



**HAL**  
open science

**Dans le cadre du nouveau cycle de combustible  
 $^{(232)}\text{Th}/^{(233)}\text{U}$ , détermination de la section efficace de  
capture radiative  $^{(233)}\text{Pa}(n,\gamma)$  pour des énergies de  
neutrons comprises entre 0 et 1 MeV**

Sebastien Boyer

► **To cite this version:**

Sebastien Boyer. Dans le cadre du nouveau cycle de combustible  $^{(232)}\text{Th}/^{(233)}\text{U}$ , détermination de la section efficace de capture radiative  $^{(233)}\text{Pa}(n,\gamma)$  pour des énergies de neutrons comprises entre 0 et 1 MeV. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2004. Français. NNT: . tel-00009062

**HAL Id: tel-00009062**

**<https://theses.hal.science/tel-00009062>**

Submitted on 20 Apr 2005

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THESE

Présentée à

**L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX I**

Ecole Doctorale de

**SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGENIEUR**

Par

**Sébastien BOYER**

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**

Spécialité : Noyaux, Atomes, Agrégats, Plasmas

---

**Dans le cadre du nouveau cycle de combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ ,  
détermination de la section efficace de capture radiative  $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$   
pour des énergies de neutrons comprises  
entre 0 et 1 MeV**

---

Soutenu le jeudi 21 octobre 2004

Après avis de MM :

B. BERTHIER,	Directeur de recherche, CNRS	Rapporteurs
H.DOUBRE,	Professeur, Université de Paris XI	

Devant la Commission d'Examen formée de :

Mme M.M. ALEONARD	Professeur, Université Bordeaux I	Président
M. G. BARREAU	Directeur de recherche, CNRS	Rapporteur
M. B. BERTHIER	Directeur de recherche, CNRS	
Mme D. DASSIÉ	Directeur de recherche, CNRS	Directeur de thèse
M. H. DOUBRE	Professeur, Université Paris XI	
M. F. MARIE	Physicien, CEA-Saclay	



# Remerciements.

*A travers ces quelques lignes j'aimerais remercier les personnes qui ont contribué de près ou de loin à la rédaction de ce mémoire.*

*Que M. Pierre Aguer et son successeur M. Bernard Haas directeurs du Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan trouvent ici l'expression de mes remerciements les plus sincères pour m'avoir accueilli et permis de bénéficier des meilleures conditions pour la réalisation de ma thèse.*

*Je tiens à remercier la région Aquitaine et le CNRS pour l'appui et le soutien financier apportés pour la réalisation des expériences mais aussi via l'attribution d'une bourse BDI dont j'ai bénéficié.*

*Je remercie MM. Bernard Berthier et Hubert Doubre qui ont accepté de juger ce travail en qualité de rapporteurs. Qu'ils trouvent ici l'expression de ma profonde reconnaissance.*

*Je remercie l'ensemble des membres du jury pour leurs concours dans l'achèvement de ce mémoire.*

*J'adresse mes plus vifs remerciements à Mme Danielle Dassié en sa qualité de directeur de thèse pour son attention et son soutien tout au long de ces trois fructueuses années passées à ses côtés. Sa rigueur scientifique et ses compétences ont été pour moi sources de connaissances. Toujours présente pour répondre à mes questions et interrogations j'ai pu apprécier ses nombreuses qualités humaines au cours de notre étroite collaboration. Les corrections ont été parfois sujettes à d'âpres discussions dans un esprit objectif et constructif. Veuillez recevoir ici encore, mes remerciements les plus sincères pour votre présence et votre chaleur humaine.*

*J'aimerais une nouvelle fois remercier M. Bernard Haas, qui au même titre que Mme Dassié a apporté sa contribution à la réalisation de ce travail. Malgré les lourdes tâches de directeur*

*d'unité qui lui incombaient, il a su également garder un œil sur mes travaux et rester à l'écoute. J'ai pu ainsi bénéficier de toute son expérience de physicien passionné qu'il est.*

*Merci d'avoir pris le temps de lire ce mémoire à maintes reprises avec rigueur et attention afin de permettre son amélioration.*

*Une mention spéciale à M. André Guiral, pour son aide précieuse durant ces trois années. J'ai énormément appris à tes côtés DD, merci pour ta disponibilité et ta gentillesse de tous les jours. Tes connaissances et ta capacité à résoudre les problèmes techniques sont tout bonnement fantastiques !! De quelle planète viens-tu?*

*J'aurais été le dernier doctorant avec lequel tu as collaboré et ceci restera pour moi un honneur. Il ne me reste plus qu'à te souhaiter une excellente retraite bien méritée.*

*J'exprime ma profonde reconnaissance aux membres du groupe ACEN de Bordeaux, sans oublier les « parisiens » du DAPNIA et le LPSC de Grenoble. Spéciale dédicace au soliste Christophe Theisen qui est aussi à l'aise avec ses cartes VXI qu'avec son saxophone ou l'inverse... De même pour Jonathan Wilson avec qui la collaboration a été des plus agréables au cours de sa visite en terres bordelaises.*

*Je voudrais associer à ces remerciements tout le personnel du Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan pour son accueil chaleureux et sa gentillesse. Un grand, grand merci aux schtroumpfs de l'atelier pour leur formidable contribution dans la réalisation du dispositif expérimental de Gemini. Merci à Franck Delalée (représente le 64 !!) et Gérard Brut du bureau d'étude pour la coordination et la conception. Merci au schtroumpf costaud Fafa Mesples Carrère pour son aide supplémentaire à Orsay. Je n'oublie pas Eliane Virassamynaïken du service des cibles du CENBG pour son concours et sa gentillesse et William « Billy » Ducourneau pour nos petites discussions du vendredi midi...*

*Une pensée toute particulière à mes parents et à ma famille qui m'ont soutenu durant ces années d'étude. Merci de m'avoir permis de profiter de cette aventure.*

*Je pense également à Mme Marie-Claude Del Agua qui m'a pour ainsi dire transmis sa passion il y a maintenant quelques années de cela....*

*Je terminerai par une spéciale dédicace aux ami(e)s présent(e)s dans mon proche environnement et qui ont fait accroître mon efficacité (cf. chapitre 2).*

*Merci au club de Baseball / Softball des Panthères de Pessac pour votre accueil et pour tout ce que m'avez donné (Que de km parcourus !!! Merci en particulier pour les deux bordereaux tricolores et les médailles qui vont avec...).*





# Table des matières.

<b>Introduction</b> .....	<b>5</b>
---------------------------	----------

<b>1. Energie nucléaire, contexte et problématique générale</b> .....	<b>7</b>
---	----------

1.1 L'énergie d'origine nucléaire: contexte actuel.....	8
1.1.1 La filière UOX/MOX.....	9
1.1.2 La gestion des déchets.....	12
1.1.3 Les programmes de recherche sur l'aval du cycle et la production d'énergie ...	14
1.2 Quid du futur? .....	15
1.2.1 Contexte énergétique général.....	15
1.2.2 Vers une consommation accrue .....	17
1.2.3 Energie et répercussions sur l'environnement écologique et climatique .....	18
1.3 Les solutions proposées pour un nucléaire durable.....	21
1.3.1 Vers les réacteurs de quatrième génération .....	21
1.3.2 Les projets RNR et RHT .....	21
1.3.2.1 Les réacteurs à neutrons rapides RNR .....	21
1.3.2.2 les réacteurs à haute température (RHT).....	23
1.3.3 Les principaux concepts développés par le CNRS autour de la filière thermique $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .....	25
1.3.3.1 Les systèmes hybrides (ADS).....	25
1.3.3.2 Les réacteurs à sels fondus (RSF).....	26
1.4 Le cadre de ce travail.....	27



<b>2. Aspect expérimental</b>	<b>33</b>
2.1 Introduction	34
2.2 Choix et étude préliminaire d'un détecteur de neutrons et de photons	35
2.2.1 Choix du détecteur : le $C_6D_6$	35
2.2.2 Caractéristiques de ce détecteur	35
2.2.3 Campagne d'étude au CENBG	39
2.2.3.1 Réponse et efficacité en fonction de l'énergie gamma	39
2.2.3.2 Simulation de la réponse	44
2.2.3.3 Comparaison expérience/simulation	46
2.2.4 Première approche des fonctions de poids	49
2.2.4.1 Construction de la matrice de réponse	51
2.2.4.2 Obtention de la fonction de poids	53
2.2.4.3 Simulation d'une réaction de capture ( $n,\gamma$ )	56
2.3 Expérience GEMINI 2003	63
2.3.1 Etude préliminaire	63
2.3.1.1 Contraintes expérimentales	63
2.3.1.2 Le couple cible/projectile	64
2.3.1.3 Cinématique des réactions de transfert	65
2.3.2 La détection de particules : contraintes et dispositif	67
2.3.2.1 Fonctionnement d'un télescope	68
2.3.2.2 Identification de la nature des particules	68
2.3.2.3 Dispositif expérimental utilisé	69
2.3.2.4 Résolution en énergie des télescopes	70
2.3.3 La détection de rayonnements gamma : contraintes et dispositif	71
2.3.3.1 Discrimination neutron-gamma	71
2.3.3.2 Dispositif expérimental de détection gamma	71
2.3.4 Electronique et acquisition associées	73
2.3.5 Cibles et faisceaux employés	76
2.3.6 Dispositif expérimental final	77

<b>3. Analyse des données</b>	<b>81</b>
3.1 Introduction	82
3.2 Normalisation en temps des fenêtres d'analyse	82
3.3 Etalonnages des détecteurs & efficacités	84
3.3.1 Etalonnage en énergie d'excitation des télescopes	84
3.3.2 Efficacités, fonctions de réponse et étalonnages des détecteurs C <sub>6</sub> D <sub>6</sub> lors de l'expérience GEMINI	87
3.3.2.1 Mesures des efficacités et des fonctions de réponse	87
3.3.2.2 Etalonnage et normalisation en gain des scintillateurs C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	91
3.4 Simulation MCNP	94
3.4.1 Le code MCNP en quelques mots	94
3.4.1.1 Présentation générale	94
3.4.1.2 La technique Monte Carlo	94
3.4.2 Les paramètres des simulations	95
3.4.3 Comparaison expérience/simulations	96
3.5 Construction de la matrice de réponse, détermination des fonctions de poids	100
3.5.1 La matrice totale	100
3.5.2 La minimisation	102
3.6 Analyse de l'expérience <sup>232</sup> Th( <sup>3</sup> He,p) <sup>234</sup> Pa*	104
3.6.1 Expression de la probabilité de capture radiative	104
3.6.2 Plage d'analyse en énergie pour les protons	104
3.6.3 Traitement de la voie simple	106
3.6.4 Traitement de la voie coïncidence	109
3.6.5 Exemple de fonctions de poids: cas du noyau de <sup>234</sup> Pa	111
3.7 Présentation des probabilités expérimentales d'émission gamma	113
3.7.1 Discussion sur les erreurs mises en jeu	113
3.7.2 Contribution des réactions (n,n'γ) et présentation des probabilités expérimentales corrigées	116

<b>4. Interprétation et discussion des résultats</b> .....	<b>121</b>
4.1 Introduction .....	122
4.2 La section efficace de formation du noyau composé $\sigma_{NC}$ .....	123
4.3 Mode de désexcitation du noyau composé sous la barrière de fission .....	126
4.3.1 Désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron .....	126
4.3.2 Désexcitation du noyau composé par émission gamma .....	128
4.4 Présentation des sections efficaces expérimentales de capture radiative .....	130
4.5 Comparaison avec les bases de données et discussion .....	131
4.5.1 Les bases de données à notre disposition .....	131
4.5.2 Comparaison et discussion .....	133
<b>Conclusion</b> .....	<b>135</b>
<b>Annexe</b> .....	<b>139</b>
<b>Bibliographie</b> .....	<b>141</b>
<b>Légende des figures</b> .....	<b>145</b>
<b>Liste des tableaux</b> .....	<b>153</b>

# Introduction.

**D**es ressources en Uranium qui s'appauvrissent, des climatologues aux prévisions alarmistes concernant l'effet de serre et l'accumulation de déchets liés au cycle électronucléaire, tels pourrait-on résumer les acteurs qui composent la problématique actuelle sur l'aval du cycle électronucléaire. Depuis une dizaine d'années maintenant, la communauté scientifique est sollicitée pour apporter aux autorités politiques, d'une part des éléments de réflexion, d'autre part des solutions qui soient convaincantes vis à vis d'une opinion publique souvent réticente concernant la question d'un nucléaire durable.

Il est admis que la consommation énergétique sera multipliée par un facteur 2-3 d'ici à 2050 [BQS02], et donc la question d'un nucléaire du futur reste entière.

Incorporant tous ces paramètres géopolitiques, et tenant compte du rejet du nucléaire que le traumatisme Tchernobyl a engendré au sein de l'opinion publique, il est nécessaire de rechercher de nouvelles filières dont le cahier des charges est centré sur la sûreté et la production en faible quantité de déchets radiotoxiques.

Un des axes de recherche du CNRS dicté par la loi Bataille de 1991, est notamment d'étudier une nouvelle filière nucléaire utilisant un combustible à base de minerai de Thorium ( $^{232}\text{Th}$ ) où le noyau fissile est l' $^{233}\text{U}$ . Le minerai de thorium possède des avantages indéniables comme par exemple une forte abondance dans la croûte terrestre, on parle d'un facteur 4 par rapport aux réserves prouvées en Uranium. Mais son principal intérêt réside dans sa particularité de produire les déchets transuraniens en beaucoup plus faible quantité que la filière Uranium. Cependant, contrairement à cette dernière qui a bénéficié d'une cinquantaine d'années d'études, la filière Thorium nécessite encore des mesures. Son comportement en réacteur, dans un environnement neutronique, doit être parfaitement connu dans l'optique d'un développement à l'échelle industrielle. Certaines sections efficaces importantes concernant ces noyaux sont très mal connues, comme celles relatives au noyau charnière Protactinium 233 ( $^{233}\text{Pa}$ ). Ce noyau joue un rôle particulier dans le cycle du Thorium en raison de sa période de 27 jours.

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

Dans le deuxième chapitre, dans lequel prendra place ce qu'il convient d'appeler l'aspect expérimental, il sera question de présenter l'expérience sur laquelle s'appuie ce mémoire.

Tout d'abord en s'aidant d'une campagne de mesures réalisée au CENBG, nous essayerons de comprendre le fonctionnement du principal détecteur qui conditionnera le dispositif final de l'expérience: un détecteur scintillateur de type  $C_6D_6$ . Nous verrons par la suite les conséquences sur l'analyse qu'engendre le choix d'un tel détecteur, avec notamment une introduction à la détermination des fonctions de poids.

