^2$$

\mathcal{N}_c' est le nombre apparent de captures de l'irradiation précédente. La partie systématique de l'incertitude comprend l'incertitude de 1% sur le volume du détecteur, l'incertitude de 2% sur l'activité de la source de référence de ^{54}Mn , et l'incertitude de 1% sur la concentration en ^{55}Mn .

La précision statistique du nombre de captures par proton, Mn/p, est donc :

$$\left(\frac{\Delta(\text{Mn/p})}{\text{Mn/p}} \right)^2 = \left(\frac{\Delta N_p}{N_p} \right)^2 + \left(\frac{\Delta N_c}{N_c} \right)^2$$

V 4 - Résultats expérimentaux

Le tableau VI présente l'ensemble des résultats expérimentaux avec les incertitudes statistiques correspondantes. L'erreur systématique est obtenue en combinant quadratiquement les différentes sources, puisque celles-ci sont indépendantes entre elles. Elle est de 3,75% en dessous de 1 GeV, et de 10,5% au-dessus. Les mesures effectuées en mai 1996 à faible concentration de sulfate de manganèse ont été renormalisées sur celles à plus forte concentration effectuées par la suite. Dans le domaine concerné, la réponse est linéaire, et on a utilisé le rapport des concentrations, 1.9822, pour cette renormalisation.

Le nombre de captures par proton dans le manganèse est présenté sur la figure 4 en fonction de l'énergie des protons incidents pour les cibles de plomb et de tungstène avec manchon. Dans la limite de la précision statistique, on observe une variation linéaire pour les cibles massives. Pour la cible de tungstène à plaques séparées, une dépendance quadratique se dégage plutôt des résultats expérimentaux. Les ajustements correspondants sont les courbes continues qui apparaissent sur la figure 4.

Tableau VI : Ensemble des résultats expérimentaux pour le nombre de captures neutroniques par proton.

Ep, MeV	400	800	1200	1600	2000
cibles					
avec manchon					
Pb ø25 cm	0.1141 ± 0.0028	0.3378 ± 0.0103 0.3421 ± 0.0093		0.8291 ± 0.0188	1.1448 ± 0.0293
W ø15 cm massif	0.0662 ± 0.0016	0.2013 ± 0.0068 0.2159 ± 0.0045		0.5198 ± 0.0105 0.5259 ± 0.0113	0.7026 ± 0.0150 0.6612 ± 0.0151
W ø15 cm plaques		0.2886 ± 0.0055	0.5019 ± 0.0093	0.6835 ± 0.0127	0.8329 ± 0.0156
sans manchon					
Pb ø25 cm		0.3508 ± 0.0078			0.9443 ± 0.0244
Pb ø10 cm		0.3118 ± 0.0069			0.6933 ± 0.0191
Fe ø10 cm		0.1462 ± 0.0071			