Concernant l'expérience de capture radiative, nous verrons quelles ont été les contraintes techniques et celles liées à la physique, relatives au noyau étudié. Une méthode originale inspirée de Cramer et Britt (1970) a été employée pour former le noyau excité de  $^{234}Pa$  par réaction de transfert à partir d'un noyau de  $^{232}Th$  et ainsi s'affranchir du principal écueil d'une voie directe par neutron sur le noyau de  $^{233}Pa$ , qui est de trop forte activité. Le dispositif expérimental dans son ensemble sera étudié et présenté afin de mieux cerner les enjeux d'une telle expérience comprenant différentes technologies de détection.

Le troisième chapitre de ce mémoire portera sur l'analyse proprement dite des données. Dans cette partie nous expliciterons les contraintes du traitement des données et les outils informatiques utilisés. Une brève présentation du code de simulation MCNP sera faite afin notamment de se familiariser avec les techniques de calculs Monte-Carlo qui sont utilisées pour déterminer les fonctions de poids indispensables à notre analyse. Par la suite, les probabilités de désexcitation gamma expérimentales seront présentées.

Dans le dernier chapitre nous discuterons de la désexcitation du noyau composé dans le régime d'énergie d'excitation où seules les voies de désexcitation neutron ou gamma sont possibles. Nous comparerons les valeurs de sections efficaces expérimentales de capture radiative déterminées aux valeurs reportées dans quelques bases de données les plus couramment utilisées, ainsi qu'aux prédictions d'un calcul récent de modèle de désexcitation statistique du noyau composé  $^{234}Pa$  que notre groupe a réalisé dans le cadre de l'étude de la voie fission.

Puis nous terminerons par une conclusion résumant les points importants de ce travail.

# Chapitre 1.

## Energie nucléaire, contexte et problématique générale.

### Sommaire

---

<b>1.1 L'énergie d'origine nucléaire: contexte actuel</b> .....	<b>8</b>
1.1.1 La filière UOX/MOX .....	9
1.1.2 La gestion des déchets.....	12
1.1.3 Les programmes de recherche sur l'aval du cycle et la production d'énergie ...	14
<b>1.2 Quid du futur?</b> .....	<b>15</b>
1.2.1 Contexte énergétique général.....	15
1.2.2 Vers une consommation accrue .....	17
1.2.3 Energie et répercussions sur l'environnement écologique et climatique .....	18
<b>1.3 Les solutions proposées pour un nucléaire durable</b> .....	<b>21</b>
1.3.1 Vers les réacteurs de quatrième génération .....	21
1.3.2 Les projets RNR et RHT .....	21
1.3.3 Les principaux concepts étudiés par le CNRS autour de la filière thermique $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .....	25
<b>1.4 Le cadre de ce travail</b> .....	<b>27</b>

---

## 1.1 L'énergie d'origine nucléaire : contexte actuel

La production d'énergie d'origine nucléaire ne représente qu'un peu moins de 7 % de la production mondiale qui est d'environ 10 milliards de tonnes équivalent pétrole produites par an. Cette dernière est majoritairement dominée par les énergies fossiles comme le Pétrole (35 %), le Charbon (23,5 %) et le Gaz (21 %) [BAR04]. La puissance électrique correspondante du parc nucléaire installé de par le monde s'élève aujourd'hui à environ 360 GWe. Environ 90 % de ce total, concernent les pays de l'OCDE (Organisation de Coopération et de Développement Economiques), dont la France qui avec un parc de Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) d'une puissance d'environ 60 GWe (58 réacteurs) se trouve être le second producteur mondial d'énergie d'origine nucléaire derrière les Etats Unis, et devant le Japon.

D'un point de vue technologique, plusieurs concepts de réacteurs de fission, bien souvent corrélés à des choix économiques et politiques, ont été adoptés. Néanmoins les réacteurs de type REP et ceux de type REB (Réacteurs à Eau Bouillante), utilisant de l'eau ordinaire comme modérateur et caloporteur, sont les plus répandus dans le monde et représentent 87 % du total de la puissance installée (64 % REP, 23 % REB) [BAR04].

Une autre technologie, développée autour de l'utilisation de l'eau lourde avec deux circuits séparés pour le modérateur et le caloporteur, a vu le jour outre Atlantique avec le concept canadien CANDU (CANadian Deuterium Uranium) et représente quant à elle 6 % du total (~ 20 réacteurs). Les parts restantes se partagent entre des réacteurs Graphite Gaz de conception anglaise et les RBMK russes (Reactor Bolshoy Moshchnosty Kanalny) réacteurs à canaux de forte puissance dont les défauts ont été mis à nu suite à l'accident majeur de Tchernobyl en 1986. A part le CANDU qui fonctionne avec de l'Uranium naturel (0,7 %  $^{235}\text{U}$ , 99 %  $^{238}\text{U}$ ) et le RBMK avec de l'Uranium très faiblement enrichi (2 %  $^{235}\text{U}$ ), les autres concepts sont basés sur l'utilisation d'Uranium enrichi de 3 à 5 % en  $^{235}\text{U}$  sous forme d'oxyde (UOX pour Uranium OXyde) ou avec ajout de Plutonium à travers un mélange d'oxydes (MOX pour Mixed Oxyde, 3 à 4 % de Plutonium). Si l'on prend le cas particulier d'un pays comme la France, les deux types de combustibles sont utilisés, 30 % des réacteurs sont moxés (à 30 %) et 70 % sont au UOX. Ceux-ci permettent la production d'environ 78% de l'électricité, le reste de la production étant assuré par d'autres types d'énergie (hydraulique 12%, pétrole 1%, gaz 2%, charbon 6%, éolien+solaire 1%).

Après cette courte introduction, considérons les principaux éléments qui caractérisent l'énergie d'origine nucléaire, à commencer par son combustible.

### 1.1.1 La filière à l'Uranium : UOX & MOX

L'élément Uranium est présent dans la croûte terrestre à raison de quatre parts par million, sous la forme d'un noyau fissile ( $^{235}\text{U}$ ) et fertile ( $^{238}\text{U}$ ). L'énergie de fission que cela représente est supérieure à celle qui serait contenue dans la croûte terrestre si celle-ci était constituée de charbon pur [CHA97]. La présence à l'état naturel de ces deux isotopes permettait d'envisager l'obtention assez facile d'un combustible. Historiquement, c'est donc la filière à l'Uranium qui la première, a bénéficié d'un développement conséquent, même si dans un premier temps, les moyens mis en jeu étaient principalement stimulés par les programmes militaires de pays soucieux de se doter de l'arme nucléaire. En effet, cette filière permettait la production de Plutonium, élément prépondérant dans la confection de charge nucléaire.

Dans les années 1970, les deux chocs pétroliers associés à l'instabilité politique au Moyen Orient ont mis en relief la menace potentielle pesant sur l'approvisionnement en pétrole. L'énergie d'origine nucléaire offrait la possibilité de générer de l'électricité à un coût total voisin des énergies disponibles alors, et surtout offrait une indépendance énergétique vis à vis du pétrole.

Il est en effet question ici d'une énergie très concentrée. Pour donner un ordre de grandeur, la fission complète d'1g de matière fissile permet de produire 24 000 kWh thermique soit l'équivalent de la combustion complète de 2 tonnes de pétrole et un réacteur de type REP/UOX de 1GWe peut contenir jusqu'à 3 tonnes de  $^{235}\text{U}$ .

Sur la figure (1.1), est représentée la chaîne des actinides formés dans un réacteur fonctionnant avec de l'Uranium.

On notera, au déchargement, la quantité importante d'isotopes du Plutonium dont la production est due à la présence de noyaux fertiles  $^{238}\text{U}$  dans le combustible initial. Nous parlerons un peu plus loin, dans une partie dédiée aux déchets de l'industrie électronucléaire, des conséquences de la présence de certains isotopes des noyaux d'Américium et de Curium, issus respectivement de décroissances  $\beta^-$  successives des noyaux de Plutonium et d'Américium formés par captures neutroniques et de la production de noyaux de  $^{237}\text{Np}$ . Ces noyaux produits au sein même du combustible sont appelés Actinides mineurs en raison de leur faible production par rapport au Plutonium.

La production de produits de fission comme par exemple le Xénon ( $^{135}\text{Xe}$ ) et le Samarium ( $^{149,152}\text{Sm}$ ) que l'on appelle aussi poisons neutroniques [GAI01] en raison de leurs propriétés neutrophages ("effet Xénon" et "effet Samarium") et l'appauvrissement du combustible au sein du réacteur nécessite des déchargements réguliers, par tiers, du combustible, à raison d'un par an (le combustible retiré a donc été irradié pendant trois ans).



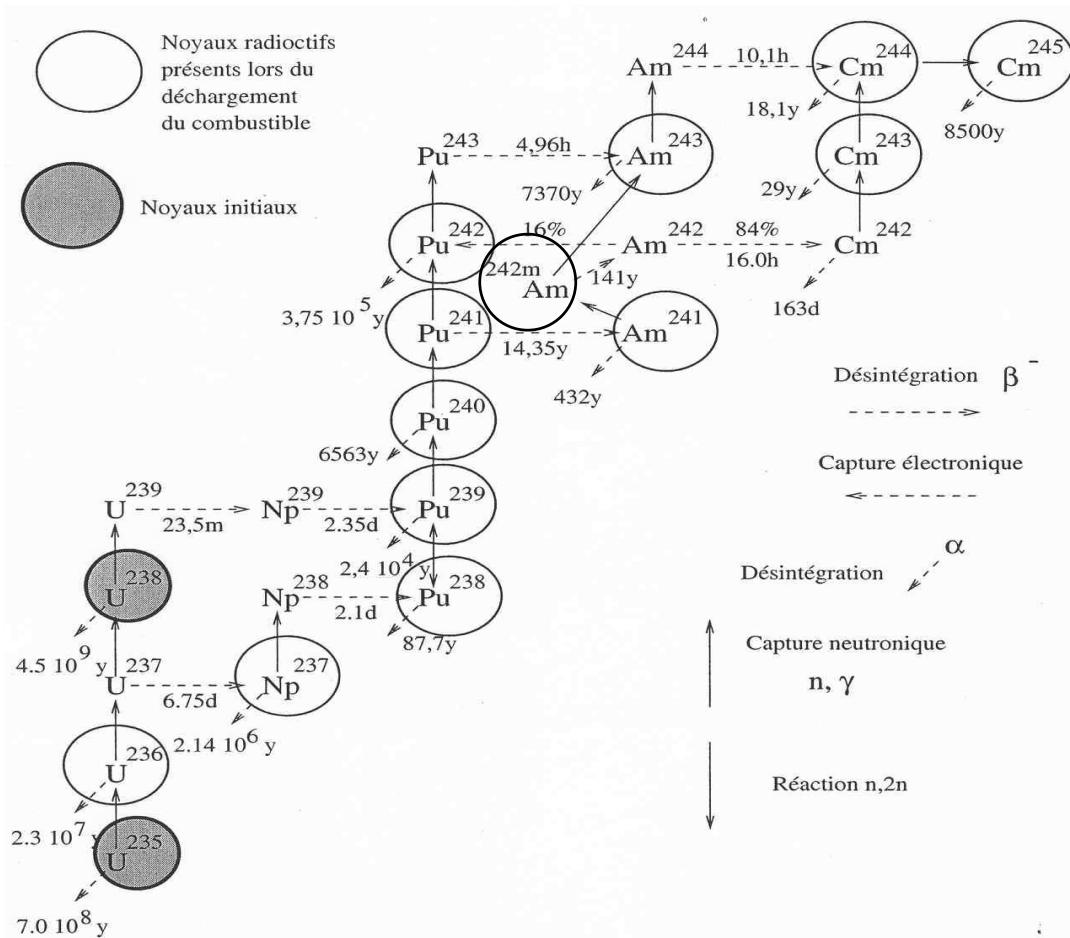


Fig. 1.1: Chaîne des noyaux formés par la filière Uranium.

A titre indicatif, le bilan en masse au déchargement d'un tiers de REP (taux de combustion de 33 000 MWj/t et à 3,5 % d'enrichissement) au bout de trois ans de fonctionnement est porté dans le tableau suivant:

	Masse au chargement (kg/an)	Masse au déchargement (kg/an)
<sup>235</sup> U	751	221
<sup>236</sup> U	-	88
<sup>238</sup> U	20734	20204
<sup>239</sup> Pu	-	123,1
Total Plutonium	-	209
Actinides mineurs	-	16
PF à vie longue	-	50
Total PF	-	745

Tab 1.1: Bilan en masse au déchargement d'un tiers d'un REP (900 MWe) tous les ans après trois ans d'irradiation [SHA96]. Il est supposé un facteur de charge de 70 %, soit une production de 5,52TWh/an.

A la lecture du tableau, on peut se faire une idée de la quantité de Plutonium produit comparativement à celle des Actinides mineurs. L'intérêt de la filière MOX réside dans le recyclage de ce Plutonium, qui de déchet devient combustible. Mais pour des raisons de sécurité, seulement 30 % du combustible au chargement peut être constitué de MOX dans les REP actuels, et seules certaines centrales ont une accréditation pour l'utilisation de ce type de combustible.

L'avantage des filières UOX et MOX réside principalement dans le fait que l'on dispose maintenant d'une cinquantaine d'années de recherche et développement : les données nucléaires concernant le combustible (sections efficaces de fission, de capture radiative ou de réactions induites par neutrons) sont parfaitement connues (précision de quelques %) et servent souvent de référence dans les mesures de sections efficaces de noyaux constituant de nouveaux combustibles. Ces connaissances ont permis de franchir le pas vers l'échelon industriel avec des plans ambitieux de production d'électricité à partir de centrales nucléaires (1977 début de la filière REP française mise en service par EDF)[BAR04b].

Le développement à l'échelle industrielle permet à certains pays possesseurs de la technologie de vendre des centrales "clés en mains" ou de se lancer dans des vastes programmes de construction de bâtiments navals (porte-avions, sous-marins) à propulsion nucléaire qui leur confèrent une autonomie inégalable. Toutefois, il existe des ombres au tableau, et produire de l'énergie d'origine nucléaire nécessite de se pencher sur quelques questions. Trois points peuvent être mis en avant.