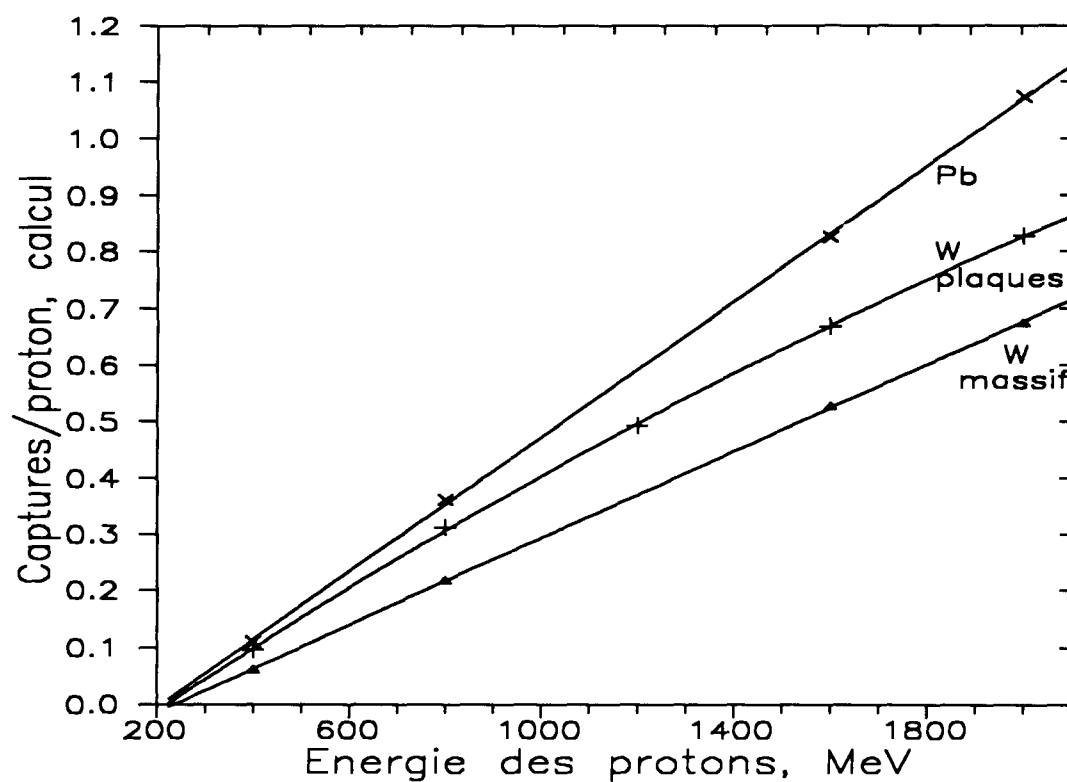


Fig. 4 : Résultats expérimentaux avec ajustements pour le nombre de captures par proton dans le manganèse.