Le premier est la sûreté concernant la criticité des réacteurs. La médiatisation de la catastrophe de Tchernobyl et les erreurs de communication des pouvoirs publics de l'époque ont entraîné une forte réticence de la part de l'opinion publique. Aujourd'hui encore de gros efforts de communication sont faits par les grands groupes (EDF/GDF, AREVA etc..) afin de redonner une image plus positive de l'industrie du nucléaire. De plus, la récente escalade dans les attaques terroristes à grande échelle ne fait qu'aggraver ce sentiment de réticence sur les possibilités d'une nouvelle catastrophe.

Le deuxième point pose la question des ressources naturelles en Uranium. Un éventuel essor du nucléaire qui n'utiliserait que 0,7 % du minerai extrait ne paraît plus très réaliste. En effet pour obtenir 28 tonnes de combustible enrichi en  $^{235}\text{U}$  à 3,5 % (1 tonne), il faut extraire pas moins de 100 000 tonnes de minerai brut. Au rythme de consommation énergétique actuelle et pour un taux d'enrichissement de l'ordre de 3%, les ressources prouvées en Uranium, permettraient une exploitation pendant encore environ 120 années, et il s'avère donc urgent de trouver des solutions technologiques qui permettent d'utiliser les ressources naturelles de manière beaucoup plus efficaces (réacteur surgénérateur ou iso générateur).

Le troisième point et non des moindres concerne la gestion des déchets issus du cycle du combustible depuis son extraction de la croûte terrestre jusqu'à son déchargement du réacteur. C'est ce problème que nous allons maintenant discuter.

## 1.1.2 La gestion des déchets

L'exploitation de l'énergie d'origine nucléaire produit des déchets radioactifs d'origine très diverse. Leur quantité, leur volume et leurs caractéristiques dépendent étroitement des opérations effectuées tout au long du cycle du combustible (extraction, enrichissement, combustion...). Il est admis de classer ces déchets suivant deux critères qui sont: leur activité et leur période. Ainsi on distingue quatre grandes "familles" auxquelles sont associés des traitements ou des recyclages différents explicités dans le tableau suivant:

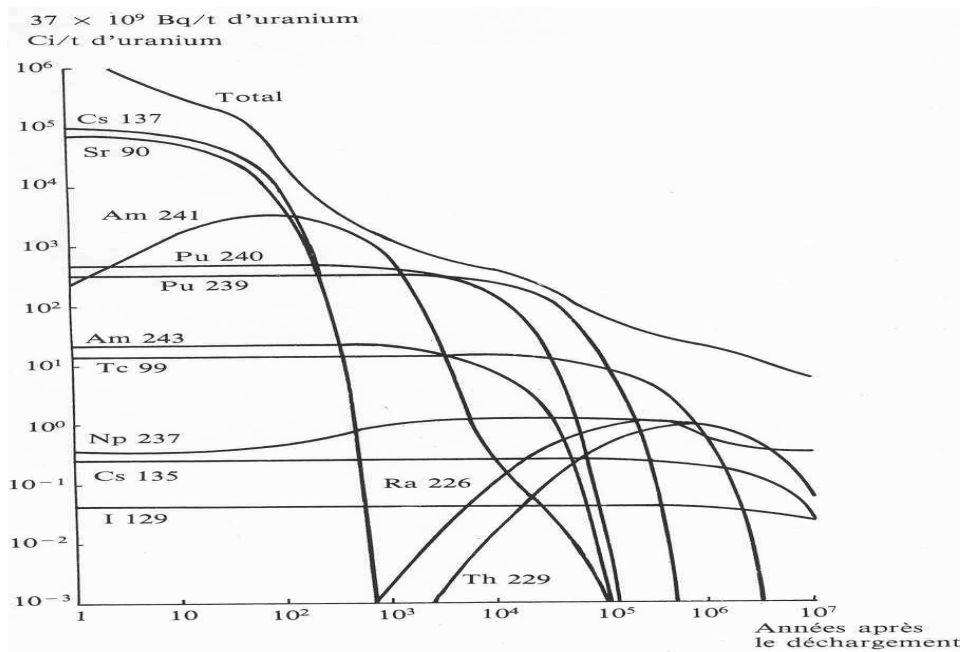
ACTIVITE	"VIE COURTE" (Période < 30 ans)	"VIE LONGUE" (Période > 30 ans)
TFA (< 100 Bq/g)	CENTRE DE STOCKAGE TFA	[Démantèlement : des milliers de m <sup>3</sup> ...]
FA (~ 10 <sup>3</sup> Bq/g)	CSA	A L'ETUDE [Radifères, graphites]
MA (~ 10 <sup>6</sup> Bq/g)	CSA [15 000 m <sup>3</sup> /an]	[Déchets technologiques, ~1300 m <sup>3</sup> /an]
HA (~ 10 <sup>9</sup> Bq/g)	[Déchets vitrifiés, ~ 180 m <sup>3</sup> /an]	

**Tab 1.2:** Classification des déchets radioactifs et type de stockage utilisé ou à l'étude [BOU04]. Les déchets radifères sont des résidus issus des différents traitements chimiques. **TFA**: très faible activité, **FA**: faible activité, **MA**: moyenne activité, **HA**: haute activité, **CSA**: Centre de Stockage de surface de l'Aube (ANDRA)

A titre indicatif, pour un pays comme la France, la production de 80 % de l'électricité par le parc électronucléaire, conduit à 1 kg de déchets radioactifs par habitant et par an dont moins de 10 g de forte activité et de vie longue. Cette quantité est à comparer aux 800 kg de déchets ménagers et aux 2500 kg de déchets industriels produits également en France par habitant et par an, dont 100 kg sont fortement toxiques. [CEA02]

Rien que pour l'opération de déchargement, à peu près 1500 tonnes de déchets sont produites par le parc électronucléaire français annuellement. La majeure partie de ces déchets (95 %) est représentée par l'Uranium résiduel qui n'a pas subi de réaction avec les neutrons. Les cendres des réactions de fission, appelées "résidus de fission" représentent 4 % dont 10 % ont des durées de vie très longue comme par exemple <sup>129</sup>I (2×10<sup>7</sup>ans), <sup>135</sup>Cs (2×10<sup>6</sup>ans) ou <sup>99</sup>Tc (2×10<sup>5</sup>ans). Les autres noyaux produits, suite à des captures de neutrons sur l'Uranium constituent environ 1 % des déchets et sont appelés transuraniens (Pu, Am, Cm, Np) [BOU04].

La figure suivante illustre les décroissances dans le temps des activités des principaux radio nucléides issus d'un déchargement:



**Fig. 1.2:** Décroissance dans le temps de l'activité des principaux radio nucléides dans un combustible de réacteur à eau ordinaire irradié. [CEA86].

Bien que produits en beaucoup plus faible quantité que le Plutonium (20 g/MWe/an contre 250 g/MWe/an pour le Pu dans le cas d'un REP [CEA86]) les actinides mineurs (Np, Am, Cm) constituent au même titre que les produits de fission à vie longue (notés aussi PFVL) une nuisance prépondérante à long terme (fig.1.2). Une attention toute particulière est portée au  $^{237}\text{Np}$  car sa provenance dans les déchets est triple. Il est formé (Fig.1.1) directement dans le combustible lors du fonctionnement du réacteur à partir de deux chaînes issues du noyau de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{238}\text{U}$ . Il apparaît dans le bilan des déchets au déchargement par décroissance  $\alpha$  du noyau  $^{241}\text{Am}$ .

Si l'on se place maintenant d'un point de vue chimique, toutes les colonnes de la table de Mendeliev sont "alimentées" et de ce fait il faut également faire face à un large spectre de propriétés chimiques. Ainsi, la philosophie d'un retraitement efficace s'articule autour d'une réduction maximale du déchet, de son confinement durable et d'un recyclage des matières valorisantes.

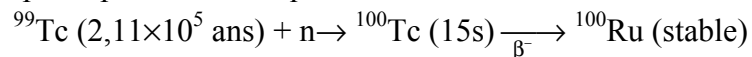
A l'heure actuelle, le procédé PUREX (**P**lutonium **U**ranium **R**efining by **E**Xtraction) développé au Département de Radiochimie des Procédés du CEA Marcoule, permet de séparer d'un combustible usé (après dissolution, extraction et décantation) l'Uranium et le Plutonium des autres radioéléments, à l'aide d'un solvant dont les affinités sont sélectives. Il est possible d'associer au procédé PUREX des traitements chimiques complémentaires qui permettent de séparer du résidu les actinides des produits de fission, on parle alors de séparation poussée. Pour les déchets ultimes obtenus, il faut ensuite rentrer dans une phase de stockage sous forme de colis vitrifié qui dure, pour le moment encore, plusieurs centaines d'années.

C'est dans ce contexte que la loi Bataille datée du 31 décembre 1991, est venue définir trois grands axes de recherche dans le cadre de la gestion des déchets nucléaires en France:

- Recherche des solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans les déchets
- Etude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains (Bure, Tournemire)
- Etude des procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface de ces déchets.

La transmutation étant ici le procédé physique qui consiste, en la transformation d'un noyau d'une durée de vie très longue en un noyau de vie courte.

Ex: Transmutation par capture neutronique.



Depuis une dizaine d'années maintenant, au sein de la communauté scientifique, cette loi a stimulé l'émergence de plusieurs groupements de recherche à l'intérieur desquels les travaux effectués doivent apporter des réponses aux questions posées concernant les déchets. L'ensemble des résultats obtenus devrait ainsi permettre aux politiques de faire des choix judicieux en 2006.

### 1.1.3 Les programmes de recherche concernant l'aval du cycle électronucléaire et la production d'énergie.

Au CNRS, le programme principal qui traite de cette problématique est appelé PACE (**P**rogramme de l'**A**val du **C**ycle **E**lectronucléaire). Il se décline sous plusieurs groupements de recherche en accord avec les trois axes de la loi Bataille et se trouve à la croisée de divers domaines de recherche. Ainsi le groupement PARIS (**P**hysico-**ch**imie des **A**ctinides et autres **R**adioéléments aux **I**nterfaces et en **S**olutions) soutenu par l'ANDRA et EDF est impliqué à la fois dans l'axe 1 et 2 de la loi cadre. NOMADE (**N**Ouveau**M**atériaux pour **D**Echets) est également corrélé avec le premier axe de recherche mais aussi avec le troisième grâce à des partenaires comme EDF, COGEMA, et le CEA. L'axe 2 est le principal axe de recherche pour le groupement FORPRO (**F**ORMations géologiques **P**ROfondes) où encore une fois on retrouve des entités comme l'ANDRA, l'INSU et le ministère de l'éducation par l'intermédiaire du département scientifique pédagogique et technique des sciences de la Terre de l'Univers, et de l'Espace (DSPT 3).

Le groupement GEDEPEON (**G**Estion des **D**Echets et **P**roduction d'**E**nergie par des **O**ptions **N**ouvelles) anciennement GEDEON entre le CNRS, le CEA, EDF et FRAMATOME entre dans le cadre de l'axe 1 et s'investit dans la physique de la transmutation des déchets

avec notamment l'étude d'incinérateur piloté par accélérateur dont nous parlerons plus loin sous l'appellation de systèmes hybrides, et sur le développement de nouvelles filières nucléaires comme par exemple celle basée sur un combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  où le noyau de  $^{232}\text{Th}$  est le noyau fertile et le noyau de  $^{233}\text{U}$  le noyau fissile. C'est donc entre autres sur la partie amont du cycle électronucléaire que certains espoirs sont portés avec des projets qui produiraient beaucoup moins de déchets ce qui faciliterait leur gestion.

Un nouveau paramètre est venu depuis peu s'ajouter à cette problématique générale déjà très complexe, avec la récente prise de conscience des problèmes liés à la nuisance des activités humaines industrielles sur le climat terrestre. Désormais le futur peut fortement contraindre le présent et il est nécessaire de regarder un peu plus loin afin de pouvoir d'ores et déjà amener d'autres éléments de réflexion.

## 1.2 Quid du futur ?

### 1.2.1 Contexte énergétique général

Depuis 1973, date du premier choc pétrolier, la production annuelle mondiale totale des énergies dites primaires n'a pas beaucoup évolué (moins d'un facteur deux). Comme on peut le voir dans le tableau (1.3) les énergies fossiles représentent encore la majeure partie de la production mondiale en 2001, et on peut noter que le Pétrole et le Charbon accusent en pourcentage une légère baisse au profit du Gaz. Le pourcentage d'énergie traditionnelle à l'aide de combustible traditionnel comme le bois reste constant. La part de l'hydroélectrique n'a que très peu augmenté, du fait d'un potentiel naturel totalement exploité.

Sources	1973		2001	
	Gtep	%	Gtep	%
Pétrole	2.72	45.1	3.51	35
Charbon	1.50	24.8	2.34	23.3
Gaz	0.98	16.2	2.13	21.2
Hydroélectrique	0.11	1.8	0.22	2.2
Traditionnel	0.67	11.1	1.09	10.9
Nucléaire	0.05	0.9	0.69	6.9
Renouvelable	0.01	0.1	0.05	0.5
Total	6.04	100	10.03	100

**Tab 1.3:** Evolution de la production annuelle totale mondiale des énergies primaires par sources d'énergie [IEA03] en Gtep ( $10^9$  tonnes équivalent pétrole) et en pourcentage.

Par contre il est intéressant de noter que les énergies d'origine nucléaire et renouvelable (solaire, éolien, géothermique...) sont en augmentation, mais restent néanmoins inférieures à 10 % de la production totale. Nous l'avons déjà dit pour le nucléaire, si c'est un moyen d'indépendance vis à vis d'énergies fossiles, la faible efficacité actuelle dans l'exploitation du minerai et les problèmes liés à la production des déchets radio toxiques tendent à freiner son développement.

En ce qui concerne les énergies renouvelables, en raison des coûts de production et des problèmes non résolus au niveau du stockage de l'énergie sur le long terme (l'investissement d'une installation photovoltaïque par exemple ne s'amortit qu'au bout de 30 ans), il est très difficile d'imaginer ce type de vecteur dans une stratégie de production en masse. Il est plutôt admis de réserver ces sources d'énergie pour des cas très particuliers (comme par exemple l'Islande et la géothermie) et pour des contrées isolées où leur déploiement est tout à fait adapté. Le nucléaire aurait alors par exemple en charge l'approvisionnement des nœuds à forte consommation.

Néanmoins nous pouvons nous interroger sur la question des ressources naturelles puisqu'en définitive environ 80 % de la production d'énergie primaire en 2001 proviennent de sources fossiles.

Le tableau suivant présente les réserves évaluées pour les principales sources d'énergie aux taux d'exploitation et de production actuels.