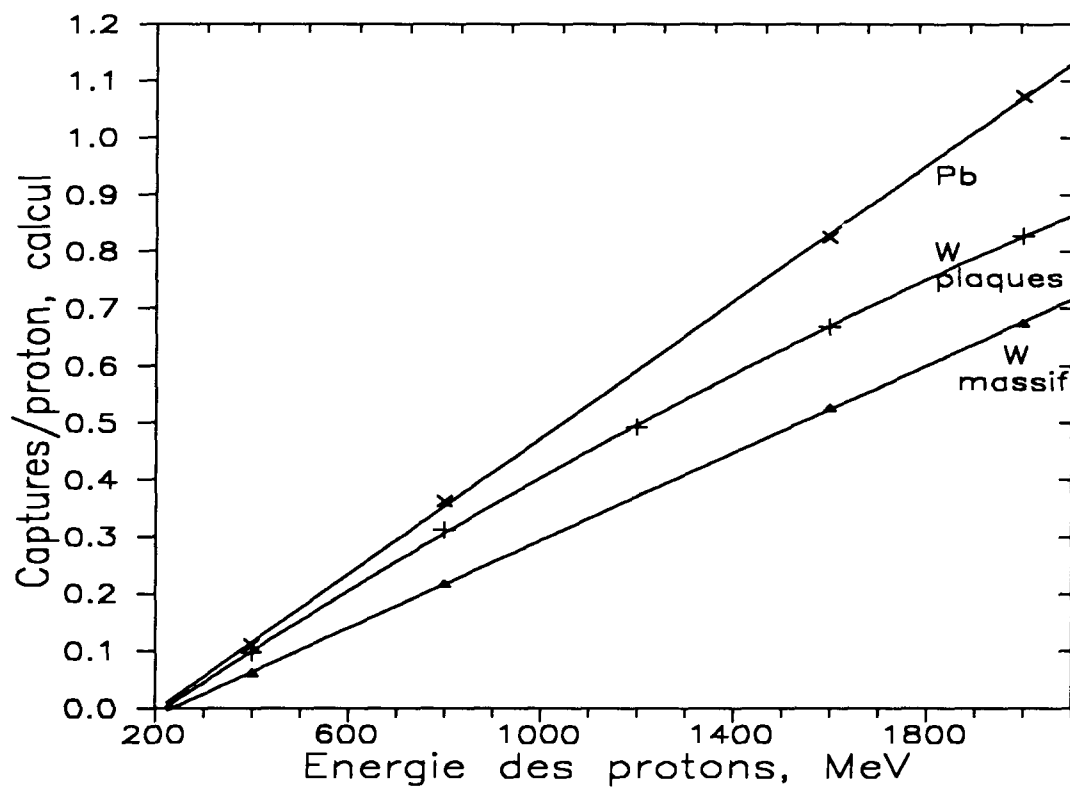


Fig. 5 : Résultats du calcul TIERCE avec ajustements pour le nombre de captures par proton dans le manganèse.

VI - SIMULATION DE L'EXPERIENCE ET DISCUSSION

VL1 - Généralités

L'ensemble de l'expérience a été simulé à l'aide du système de codes TIERCE [6]. Une présentation synthétique des principaux résultats est donnée dans le tableau VII. On trouve successivement le nombre total de neutrons créés, la fraction des neutrons qui quittent le détecteur au cours du transport (d'énergie supérieure à 20 MeV pour HETC, et d'énergie inférieure à 20 MeV pour MCNP), le taux de multiplication des neutrons par réaction (n, xn) dans MCNP, qui reflète la dureté du spectre en énergie des neutrons. On donne ensuite la fraction des neutrons capturés dans les différents matériaux constitutifs de la cible et du détecteur, ainsi que le nombre de captures par proton dans le manganèse, Mn/p , dont on rappelle la valeur expérimentale (valeur moyenne lorsqu'il y a plusieurs points de mesure).

VL2 - Comparaison calcul-expérience

Le nombre de captures par proton calculé pour les différentes cibles avec manchon est porté en fonction de l'énergie des protons incidents sur la figure 5. On observe des caractéristiques similaires aux résultats expérimentaux : Dépendance linéaire pour les cibles massives de plomb et de tungstène, dépendance quadratique pour la cible à plaques de tungstène séparées. Les ajustements correspondants sont portés sur la figure sous forme de courbes continues. La qualité des ajustements reflète la bonne précision statistique des calculs qui utilisent la méthode de Monte Carlo.

Ces ajustements sont reportés sur la figure 6 en même temps que les points expérimentaux. Pour la cible de plomb, l'accord est excellent, sauf pour la mesure à 2 GeV. En se reportant au tableau IV, on constate que le nombre d'atomes par cm^2 de la feuille d'aluminium utilisée pour la détermination du nombre de protons incidents est particulièrement faible, environ 4% en dessous de la valeur moyenne pour toutes les feuilles. Cette faible densité n'est pas incompatible avec la précision annoncée pour l'épaisseur des feuilles ($0,3 \pm 0,02$ mm), mais n'est peut-être pas représentative de la densité locale au centre de la feuille, au point d'impact des protons incidents.