Source d'énergie	Gtep	Années
Pétrole	150	40
Charbon	430	190
Gaz	130	60
Uranium	80	120

**Tab 1.4:** Ressources énergétiques en Gtep, et en année d'exploitation au taux actuel de consommation [NUT02]

Si on peut trouver d'autres gisements plus profonds ou extraire l'Uranium de l'eau de mer, cela s'accompagnera de fortes répercussions sur les prix de production à partir du moment où les techniques employées sont plus complexes. Par exemple, les réserves en Uranium des océans sont mille fois supérieures aux réserves prouvées des minerais de haute qualité, mais leurs coûts d'extraction seraient quinze fois plus élevés que ceux à partir des minerais. Dans ce cas, l'augmentation du prix de l'électricité serait de 50 % [CHA97].

Rappelons que les chiffres cités plus haut sont des estimations par rapport à un taux d'exploitation actuel et pour un enrichissement de l'ordre de 3 %. En imaginant une hausse de la consommation d'énergie à laquelle pourrait correspondre l'augmentation du nombre de réacteur du parc électronucléaire par rapport à ce qu'il est aujourd'hui, nous comprenons que la situation peut se dégrader davantage. C'est ce dont nous allons discuter dès à présent.

### 1.2.2 Vers une consommation accrue ?

Bien que les scénarii actuels proviennent d'horizons multiples et variés la majorité des prévisionnistes nous indiquent que la consommation d'énergie primaire commerciale devrait environ doubler d'ici 2030, passant de 10 Gtep à 18 Gtep et tripler d'ici 2050, passant à 25 Gtep ou 30 Gtep [BQS02]. Alors qu'actuellement 80 % de la consommation sont représentés par les énergies fossiles, en 2050, dans le meilleur des cas, celles-ci ne représenteront plus que les deux tiers de la consommation d'énergie. Dans la suite du développement nous allons tenter d'amener une explication à cette augmentation de la consommation d'énergie.

Un des scénarii proposés [BQS02], part de la constatation que l'allure de la courbe représentant la croissance démographique mondiale est en chute libre depuis la fin des années 1990 et l'on ne voit pas comment ce phénomène qui touche indifféremment les pays du globe s'inverserait dans les années à venir.

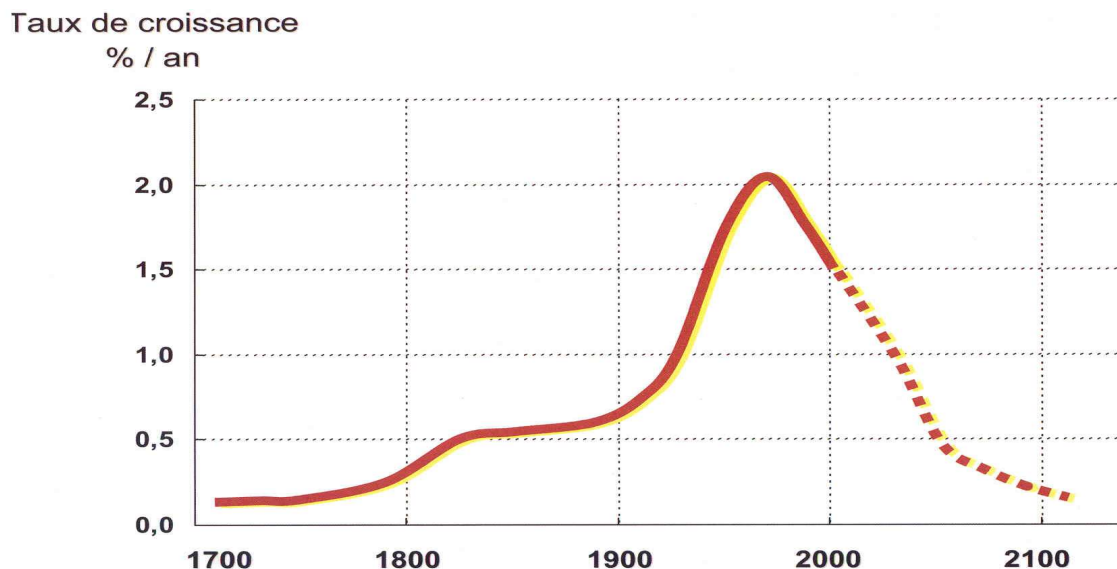


Fig. 1.3: Taux de croissance de la population mondiale en % / an depuis 1700.[BAU04]

Ce n'est donc pas la principale cause conduisant à une hausse de la consommation énergétique sur le long terme.

En revanche, la croissance économique de nouvelles nations émergentes comme la Chine, l'Inde ou le Brésil en plus des actuels pays industriels, devrait contribuer fortement à ce phénomène de hausse de consommation. Malgré des essors technologiques visant à améliorer l'efficacité, la production ou encore la rentabilité de l'énergie, il existe un effet néfaste lié au besoin de transport toujours plus conséquent ou plus simplement un besoin de confort. C'est précisément le cas pour les populations de ces pays dits en voie de développement, qui aspirent à un mode de vie plus sain et à la richesse qui a comme corollaire l'augmentation de



la consommation énergétique. Pour donner un ordre d'idée le tableau suivant illustre cette expansion par régions du globe:

Régions du globe	1973		2001		2030	
	Gtep	%	Gtep	%	Gtep	%
OCDE	3,76	62,3	5,34	53,2	7,2	44
Ancienne URSS	0,87	14,4	0,93	9,3	1,5	9
Chine	0,43	7,2	1,15	11,5	2,28	14
Asie	0,37	6,2	1,15	11,5	2,45	15
Amérique Latine	0,22	3,7	0,45	4,5	1,0	6
Afrique	0,21	3,5	0,51	5,1	1,0	6
Hors OCDE Europe	0,097	1,6	0,10	1,0	0,16	1
Moyen Orient	0,066	1,1	0,39	3,9	0,8	5
Total	6,034	100	10,029	100	16,390	100

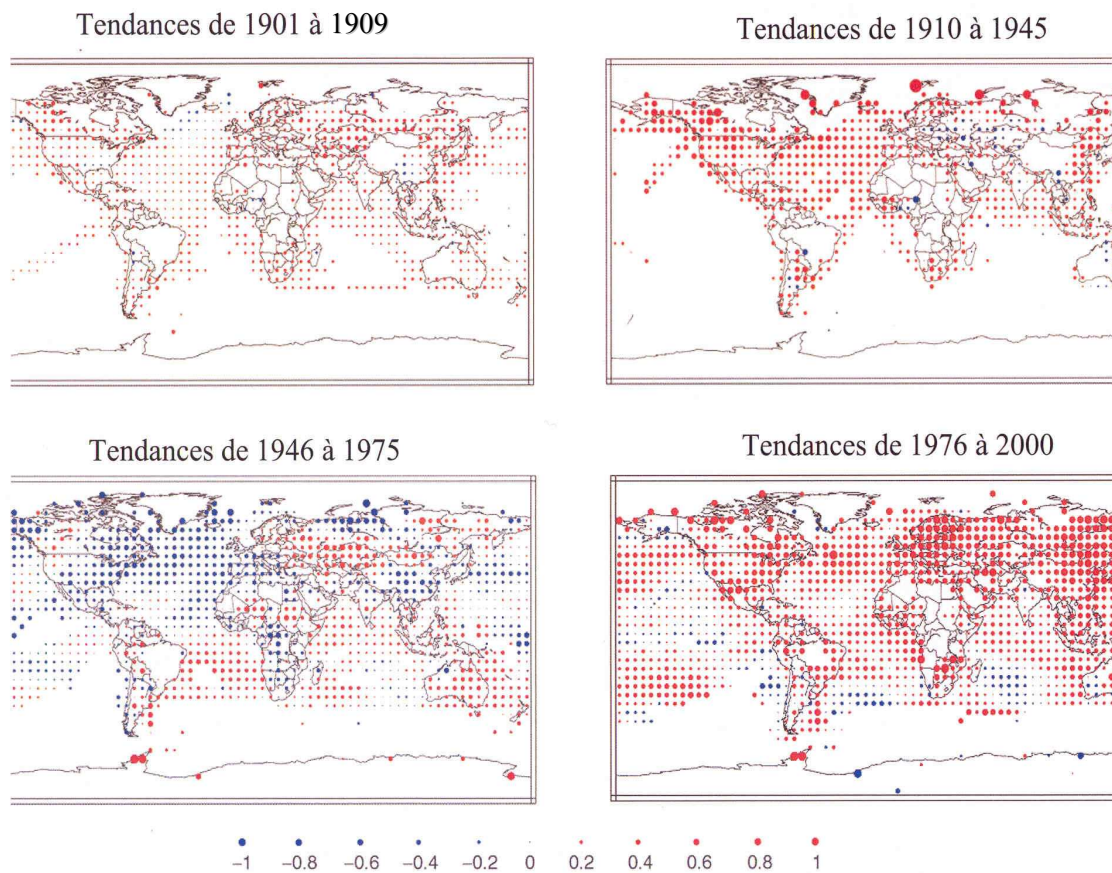
**Tab 1.5:** Evolution et perspectives de la production d'énergie primaire mondiale par régions du globe. Les cas de la Chine et des pays asiatiques (Japon, Corée etc..) sont mis en relief [IEA03].

Il est cependant difficile de se poser en observateur et de freiner la croissance de ces nouvelles économies, bien qu'imiter le développement passé des pays actuellement industrialisés ne soit pas forcément le meilleur exemple à suivre. On calcule que si un pays comme la Chine poursuit son expansion industrielle en consommant son Charbon, tel qu'il le fait actuellement, jusqu'en 2050, les rejets de CO<sub>2</sub> par l'ensemble des pays industrialisés, seront huit fois plus importants que ceux qui sont actuellement rejetés. Le problème reste donc entier et loin d'être résolu.

### 1.2.3 Production d'énergie et répercussions sur l'environnement écologique et climatique

La production d'énergie par l'intermédiaire des gisements fossiles et en règle générale l'activité humaine entraînent des rejets majoritairement sous forme gazeuse dont le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) est le principal composant. Soumises à un suivi très strict, des mesures par forage des glaces polaires, ont démontré que depuis maintenant plus d'un siècle la concentration en CO<sub>2</sub> a augmenté de 25 % passant de 280 ppmv (part par million en volume) à 380 ppmv de nos jours [JAN03]. Sans le concours de la biosphère et des océans qui captent environ la moitié de ce CO<sub>2</sub> émis, cette augmentation serait deux fois plus forte si tout le CO<sub>2</sub> restait dans l'atmosphère. La principale conséquence de cette hausse est un accroissement de l'effet de serre de l'atmosphère qui a tendance à déséquilibrer le bilan énergétique de la Terre

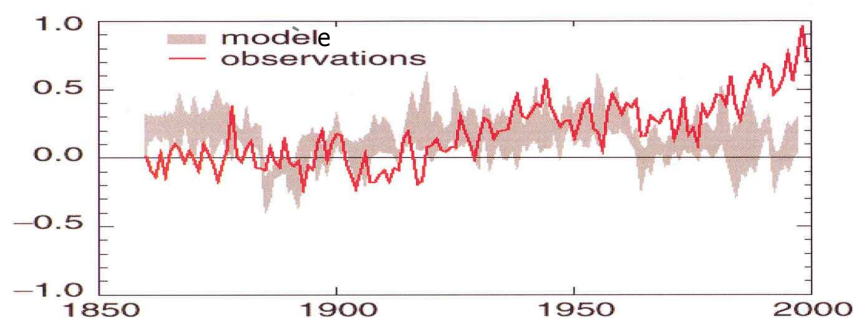
(courant, vent, température etc..) et à modifier son climat. Comme nous l'avons déjà souligné, les décisions et les choix pris en matière d'énergie aujourd'hui conditionneront le climat du futur. Néanmoins des répercussions sont d'ores et déjà visibles, notamment au niveau des fluctuations de la température à la surface de la planète.



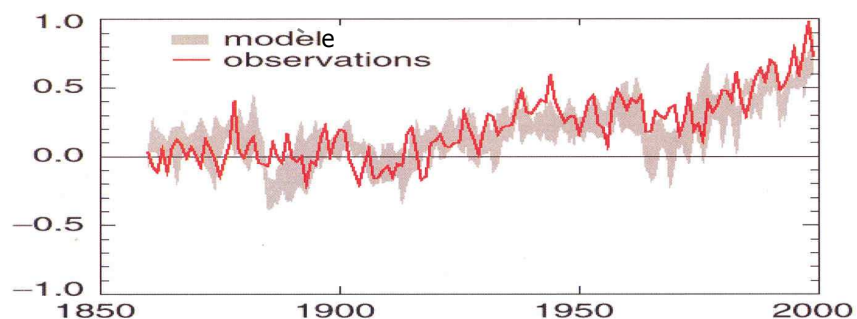
**Fig. 1.4:** *Tendances dans les fluctuations de la température terrestre entre 1901 et 2000 [DUF04]*

L'effet de serre est un phénomène naturel dû principalement à la vapeur d'eau (55 %) et au CO<sub>2</sub> (40 %) qui permet l'équilibre climatique. Sans celui-ci, la température à la surface du globe serait d'environ -20 °C. Le climat est un système fortement chaotique et bien que soumis à des fluctuations locales plus ou moins importantes, certains signaux comme la nette élévation de la température moyenne, la montée des eaux ou le recul des glaciers tendent à démontrer l'existence d'un déséquilibre climatique général (perturbation anthropique). L'effet de serre d'origine humaine est devenu le premier facteur de variation du climat [JAN03].

Les modèles de simulation qui prennent en compte l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre reproduisent avec un bon accord l'élévation des températures. Ceci est illustré sur les figures suivantes.



**Fig. 1.5:** Anomalie de la température de la surface de la Terre observée et calculée à l'aide d'un modèle prenant en compte **uniquement les perturbations naturelles** (éruptions volcaniques, activité solaire [DUF04]).



**Fig. 1.6:** Anomalie de la température de la surface de la Terre observée et calculée en prenant en compte les même **perturbations naturelles** et l'accroissement observé de la quantité de **gaz à effet de serre et des aérosols** responsables des perturbations anthropiques (liées aux activités humaines) [DUF04]

Que peut-on imaginer si l'on se projette dans 100 ans ?

Les plantes et les océans vont être modifiés et donc la part d'absorption du CO<sub>2</sub> sera différente mais de quelle manière? Il est de nos jours très difficile d'y répondre. D'ici la fin du siècle, les prévisions prévoient une augmentation de +1 à +7 °C selon les modèles et scénarii retenus. Ceci s'accompagnera d'un certain nombre de catastrophes naturelles (typhon, cyclone, sécheresse..) qui auront des répercussions plus ou moins graves pour l'Homme. Principe de précaution oblige, certaines nations se sont engagées à limiter les rejets de CO<sub>2</sub> afin de stabiliser sa concentration à 500 ppmv, seuil admis comme étant un peu moins de deux fois le niveau pré-industriel. Cette volonté est placée dans le cadre du protocole de Kyoto de 1997 dont l'objectif avoué est une baisse de 5 % des gaz à effet de serre d'ici à 2010 par rapport à leur niveau de 1990 ; mais en raison de l'inertie nécessaire au phénomène pour inverser la tendance, cesser rapidement d'émettre des gaz à effet de serre ne suffira pas à arrêter le réchauffement en cours. Quoique nous fassions aujourd'hui, le réchauffement issu des gaz que l'homme a mis dans l'atmosphère depuis 1750, se poursuivra donc pour quelques siècles.[JAN03]

Nous remarquerons que dans ce contexte le nucléaire pourrait, dans l'optique d'un développement durable et à grande échelle, se poser en tant que solution industrielle adéquate qui irait parfaitement dans le sens d'une minimisation des rejets de CO<sub>2</sub>. Ainsi pour un pays comme la France, ces vingt dernières années l'énergie d'origine nucléaire a permis une diminution d'un facteur 6 de l'émission de CO<sub>2</sub> par kilowattheure produit. [CHA97].

## **1.3 Les solutions envisagées pour un nucléaire durable**

### **1.3.1 Vers les réacteurs de quatrième génération**

Les réacteurs de troisième génération, comme par exemple les EPR (European Pressurized Reactor), basés sur un meilleur rendement thermique et qui intègrent une sûreté accrue (dalle sous la cuve de réacteur, redondance des sécurités) sont lancés sur le marché et leur principal constructeur (AREVA) annonce déjà une commande de vingt réacteurs d'ici à 2020. Dans ce contexte industriel, certains organismes publics et privés travaillent en collaboration sur des programmes de recherche et développement concernant des réacteurs du futur (~2050) dans l'optique d'un nucléaire durable. Un forum de discussion international GenIV composé de dix pays (Fra, E.U., Jap, Cor, RAS, Suisse, GB, Bre, Arg, Can) a d'ailleurs été créé de façon formelle, dans l'idée de planifier conjointement le nucléaire du futur et de développer une ligne de conduite commune vers les futurs réacteurs de quatrième génération.[GEN04].

Nous décrirons succinctement certaines solutions étudiées actuellement comme par exemple les réacteurs à neutrons rapides et ceux à haute température, puis nous nous pencherons sur les concepts étudiés par le CNRS ce qui permettra de présenter de façon plus approfondie le cadre de cette thèse.

### **1.3.2 Les projets RNR et RHT**

#### **1.3.2.1 Réacteurs à neutrons rapides (RNR)**

Ce type de réacteurs est bien plus qu'un projet puisque certains pays comme la France ont déjà passé le cap de la construction à l'échelle du prototype. Ce fut d'abord le réacteur Phénix opérationnel à partir de 1976 puis Superphénix très médiatisé à la fin des années 1990. Techniquement parlant, comme leur dénomination l'indique, ces réacteurs utilisent un spectre neutron dit "rapide" dans la gamme d'énergie correspondant à quelques centaines de keV. Ceci implique principalement l'absence totale de modérateur, et donc le fluide au sein du réacteur n'a le rôle que de caloporteur, il ne doit surtout pas ralentir les neutrons. Pour ces raisons l'eau est parfaitement exclue.

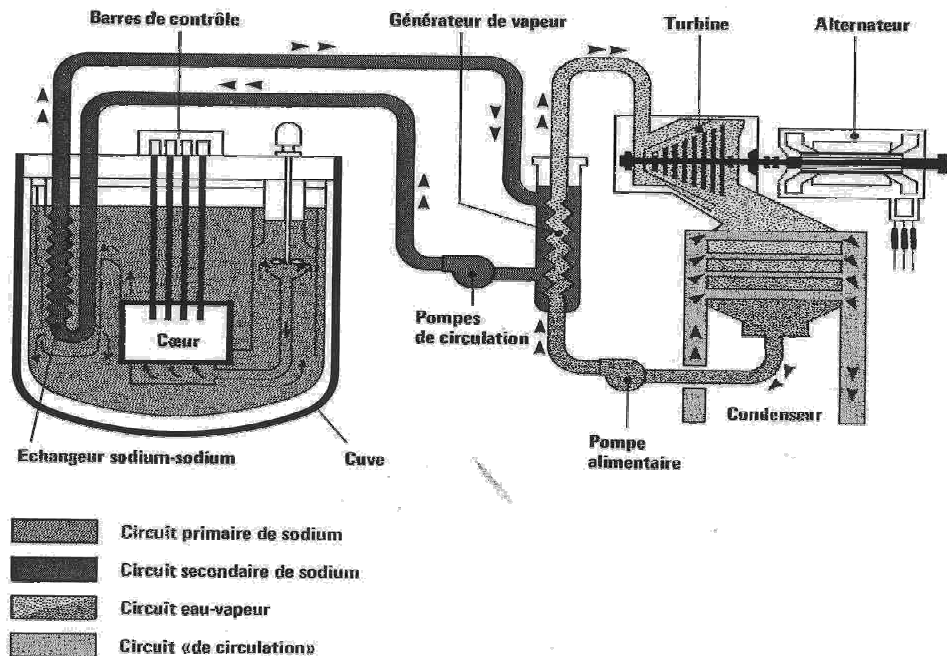
La structure du cœur du réacteur est semblable à celle des REP mais des considérations techniques lui font préférer une plus grande compacité. Ce caractère compact lui confère une puissance massique relativement élevée ; en contre partie un soin tout particulier doit être apporté aux contrôles du refroidissement et de la réactivité ; la proportion des neutrons retardés n'étant que de 0.21% par rapport à 0.65% dans un REP, le pilotage du réacteur est ici plus délicat. Cela influe directement sur le choix du fluide caloporteur qui doit alors présenter de très bonnes propriétés thermiques et nucléaires. Seuls le Sodium, le Plomb ou le Plomb-Bismuth ont les qualités requises. Les pays impliqués dans le développement de tels réacteurs (France, E.U, ex-URSS, GB, Japon et Italie) ont quasiment tous opté pour un caloporteur au Sodium qui remplit le cahier des charges énoncé ci-dessus. Un des avantages du Sodium outre sa bonne conductivité thermique, est son point d'ébullition situé très haut en température ( $\sim 900^{\circ}\text{C}$ ) permettant le fonctionnement du réacteur (à  $\sim 600^{\circ}\text{C}$ ) à pression atmosphérique (ou légèrement supérieure) et non sous pression comme pour les REP à eau ordinaire. En revanche l'inconvénient majeur de ce type de caloporteur réside dans sa forte activité chimique avec l'oxygène et l'eau (tendance à s'enflammer spontanément au contact) qui rend sa circulation, d'un point de vue sûreté, très contraignante dans les différents circuits qui composent le système complet.

La cuve principale supporte et contient le cœur, constitué d'un assemblage de combustible à base de MOX, avec un pourcentage de 15 à 20 % en Plutonium et contient également des couvertures fertiles radiales utilisant uniquement de l'Uranium naturel ou appauvri. Dans ces conditions les neutrons rapides sont utilisés pour les réactions de fission sur les noyaux de  $^{238}\text{U}$  mais une partie des neutrons issus de la fission sont ralentis par des collisions inélastiques sur les noyaux de  $^{238}\text{U}$ . Seulement 12% des neutrons de fission parviennent à fissionner l' $^{238}\text{U}$ . Les autres arrivent à l'énergie optimale pour la capture par l' $^{238}\text{U}$ , ou bien provoquent la fission du  $^{239}\text{Pu}$  [CHA97]. Les couvertures radiales situées à la périphérie du cœur du réacteur vont alors permettre la production de  $^{239}\text{Pu}$  par capture sur l' $^{238}\text{U}$  de neutrons devenus thermiques.

Si le système peut être surgénérateur en matière fissile  $^{239}\text{Pu}$ , on peut tout aussi bien imaginer de remplacer une partie du combustible par des Actinides mineurs qui seraient ainsi incinérés par fission.

Ces réacteurs pourraient ainsi constituer une option intéressante vis-à-vis de la problématique de la régulation des stocks de déchets (Plutonium militaire, Actinides mineurs) tout en fournissant de l'énergie électrique. Leur capacité de surgénération allie également la possibilité de remédier au problème de réserves en combustible. Les points durs se situent principalement au niveau du caloporteur au Sodium. En effet le Sodium possède la propriété chimique, de s'enflammer au contact de l'air et de se transformer en soude caustique au contact de l'eau. C'est sur ces points que Superphénix a été très décrié suite à des incidents techniques divers et variés propres au fonctionnement d'un prototype. Néanmoins ce type de

réacteur et ceux à caloporteur Plomb-Bismuth (LFR) sont toujours d'actualité au sein du forum international Génération IV sur le nucléaire du futur.



**Fig. 1.7:** Schéma d'un réacteur à neutrons rapides surgénérateur et du groupe turbo alternateur associé. On remarque la présence de deux circuits de Sodium afin de transférer la chaleur au générateur de vapeur. Pour fixer un ordre d'idée dans Superphénix 3000 t de Sodium circulaient dans le circuit primaire. [CEA80]

Un autre système retenu par le forum Génération IV est le réacteur rapide à caloporteur gaz.

### 1.3.2.2 Les réacteurs à haute température (RHT)

Ce dernier concept est fortement mis en avant par la France au sein du forum de discussion international GenIV. Il fonctionne sur un schéma déjà testé depuis les années 1970 dont certains aspects sont complètement validés. Ce type de réacteur utilise principalement un matériau carboné pour ralentir les neutrons, le tout placé dans un environnement gazeux. Le modérateur est donc du graphite et c'est le gaz qui joue le rôle de caloporteur. Actuellement on penche pour de l'hélium qui est un gaz chimiquement inerte et qui possède des propriétés thermiques telles qu'il permettrait un fonctionnement de réacteur à des températures bien plus hautes (800-900°C) d'où le nom. Le problème, c'est que l'hélium est relativement cher et que pour de telles températures de fonctionnement il faut une structure de combustible capable de supporter une température dans le cœur du réacteur, pouvant avoisiner les 1200°C.

En effet le domaine de températures envisagé interdit totalement le gainage métallique "classique" (sous forme d'aiguilles) du combustible. Ainsi, dans ce concept, le combustible apparaît plutôt sous forme de millions de micros billes ou encore sous forme de prismes qui

autorisent alors une grande circulation du caloporteur. La détente du gaz au sein d'une turbine couplée au réacteur permettrait de produire de l'électricité. On parle alors de rendement thermique pouvant atteindre les 50 % (on rappelle que le rendement thermique d'un REP est de l'ordre de 33 %) avec un spectre de neutrons lents et qui utilise un combustible UOX, MOX ou voire  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  [CEA80].

La faible densité de l'hélium impose des tailles relativement importantes pour les bâtiments réacteurs mais cet aspect négatif est gommé par une plus grande modularité en terme de combustible ; en mélangeant judicieusement certains composés on peut s'accommoder de tous les combustibles ou presque. De larges marges par rapport à leur point de fonctionnement les rendent également particulièrement sûrs [BAR04b]. Dans l'optique d'un essor du nucléaire dans le futur, ces réacteurs sont ainsi plus rapides à construire et également non proliférant. Néanmoins des recherches sont nécessaires concernant le comportement des matériaux aux hautes températures dans le but d'améliorer un système pouvant être aussi utilisé, dans sa version à très hautes températures (RTHT), pour la fabrication d'hydrogène.

La figure suivante présente un réacteur à haute température en configuration de production d'électricité. On distingue les deux enceintes, réacteur et turbine à gaz couplés par l'intermédiaire d'une conduite principale amenant le gaz dans la turbine et permettant sa détente.

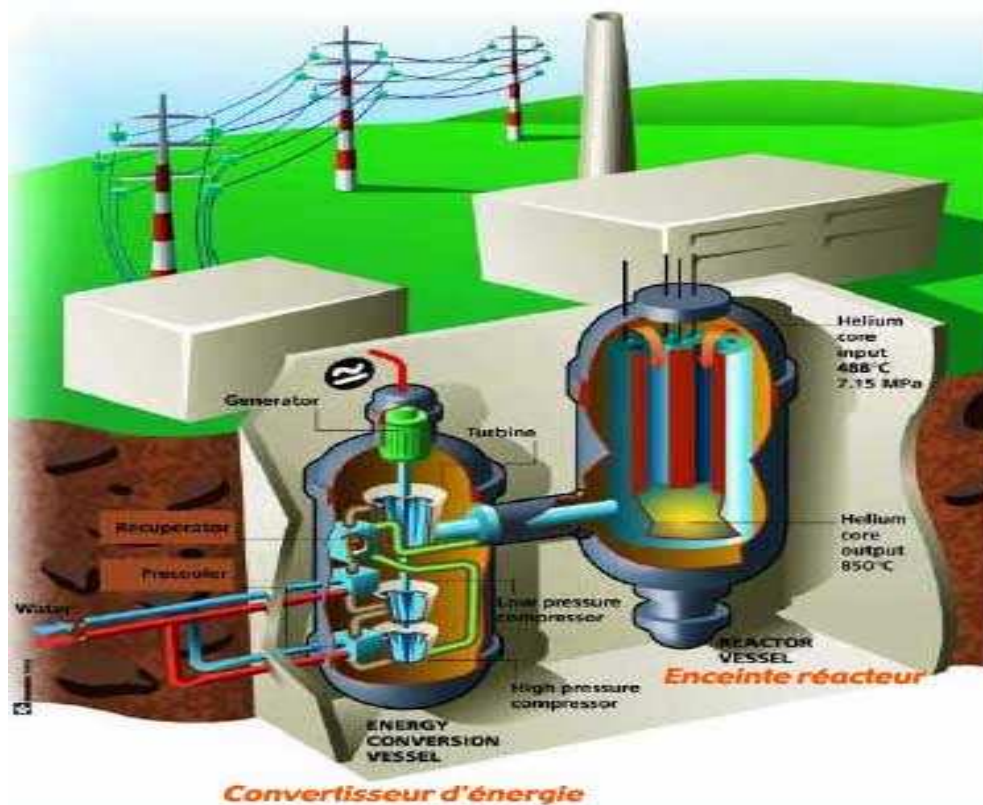


Fig. 1.8: Schéma du concept RHT à caloporteur gaz.