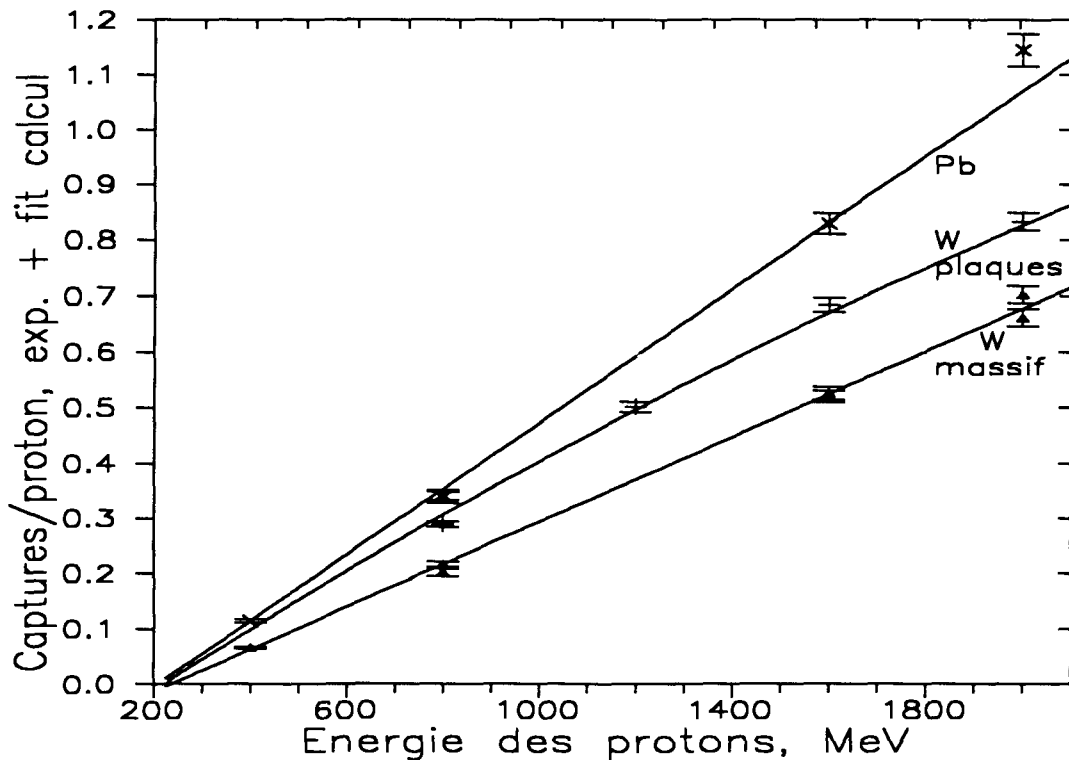


Fig. 6 : Résultats expérimentaux superposés aux ajustements du calcul TIERCE pour le nombre de captures par proton dans le manganèse.

L'accord est également bon pour la cible massive de tungstène. Cependant, des premiers calculs donnaient des résultats environ 25% supérieurs aux résultats expérimentaux. C'est d'ailleurs cet écart initial qui a justifié les mesures effectuées en octobre 1996 sur la cible de tungstène à plaques séparées. En fait, dans ces premiers calculs, la description de la cible était incomplète : Les supports de nylon du tube porte-cible (fig. 3) avaient été ignorés. Malgré son volume relativement peu important, cette matière hydrogénée, placée à proximité du matériau très capturant qu'est le tungstène, joue un rôle très important dans le transport des neutrons.

L'accord est encore bon pour la cible de tungstène à plaques séparées. Cependant, la valeur expérimentale est environ 8% en dessous de la valeur calculée à 800 MeV. A cette énergie, la majorité des neutrons de spallation sont produits dans les plaques de tungstène. Ils s'en échappent facilement pour venir interagir avec le manchon de plomb : L'épaisseur de matériau lourd sur leur trajet est donc réduite. A plus haute énergie, une proportion de plus en plus importante de neutrons est créée dans le culot de plomb, et on se retrouve dans les conditions d'une cible très épaisse pour le transport des neutrons.

Un effet similaire est observé pour les cibles de plomb et de tungstène sans manchon, d'autant plus prononcé que le diamètre de la cible est faible. Il y a donc un problème de transport dans le calcul, qui s'estompe quand les dimensions latérales de la cible augmentent. L'effet apparent est un libre parcours moyen trop faible dans la cible pour les neutrons et les protons rapides (trop de neutrons secondaires créés sous faible diamètre de cible, effet de saturation pour des cibles plus grosses). Cela est qualitativement compatible avec l'ensemble des résultats expérimentaux, mais on sait par ailleurs que les sections efficaces de réaction sont au contraire généralement sous-estimées dans HETC par rapport aux données expérimentales [9].