### 1.3.3 Les principaux concepts étudiés par le CNRS autour de la filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

#### 1.3.3.1 Les systèmes hybrides (ADS)

Ce concept imaginé par le prix Nobel C. Rubbia au milieu des années 1990 [RUB95] sous la forme tout d'abord d'un amplificateur d'énergie, est le résultat du couplage entre un accélérateur de particules de haute intensité et d'un réacteur nucléaire sous-critique, ayant la possibilité d'utiliser un combustible à base de Thorium pour produire de l'électricité. En amont, la partie accélératrice produit des protons à une énergie de l'ordre de 1 GeV qui bombardent une cible liquide composée d'un alliage eutectique (alliage dont le point de fusion est inférieur à celui des constituants) de Plomb-Bismuth et créent des réactions de spallation produisant un flux de neutrons rapides ; pour chaque proton qui frappe la cible 20 à 30 neutrons sont émis. Ce flux "externe" de neutrons est primordial pour alimenter un réacteur volontairement conçu sur un bilan neutronique déficitaire (sous critique). On dit que le réacteur est piloté par l'accélérateur. Si l'on coupe l'accélérateur, le flux externe est rendu nul et donc par conception le réacteur s'éteint de lui-même. C'est un gage de sécurité qui est mis en avant lorsqu'il est question de ce genre de système. D'un point de vue pratique, de récentes considérations économiques et techniques sont plutôt favorables à un accélérateur linéaire (LINAC) de haute intensité (quelques dizaines de mA) [CAR03].

A l'heure actuelle, du fait de la sous criticité du réacteur, on envisage plutôt pour ce concept un rôle d'incinérateur, où une partie du combustible serait remplacée par des déchets (Actinides), qui pourraient être placés pour de longues durées dans le flux de neutrons. On les incinérerait en définitive par des réactions de fission, également productrice d'énergie. Beaucoup de questions sont pour le moment en suspens concernant l'aspect conceptuel de ces systèmes. Si l'idée d'un réacteur dédié à l'incinération de matières radioactives est intéressante, certains points nécessitent encore une attention toute particulière. L'utilisation d'un combustible à base de Thorium pose des problèmes de radioprotection, lors de l'extraction du minerai par exemple ou de maintenance sur réacteur, liés à la présence des photons de 2,614 MeV produits par filiation radioactive. Viennent s'ajouter également des contraintes au redémarrage du réacteur, liées à l'effet Protactinium. La partie accélératrice impose elle aussi des contraintes de radioprotection, liées aux phénomènes parasites (perte du faisceau, activation, interaction avec des gaz résiduels...) lors du passage du faisceau intense de protons.

Plusieurs projets européens s'attachent à étudier et valider des solutions technologiques comme par exemple la physique à la fenêtre d'entrée du réacteur (expérience MEGAPIE à PSI [BAU02]) ou le couplage entre une source de neutrons pulsée et un réacteur (expérience MUSE au CEA Cadarache [BIL04]).



Un projet européen (EUROTRANS) dans le cadre du sixième PCRD vient d'être déposé. Il s'agit de disposer d'un démonstrateur expérimental (XADS [MUL03]) vers les années 2015 afin d'être opérationnel pour un éventuel développement industriel en 2030. Actuellement des expériences réalisées notamment à GSI (Spalladin) et au CERN (n-tof) permettent respectivement de mieux comprendre la physique de la spallation et de compléter les bibliothèques de données nucléaires.

### 1.3.3.2 Les réacteurs à sels fondus (RSF)

Là encore ce concept de réacteur n'est pas à proprement parler nouveau puisqu'il a déjà fait l'objet d'études relativement poussées dans les années 1960 avec notamment le projet MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) au laboratoire National d'Oak Ridge [EDF83]. L'originalité de ce concept réside dans la nature liquide de son combustible (sels fondus). Le sel choisi est un fluorure, qui est principalement constitué d'un mélange de fluorure de lithium (LiF) et de fluorure de béryllium (BeF<sub>2</sub>). Ce type de composés fluorés confère au combustible liquide (70 % LiF, 17,5 % BeF<sub>2</sub>, 12,5 % ThF<sub>4</sub>/UF<sub>4</sub>) des propriétés de stabilité chimique et réduit son caractère corrosif. Pour le type de réacteur dont il est question le spectre de neutrons se situe dans la gamme d'énergie des neutrons thermiques. Le sel qui contient le Thorium et l'Uranium nécessaires à la réaction en chaîne circule dans des canaux percés dans un bloc de graphite (le modérateur) et joue le rôle à la fois de combustible et de caloporteur.

La matière fissile (<sup>233</sup>U) est générée par capture et décroissances bêta successives sur le noyau de <sup>232</sup>Th fertile, dans un environnement porté à une température de l'ordre de 650°C. Néanmoins, du fait de l'utilisation de neutrons thermiques cela nécessite des retraitements du combustible très fréquents en raison de la présence de nucléides (Sm, Nd....), qui sont des poisons neutroniques. Ainsi, le réacteur est couplé à un retraitement en ligne des sels afin d'extraire les éléments neutrophages, comme les produits de fission qui participent au même titre à la baisse du nombre de neutrons disponibles pour la génération de noyaux <sup>233</sup>U. Des durées allant d'une dizaine de jours à un mois selon la procédure de retraitement suffiraient pour retraiter la totalité du cœur (50 m<sup>3</sup>).

L'idée originale du combustible liquide, est que l'on peut également par voie chimique en extraire un des noyaux fils du <sup>232</sup>Th (fertile), le <sup>233</sup>Pa, et le laisser décroître hors environnement neutronique vers le noyau <sup>233</sup>U, afin de réinjecter une partie de ce dernier dans le réacteur pour qu'il conserve sa criticité. De ce fait, le système peut être rendu surgénérateur ce qui résoudrait le problème de réserve nécessaire à la confection du combustible. Par contre le stockage sur site de <sup>233</sup>Pa se transformant en matière fissile <sup>233</sup>U peut poser des problèmes de prolifération et compromettre son extraction en ligne.

Ce qui ressort de ce concept c'est la grande part prise par l'aspect chimique dont le point clé est l'unité de retraitement en ligne. Un gros travail est nécessaire dans la simplification des différentes phases et donc des temps de retraitement du combustible. On peut également

envisager la production de noyaux de  $^{233}\text{U}$  en amont (REP, RNR dont nous parlerons plus loin) qui permettraient en quelque sorte de "lancer" la filière Th/U.

La figure suivante illustre le concept des réacteurs à sels fondus à travers le projet pré industriel MSBR. Le bloc modérateur de forme circulaire en graphite est clairement visible avec ses canaux de circulation du sel.

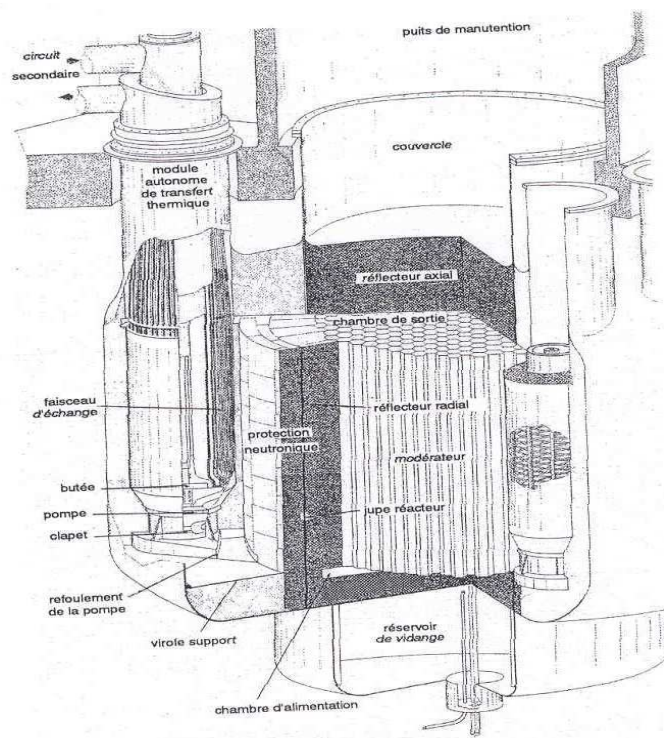


Fig. 1.9: Vue en coupe du réacteur en version intégrée du projet MSBR [NUT02].

## 1.4 Le cadre de ce travail

Comme nous venons de le voir, c'est vers une nouvelle filière utilisant des neutrons thermiques ou épithermiques que certaines équipes du CNRS se sont tournées. Cette filière, dite filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  dont rappelons le, le noyau fertile est le noyau  $^{232}\text{Th}$  et le noyau fissile  $^{233}\text{U}$ , a déjà été testée notamment dans les années 1950 par le Canada et l'Inde pour parer au manque de  $^{235}\text{U}$  nécessaire aux réacteurs classiques. A l'époque, en pleine guerre froide, des considérations militaires ont favorisé la filière UOX et ont empêché le développement industriel de la filière au Thorium. Pourtant la présence en abondance de Thorium dans la croûte terrestre (trois à quatre fois plus que l'Uranium) et surtout la possibilité d'une surgénération en neutrons thermiques et rapides (ce qui n'est pas le cas de  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  qui n'est surgénérateur qu'en neutrons rapides), en font un des candidats majeurs pour un éventuel combustible du futur. La particularité essentielle de cette filière réside dans le fait qu'elle produit des déchets radioactifs en quantité bien moindre que la filière utilisant l'Uranium.

Cette filière a donc été remise à l'ordre du jour à partir des années 1990 notamment avec le concept des systèmes hybrides dont nous avons parlé au paragraphe 1.3.3.1, lors de la prise de conscience de la problématique des déchets nucléaires.

La figure suivante illustre les chaînes de réaction en milieu neutronique de la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ :

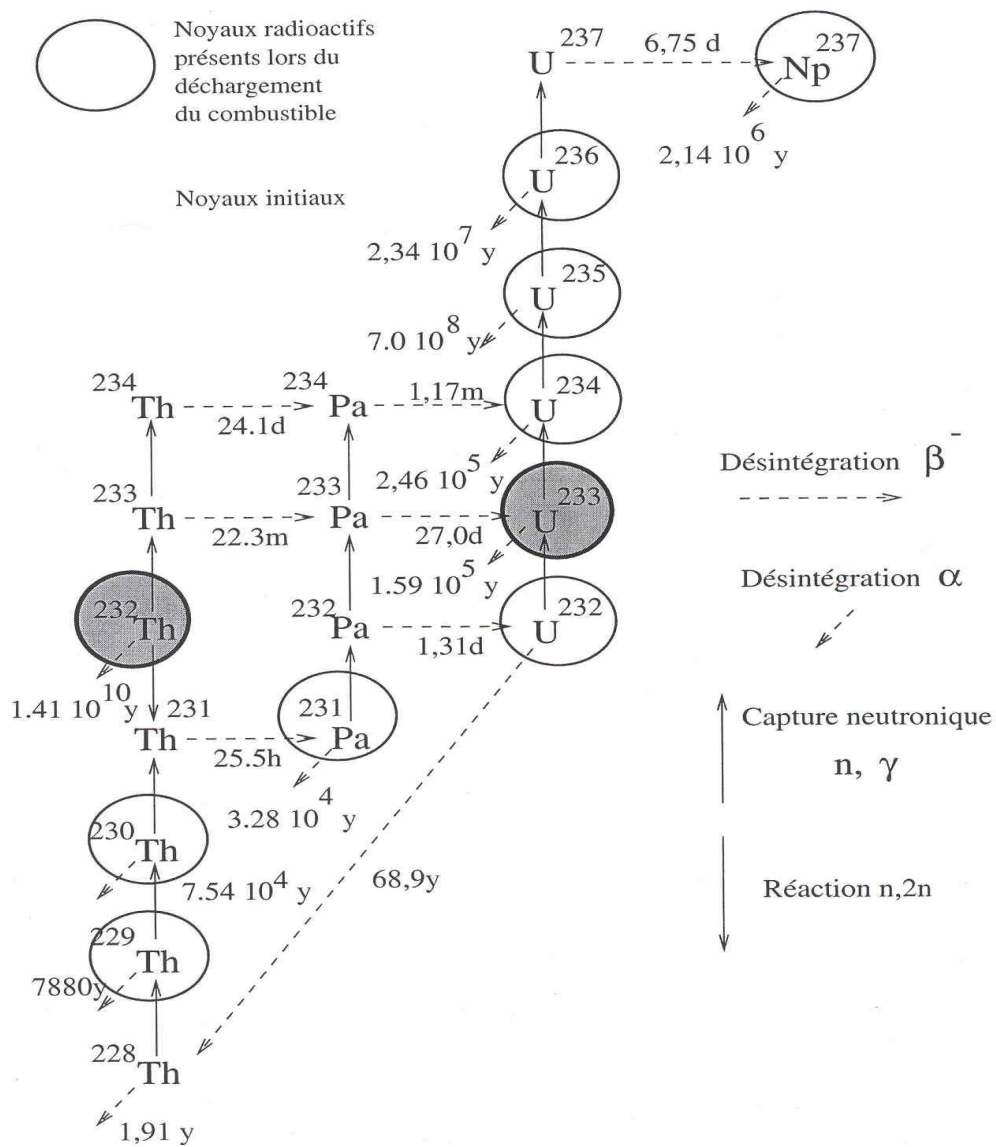


Fig. 1.10: Chaîne des noyaux formés par la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

Comme on peut voir sur la figure (1.10) le noyau fissile est généré par décroissances successives  $\beta^-$  à partir d'un noyau de  $^{233}\text{Th}$  formé après capture d'un neutron par un noyau de  $^{232}\text{Th}$ .

Contrairement à la filière actuelle basée sur l'Uranium nous constatons dans celle du Thorium l'absence au déchargement des principaux Actinides comme les isotopes d'Américium, de Curium et de Plutonium. Seule la présence du noyau de  $^{237}\text{Np}$  est commune aux deux filières, ce qui compte tenu de ce que nous avons dit précédemment au sujet du retraitement du combustible usé, simplifierait les processus de séparation. Au déchargement, la radio toxicité des Actinides rejetés par les différentes filières possibles au Thorium (rapide et épithermique) est inférieure de plus d'un facteur 10 à celle d'une filière rapide U/Pu et d'un facteur 1000 par rapport à la filière actuelle REP [DAV03]. Ceci est simplement dû au fait que le noyau fertile ( $^{232}\text{Th}$ ) a un numéro atomique et un nombre de masse qui sont plus faibles que ceux de son homologue de la filière UOX/MOX ( $^{238}\text{U}$ ). Ce n'est qu'après cinq captures de neutrons suivies de décroissances  $\beta^-$  que le premier noyau radio toxique  $^{237}\text{Np}$  est formé.