Il faut plutôt mettre en cause la distribution angulaire des particules dans la cible. Si les neutrons et particules chargées de spallation ont, dans le calcul, une distribution trop pointée vers l'avant (dans la direction de la particule incidente), ils vont traverser une plus grande épaisseur de cible, et donc créer plus de neutrons secondaires qu'en réalité. Cet effet s'estompe dès que le rayon de la cible devient comparable ou supérieur au libre parcours moyen des particules. On s'attend à un effet similaire si la dispersion angulaire des protons incidents est sous-estimée au cours de leur transport dans la cible. Il faut noter que la diffusion élastique

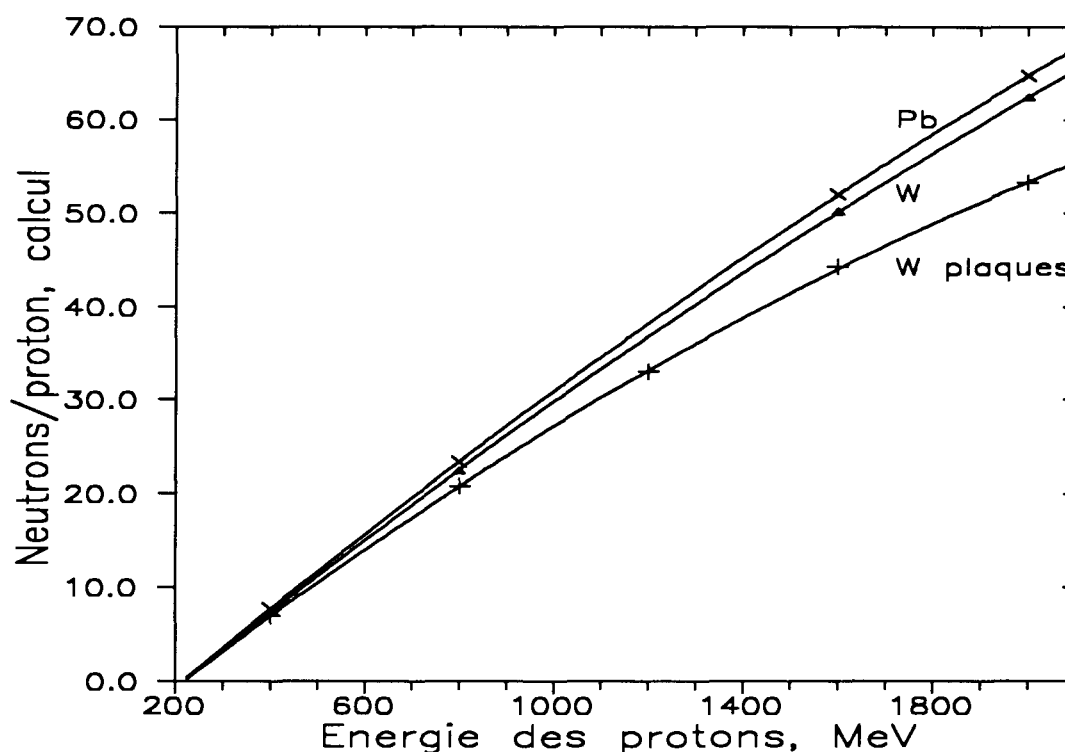


Fig. 7 : Résultats du calcul TIERCE avec ajustements pour le nombre de neutrons créés par proton.

Tableau VII : Présentation synthétique des résultats de la simulation de l'expérience avec le code TIERCE.

Ep, MeV	neutrons (total)	fuites, %		n,xn MCNP	Captures, %						Mn/p		
		HETC	MCNP		H	C+O+S	Al	Mn	Pb	W (Fe)	calc.	exp.	
400.	7,711	0,231	0,114	1,041	76,681	0,353	5,379	1,417	15,825	0,000	0,1100	0,1141	Plomb Ø 25 cm avec manchon
800.	23,389	0,333	0,167	1,047	77,183	0,370	5,308	1,537	15,103	0,000	0,3619	0,3400	
1600.	52,083	0,374	0,212	1,065	77,695	0,432	5,268	1,575	14,445	0,000	0,8256	0,8291	
2000.	64,738	0,404	0,172	1,080	77,424	0,405	5,277	1,647	14,671	0,000	1,0734	1,1448	
400.	7,360	0,238	0,116	1,045	55,050	0,326	4,211	0,836	10,339	28,885	0,0619	0,0662	Tungstène massif Ø 15 cm + manchon
800.	22,451	0,314	0,158	1,064	55,331	0,378	4,260	0,960	10,275	28,324	0,2169	0,2086	
1600.	50,276	0,369	0,131	1,085	55,998	0,430	4,233	1,044	10,169	27,626	0,5275	0,5230	
2000.	62,426	0,377	0,088	1,090	56,035	0,455	4,279	1,075	9,954	27,736	0,6758	0,6819	
400.	6,902	0,362	0,191	1,037	67,430	0,471	5,210	1,389	11,570	13,377	0,0965		Tungstène plaques Ø 15 cm + manchon
800.	20,787	0,708	0,277	1,052	69,254	0,523	5,217	1,491	11,114	11,417	0,3121	0,2886	
1200.	33,033	0,858	0,325	1,056	69,315	0,496	5,238	1,483	11,200	11,085	0,4932	0,5019	
1600.	44,308	1,008	0,384	1,076	70,635	0,547	5,279	1,500	10,681	9,966	0,6692	0,6835	
2000.	53,338	1,083	0,467	1,073	70,606	0,629	5,154	1,542	10,477	10,042	0,8279	0,8329	
800.	20,483	0,963	0,407	1,040	87,386	0,817	6,280	1,872	2,275	0,000	0,3859	0,3508	Plomb Ø 25 cm
2000.	54,601	1,191	0,290	1,059	86,895	1,025	6,311	1,960	2,329	0,000	1,0772	0,9443	
800.	17,544	1,695	0,872	1,025	87,706	1,436	5,957	1,890	0,444	0,000	0,3332	0,3118	Plomb Ø 10 cm
2000.	44,347	2,447	0,801	1,039	86,800	1,976	5,613	1,940	0,423	0,000	0,8578	0,6933	
800.	7,349	4,749	1,223	1,015	80,987	2,392	5,098	1,891	0,031	(4,081)	0,1388	0,1462	Fer Ø 10 cm