Cependant, un inconvénient majeur de cette filière réside dans la décroissance du  $^{228}\text{Th}$  vers le  $^{208}\text{Pb}$  (voir figure 1.11) qui produit un rayonnement gamma de 2.614 MeV. Les barrières de radioprotection adéquates rendent alors l'utilisation d'un combustible à base de Thorium plus complexe et plus contraignante.

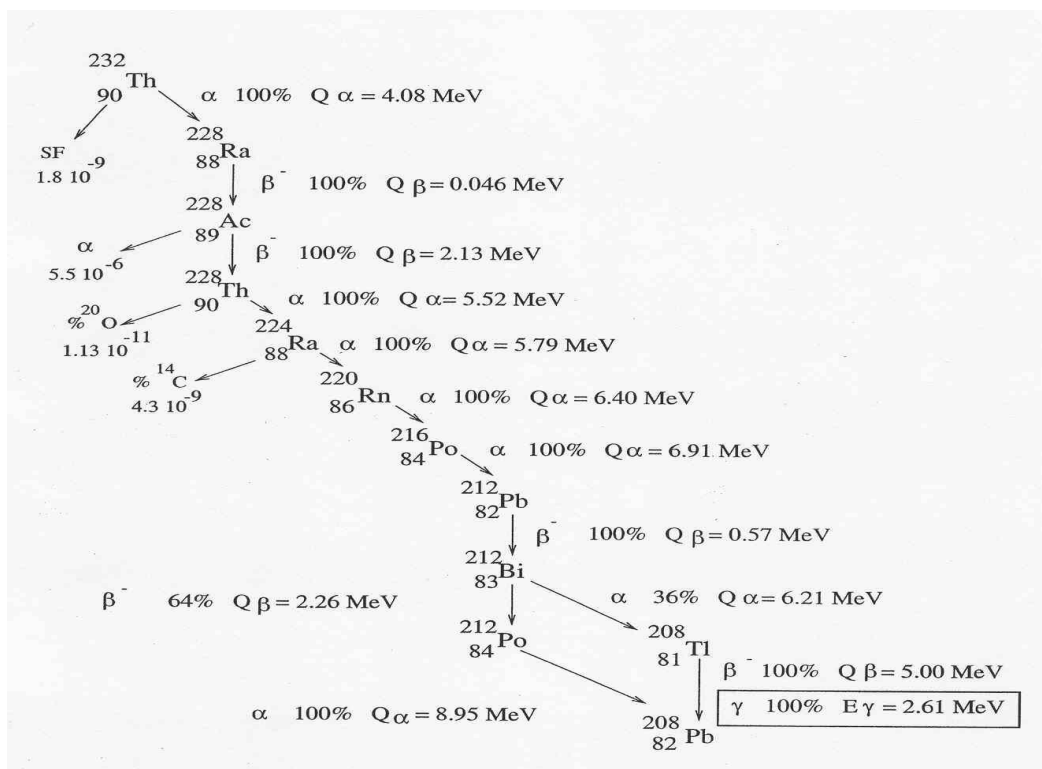


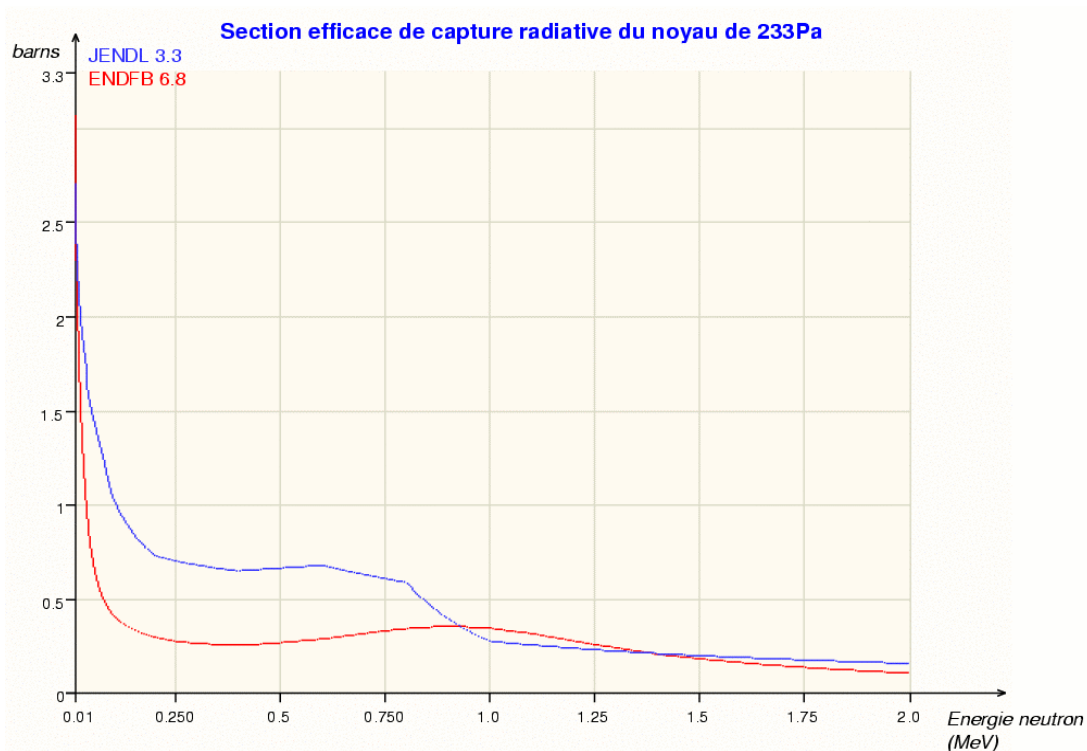
Fig. 1.11: Filiation radioactive issue de la désintégration  $\alpha$  du noyau de  $^{232}\text{Th}$ .

En outre, cette filière ne bénéficie pas, comme déjà mentionné auparavant, d'une cinquantaine années de recherche et développement comme la filière UOX-MOX. Les données concernant certains noyaux sont inexistantes. C'est le cas, en particulier, pour le noyau de  $^{233}\text{Pa}$ , qui joue un rôle important dans le cycle avec sa période de 27 jours. Comme

nous pouvons le voir sur la figure (1.10), c'est un noyau charnière qui intervient dans la production du noyau  $^{233}\text{U}$ . Ainsi, entre un éventuel arrêt d'un réacteur et son redémarrage la quantité de matière fissile et donc la réactivité du réacteur est augmentée; c'est ce qu'on appelle l'effet Protactinium.

En raison de sa période relativement longue (27 jours), au sein d'un réacteur ce noyau de  $^{233}\text{Pa}$  peut en effet avoir la possibilité de capturer à son tour un neutron et ainsi donner un noyau de  $^{234}\text{Pa}$  qui peut soit fissionner, soit décroître par rayonnement gamma (capture radiative). Puisque, dans ces deux voies de réaction, aucun noyau de  $^{233}\text{U}$  n'est formé, ceci conduit à une perte de rendement en  $^{233}\text{U}$ .

La voie fission  $^{233}\text{Pa}(n,f)$  a fait l'objet d'une thèse [PET02] et d'un article de notre groupe [PET04] et les mesures expérimentales ont permis de déterminer la section efficace de fission de ce noyau sur une plage en énergie neutron comprise entre 0 et 10 MeV. Les résultats obtenus ont été comparés avec les bases disponibles. En ce qui concerne la voie de réaction  $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$ , aucune information expérimentale n'était disponible avant ce travail et les deux bases de données faisaient apparaître des disparités importantes (voir fig. 1.12) dans le domaine inférieur au MeV juste sous le seuil de fission déterminé expérimentalement par Petit et al. [PET04].



**Fig. 1.12:** Section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$  d'après les bases JENDL (Japonaise.) et ENDF (américaine) en fonction de l'énergie des neutrons comprise entre 10 keV et 1 MeV [JAN03].

Afin de procéder à une comparaison plus poussée avec les bases de données existantes, nous nous sommes donc fixés comme objectif, dans ce travail, la détermination de la section efficace de capture radiative du noyau de la réaction  $^{233}\text{Pa} + n$  dans la gamme d'énergie de neutron comprise entre 0 et 1 MeV. Cette gamme d'énergie était également dictée par nos résultats antérieurs sur la fission car au-delà de 1 MeV, il n'est pas possible de discriminer les photons émis par le noyau de  $^{234}\text{Pa}$  de ceux émis par les fragments de fission.



# Chapitre 2.

## Aspect expérimental.

### Sommaire

---

<b>2.1 Introduction</b> .....	<b>34</b>
<b>2.2 Choix et étude préliminaire d'un détecteur de neutrons et de photons</b> .....	<b>35</b>
2.2.1 Choix du détecteur : le $C_6D_6$ .....	35
2.2.2 Caractéristiques d'un $C_6D_6$ .....	35
2.2.3 Campagne d'étude au CENBG.....	39
2.2.4 Première approche des fonctions de poids.....	49
<b>2.3 Expérience GEMINI 2003</b> .....	<b>63</b>
2.3.1 Etude préliminaire.....	63
2.3.2 La détection de particules : contraintes et dispositif.....	67
2.3.3 La détection de rayonnements gamma : contraintes et dispositif .....	71
2.3.4 Electronique et acquisition associées .....	73
2.3.5 Cibles et faisceaux employés.....	76
2.3.6 Dispositif expérimental final.....	77

---



## 2.1 Introduction

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, un vif intérêt est actuellement porté sur l'étude d'une nouvelle filière de réacteurs nucléaires dite de quatrième génération dont le combustible serait à base de minerai de  $^{232}\text{Th}$ , le noyau fissile étant l' $^{233}\text{U}$ .

Rappelons que certaines données expérimentales concernant le cycle du  $^{232}\text{Th}$  sont peu, voire pas du tout connues, en particulier pour le noyau de  $^{233}\text{Pa}$ , formé par décroissance  $\beta^-$  à partir d'un noyau de  $^{232}\text{Th}$  ayant capturé un neutron. Nous avons vu que ce noyau était un noyau charnière et qu'il tenait un rôle prépondérant au sein du cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , ceci en raison de sa période relativement longue à l'échelle du fonctionnement d'un réacteur nucléaire.

Une fois formé, trois voies (dans le régime des neutrons thermiques et épithermiques) s'offrent en effet au noyau de  $^{233}\text{Pa}$ . Elles sont rappelées sur la figure ci-dessous :

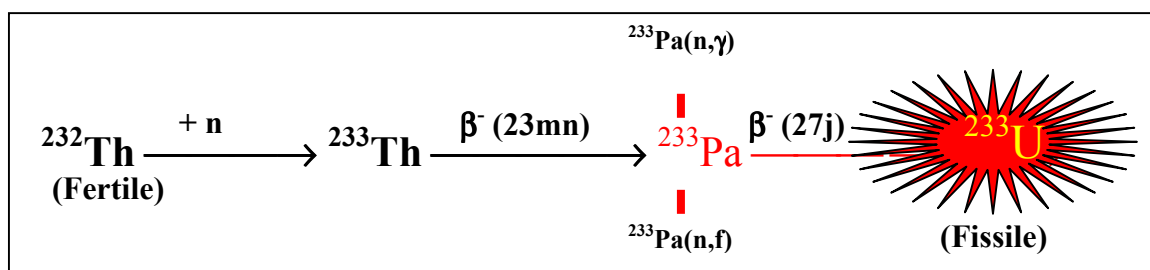


Fig. 2.1: Le  $^{233}\text{Pa}$ : noyau charnière du cycle du Thorium

Dans le cadre du groupement de recherche GEDEPEON, le groupe Aval du Cycle et Energie Nucléaire de Bordeaux s'est jusqu'à présent spécialisé dans la détermination de données nucléaires pour le cycle du Thorium. Afin d'achever l'étude fondamentale sur le noyau de  $^{233}\text{Pa}$ , commencée trois ans auparavant avec l'étude de la voie fission, nous avons proposé d'étudier la réaction de capture radiative ( $n, \gamma$ ). Cette voie de réaction représente, tout comme la voie fission, une perte de rendement dans l'optique de génération de matière fissile  $^{233}\text{U}$  au sein du cœur de réacteur.

Ce mémoire s'appuie sur l'expérience GEMINI (nom donné à la chambre de réaction par analogie avec la forme de la capsule de même nom), qui s'est déroulée auprès de l'accélérateur Tandem d'Orsay au premier semestre 2003.

Au cours de cette expérience de mesure de rayonnement gamma certains noyaux formés avaient une énergie d'excitation suffisante pour fissionner et donc émettre des neutrons. Cet environnement neutronique impose un protocole expérimental modifié par rapport à un dispositif classique de spectroscopie gamma. Il a fallu, dans un premier temps, élaborer et affiner une méthode originale de détection de rayonnement gamma qui intègre la présence de neutrons, afin de concevoir le dispositif le mieux adapté à l'expérience de capture radiative. Nous allons présenter notre démarche en nous appuyant sur une campagne de mesures réalisées au CENBG auprès de l'accélérateur Van de Graaff du laboratoire.

## 2.2 Choix et études préliminaires d'un détecteur n, gamma

### 2.2.1 Choix du détecteur: le $C_6D_6$

Habituellement, pour des mesures en spectroscopie gamma, on se tourne vers des détecteurs semi-conducteurs solides de type Germanium. Comparés aux autres types de détecteurs leur densité parfois 6 fois supérieure permet des dimensions bien plus petites et surtout leur confère une meilleure résolution en énergie: de l'ordre de 2 keV pour une énergie gamma de 1 MeV, et les événements sont détectables jusque dans le domaine énergétique des raies X atomiques.

Pourtant, si leur conception leur assure aujourd'hui d'être la référence des spectroscopistes en matière de détection gamma, les placer dans un flux de neutrons détériore leurs caractéristiques. Les mesures de spectroscopie gamma en environnement neutronique avec des détecteurs semi-conducteurs peuvent devenir très rapidement onéreuses.

L'idéal serait de pouvoir détecter des transitions gamma avec une efficacité convenable, et de pouvoir placer le ou les compteurs en présence de neutrons sans dégradation importante de leur résolution en énergie. Le détecteur doit, via l'électronique associée, également permettre une discrimination parfaite entre les événements gamma et neutron. On pourrait penser utiliser des détecteurs iodés comme les NaI et les CsI, mais les captures radiatives notamment sur l'iode produisent des rayonnements gamma au sein même du volume actif que l'on ne pourra pas différencier des rayonnements gamma à étudier ; ces types de détecteurs ne sont pas utilisables pour cette étude.