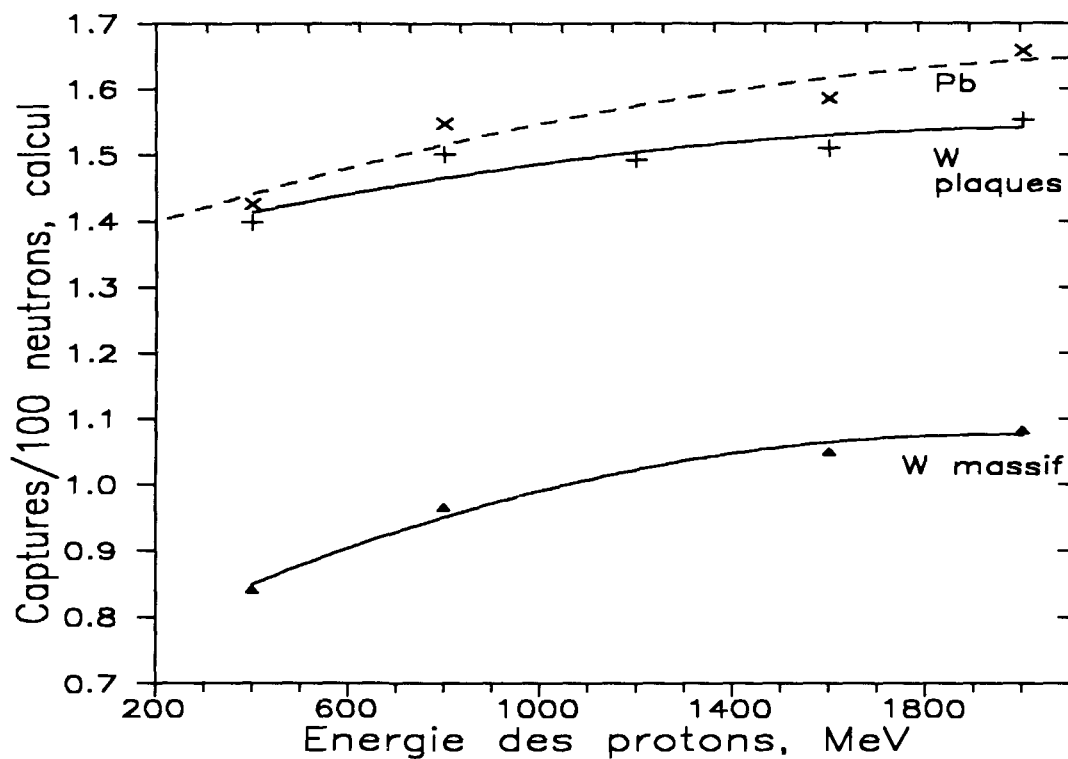


Fig. 8 : Résultats du calcul TIERCE avec ajustements pour le nombre de captures dans le manganèse.

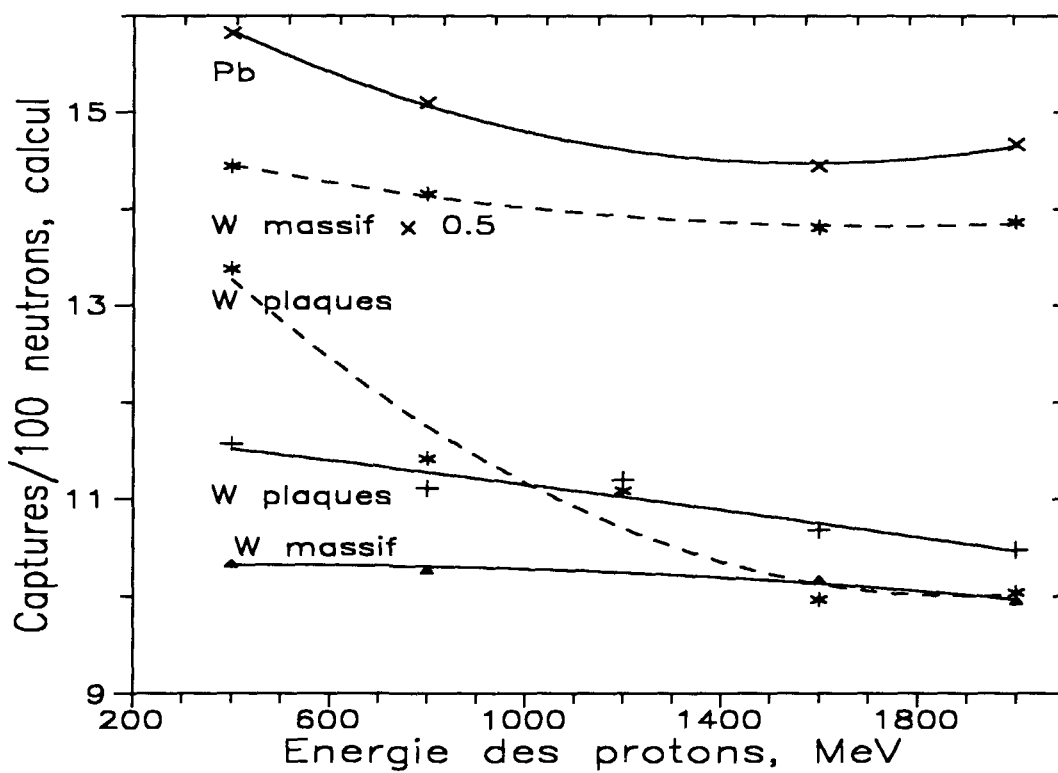


Fig. 9 : Résultats du calcul TIERCE avec ajustements pour le nombre de captures dans le plomb (lignes continues) et le tungstène (tirets).

nucléaire des particules chargées et des neutrons, qui conduit à un élargissement des distributions angulaires, n'est pas prise en compte dans HETC.

Le résultat de la simulation pour la cible de fer sans manchon est par contre tout à fait compatible avec l'expérience. Cela est d'autant plus surprenant qu'a priori la cascade intranucléaire dans le code HETC est mieux adaptée au traitement des noyaux de masse atomique élevée, comme le tungstène et le plomb. Néanmoins, les premières simulations des mesures doublement différentielles, en angle et en énergie, effectuées à SATURNE pour la production de neutrons par différentes parties de cibles épaisses [10] confirment que l'accord est bien meilleur pour le fer que pour le plomb ou le tungstène.

Les mesures doublement différentielles, en angle et en énergie, de la production de neutrons pour des cibles minces et épaisses de divers matériaux récemment réalisées à SATURNE et la présente mesure, plus intégrale, fournissent un ensemble de résultats tout à fait complémentaires qui constitue une base assez complète pour la qualification et l'amélioration des codes de calcul.

VL3 - Résultats complémentaires

La figure 7 présente le résultat des calculs pour le nombre de neutrons créés par proton dans les cibles avec manchon, pour lesquelles l'accord avec l'expérience est en général satisfaisant, comme nous l'avons vu. La cible massive de tungstène produit presque autant de neutrons que celle de plomb, mais une fraction importante de ces neutrons est capturée dans la cible elle-même. Les neutrons sortent mieux de la cible de tungstène à plaques séparées, mais le prix à payer est une diminution d'environ 15% de la production de neutrons. De façon plus générale, on retrouve l'effet de seuil en énergie incidente pour la production de neutrons, aux environs de 250 MeV, et un déficit à haute énergie par rapport à une croissance linéaire, lié à la production de pions.

La figure 8 montre que la fraction des neutrons capturés par le manganèse dépend de l'énergie des protons incidents. Cette dépendance est moins marquée pour la cible de tungstène à plaques séparées. On observe une dépendance complémentaire (figure 9) pour la fraction de neutrons capturés dans le plomb et le tungstène. En dessous du GeV, il faut des ensembles cible-manchon de plus faible diamètre pour optimiser la sortie des neutrons. De ce point de vue, la cible de tungstène à plaques séparées apparaît assez bien optimisée à toutes les énergies. Les captures dans l'hydrogène, l'oxygène et le soufre varient comme les captures dans le manganèse. Les captures dans l'aluminium, présent dans différentes parties du détecteur, ne dépendent pas de l'énergie des particules incidentes.

REFERENCES

- [1] - F. Borne et al., Nucl. Inst. Meth. A385(1977)339.
E. Martinez et al., Nucl. Inst. Meth. A385(1977)345.
- [2] - X. Blanchard et al., Proc. 2nd International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Suède, 1996, p. 543.
- [3] - G. Morgan et al., Proc. 1st International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, USA, 1994, p. 682.
- [4] - H. Goldstein et al., Actes de la 2^{ème} Conférence Internationale des Nations Unies sur l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques, Genève, 1958, vol. 7, p. 740.
- [5] - J. Salmon et al., « Théorie cinétique des neutrons rapides », publication INSTN, 1961, p. 232.
- [6] - O. Bersillon et al., Proc. 2nd International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Suède, 1996, p. 520.
- [7] - R. E. Prael, H. Lichtenstein, « The LAHET Code System », Rapport LA-UR-89-3014, 1989.
- [8] - J. Tobailem et al., Notes CEA-N-1466(1), 1971, et CEA-N-1466(5), 1981.
- [9] -R. E. Prael, M. B. Chadwick, Proc. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, 1997, p. 1449.
- [10] - S. Ménard, Thèse, Université de Paris XI, 1998, communication privée.