On peut penser également aux scintillateurs inorganiques  $BaF_2$ . Cependant pour distinguer les rayonnements de capture  $(n,\gamma)$  sur le Baryum, des photons qui nous intéressent, il faut être capable de mesurer pour chaque événement sa multiplicité et son énergie totale, ce qui implique de construire des boules  $4\pi$  de scintillateurs. Cette solution est encombrante, mais surtout très onéreuse.

Le meilleur compromis a consisté en l'utilisation de détecteurs scintillateurs liquides dont le composé employé est à base de benzène ( $C_6H_6$ ). Cette famille de détecteurs offre un certain nombre de propriétés suivant les matériaux scintillants sélectionnés ( $C_6D_6$ ,  $C_6H_6$ ,  $C_6K_6\dots$ ). Notre choix s'est tourné vers un détecteur scintillateur liquide de type  $C_6D_6$  qui remplissait les caractéristiques requises pour le type d'expérience envisagée.

### 2.2.2 Caractéristiques de ce détecteur

Ce scintillateur liquide est basé sur du benzène deutéré purifié. Il est généralement utilisé pour la détection de neutrons mais peut être également employé pour détecter des photons, car il est possible de discriminer les neutrons et les rayonnements gamma.

En comparaison à un scintillateur classique  $C_6H_6$ , les atomes d'hydrogène sont ici remplacés par des noyaux de deutérium, dans le but de minimiser les captures neutroniques au sein même du matériau scintillant. En effet, la capture de neutrons thermiques par les noyaux d'hydrogène dans un scintillateur  $C_6H_6$  provoque une émission de rayonnements gamma de 2,2 MeV issus de la désexcitation du deuteron résultant, rayonnement parasite qu'il est impossible de distinguer des photons émis au niveau de la cible. Le bloc scintillant, encapsulé, est couplé à la photocathode d'un photomultiplicateur, qui assure la conversion entre la lumière de la scintillation (UV) et l'impulsion électronique qui constitue le signal de sortie à traiter. La figure suivante présente deux détecteurs en position verticale et horizontale. On notera la fenêtre d'entrée en aluminium et la forme originale du détecteur. Les connecteurs dédiés aux signaux de sortie sont également visibles sur le détecteur vertical.



**Composition atomique et dimensions :**

Nb d'atomes D par $cm^3$ .....	$4,06 \times 10^{22}$
Nb d'atomes H par $cm^3$ .....	$3,55 \times 10^{20}$
Nb d'atomes C par $cm^3$ .....	$4,10 \times 10^{22}$
Ratio D:H .....	114:1
Ratio D:C .....	0,99
Nb d'électrons par $cm^3$ .....	$2,87 \times 10^{23}$
Dimension de la cavité scintillante : .....	101,6×76,2 (mm)
Volume de la cavité scintillante: .....	611,6 ml

**Fig. 2.2:** Photo, composition et dimensions d'un  $C_6D_6$

Les phénomènes physiques qui contribuent à la détection d'un événement sont principalement la diffusion Compton pour les rayonnements gamma, la diffusion sur les noyaux du matériau pour les neutrons et l'ionisation du milieu pour les particules chargées.

Lors d'une interaction avec le matériau scintillant, les mécanismes d'excitation et de désexcitation des molécules seront différents suivant le pouvoir d'ionisation de la particule. Le

processus de désexcitation au sein des molécules est principalement dominé par des phénomènes de fluorescence (états singulets), mais ces dernières ont également la possibilité de se désexciter par phosphorescence (états triplets) lorsque la structure de leurs états vibrationnels permet une transition interne des états singulets vers les états triplets. La réponse en lumière du scintillateur est donc composée par une décroissance rapide (caractéristique de la fluorescence) et par une composante plus lente (caractéristique de la phosphorescence). Suivant la perte d'énergie  $dE/dx$  de la particule, les états singulets et triplets sont alimentés de façons différentes. En conséquence les intensités relatives des deux composantes temporelles dépendent du type de la particule. Le neutron étant neutre électriquement, c'est le proton issu d'une diffusion (n,p) sur un noyau qui signera l'interaction du neutron. Pour les cas qui nous intéressent, la réponse en lumière du matériau scintillant est donc différente suivant que l'événement est associé à un rayonnement gamma ou à un neutron. Cette propriété permettra une discrimination n- $\gamma$ .

Rappelons qu'à même énergie un proton et un électron provoquent des signaux lumineux d'intensité différente. A titre indicatif, le tableau ci dessous présente la correspondance entre les énergies proton et électron pour une même réponse en lumière d'un scintillateur liquide NE213 (à base de Xylène) ; on remarquera qu'un électron "Compton" de 200 keV produit autant de « lumière » qu'un proton diffusé de 1 MeV.

Tp (MeV)	0,5	1	2	3	4	5
Te (MeV)	0,068	0,206	0,591	1,078	1,638	2,253

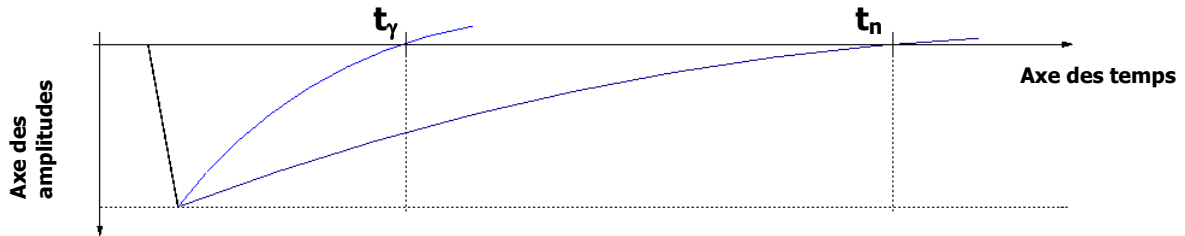
**Tab 2.1:** Correspondance pour une même réponse en lumière entre les énergies  $T_p$  proton et  $T_e$  électron dans un détecteur NE213 ( $C_6H_4(CH_3)_2$ ) [ELM94]

Associés au détecteur, des modules de traitement et de discrimination de forme PSD (Pulse Shape Discriminator) donnent un signal analogique qui rend compte du temps de relaxation des impulsions de sortie [KNO79]. Ces modules contiennent deux filtres de forme distincts et le signal d'entrée est dupliqué et passe dans chacun des deux séparément.

Le premier filtre est constitué d'un circuit CR-RC, qui est une combinaison entre un différenciateur et un intégrateur avec une constante de temps équivalente ( $\tau = RC$ ). Avec ce filtre, on obtient un signal de sortie unipolaire qui est utilisé pour la mesure de l'énergie. A présent, le deuxième filtre de forme, un circuit CR-RC-CR réalise une double différenciation qui donne un signal de sortie bipolaire avec un passage à zéro au niveau de la base de temps (figure 2.3). Le temps de relaxation du signal de sortie unipolaire et le temps de passage à zéro du signal de sortie bipolaire dépendent tous les deux de la vitesse de collection de charge dans le détecteur, et donc du temps de relaxation du signal du détecteur.

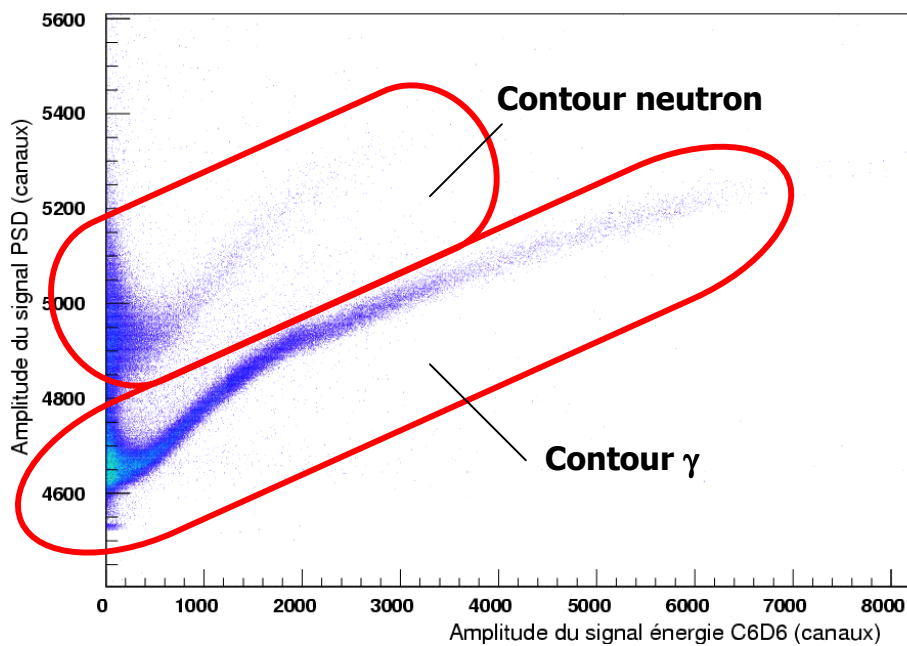
Les différences entre les temps de passage à zéro sont utilisées pour discriminer les particules de faible parcours de celles de qui ont un parcours plus important. Le temps de relaxation des impulsions délivrées par le scintillateur, est ainsi mesuré indépendamment de leurs

amplitudes. Pour un même temps de montée, on a par exemple pour un neutron de 4 MeV un temps de relaxation  $t_n$  de 30 ns et pour un rayonnement gamma de 1 MeV un temps de relaxation  $t_\gamma$  de 10 ns (figure 2.3).



**Fig. 2.3:** Schématisation des temps de relaxation dans un  $C_6D_6$  pour un neutron et un rayonnement gamma d'énergies différentes mais de même temps de montée.

En portant sur un graphe l'amplitude du signal du PSD en fonction l'amplitude du signal énergie du  $C_6D_6$  il est possible d'effectuer une discrimination par contour graphique. La figure suivante illustre cette opération.



**Fig. 2.4:** Exemple de contours pour discriminer les neutrons des rayonnements gamma par méthode graphique en portant l'amplitude du signal d'un PSD en fonction de l'amplitude du signal énergie du  $C_6D_6$  associé.

Compte tenu du rendement totalement différent de production d'électrons, il est bien entendu impossible de retrouver la résolution en énergie des détecteurs semi-conducteurs. Rappelons que l'utilisation d'un scintillateur  $C_6D_6$  pour une expérience de spectroscopie gamma est pour nous un compromis, entre une efficacité de détection gamma convenable en environnement neutronique et pas de dégradation de la résolution du détecteur. Toutefois,

comme nous le verrons plus tard, le critère d'une bonne résolution en énergie n'est pas primordial pour notre mesure.

### 2.2.3 Campagne d'étude au CENBG

Quatre séries d'expériences ont été réalisées auprès de l'accélérateur Van de Graaff du CENBG. Elles avaient pour but de nous familiariser avec l'utilisation d'un détecteur  $C_6D_6$  et de nous permettre de mettre au point le protocole expérimental de GEMINI.

#### 2.2.3.1 Réponse et efficacité en fonction de l'énergie gamma

Lors de réactions de capture radiative, les rayonnements gamma peuvent être émis dans un intervalle d'énergie allant du keV à quelques MeV. Etudier un détecteur dans ces conditions implique la mesure de l'efficacité et la détermination de la fonction de réponse du détecteur sur une large plage. Rappelons que l'interaction se faisant essentiellement par effet Compton le spectre détecté pour un photon d'énergie  $E_\gamma$  est un spectre continu dont l'énergie s'étend de 0 à l'énergie  $E_\gamma$  du photon incident. Pour des rayonnements gamma de faible énergie, la méthode la plus simple est d'effectuer les mesures à l'aide de sources scellées étalons. Certaines d'entre elles étant mono énergétiques ( $^{85}Sr$ ,  $^{137}Cs$ ,  $^{54}Mn$ ) le comptage en un temps donné (6h – 24h) permet de remonter directement à l'efficacité de détection.

Les autres sources à notre disposition faisant intervenir des raies gamma de multiplicité supérieure à 1, il faut changer de méthode puisque les spectres Compton des différentes composantes se superposent. Pour ce faire, l'étude du  $C_6D_6$  a nécessité le concours d'un détecteur de type Germanium de haute résolution en énergie et d'un dispositif original inspiré de *Corvi et al* [COR87] [COR91]. Ce dispositif permet des mesures en coïncidence pour des cascades de multiplicité d'ordre 2 uniquement, c'est-à-dire deux photons en coïncidence. Pour un couple de rayonnements gamma ( $E_{\gamma 1}$ ,  $E_{\gamma 2}$ ) d'une cascade de multiplicité 2, la mesure de l'efficacité du  $C_6D_6$  pour le photon 1 (ou le photon 2) est obtenue à l'aide des aires des photopics dans le détecteur Germanium. Par exemple, afin de déterminer l'efficacité du  $C_6D_6$  pour le photon 1 d'énergie  $E_{\gamma 1}$ , il faut connaître le rapport entre l'aire du photopic à  $E_{\gamma 2}$  dans le Germanium lorsqu'un événement a été détecté en coïncidence dans le  $C_6D_6$  ( $E_{\gamma 1}$ ) et l'aire de ce même photopic en voie directe. Cette méthode ne nécessite ni la connaissance du nombre de photons émis par la source ( $N_0$ ) ni l'efficacité du détecteur Germanium ( $\epsilon_{\text{photGe}}$ ).

$$N_{\text{photopic2}}(\text{direct}) = N_0 \epsilon_{\text{photGe}}(\gamma 2)$$

$$N_{\text{photopic2}}(\text{coinc}) = N_0 \epsilon_{\text{photGe}}(\gamma 2) \epsilon_{C_6D_6}(\gamma 1)$$

La fenêtre de coïncidence temporelle utilisée était de 40ns.

Dans un premier temps, l'utilisation des sources scellées (supposées ponctuelles) et d'une source nue de  $^{232}\text{Th}$  (10mm×10mm×1mm) nous a permis d'obtenir l'efficacité et la réponse du détecteur jusqu'à 2614 keV. Au-delà de 3 MeV, il a été nécessaire de recourir à des réactions nucléaires dont les noyaux résiduels produisent des rayonnements gamma dans la gamme d'énergie voulue. Nous avons fait appel aux réactions de capture radiative induite par protons  $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$  et  $^{34}\text{S}(p,\gamma)^{35}\text{Cl}$  pour compléter nos données. Les deux cibles d' $^{27}\text{Al}$  et de  $^{34}\text{S}$  ( $\text{Ag}_2\text{S}$ ) étaient évaporées sur des supports en or, leurs caractéristiques et les énergies de résonance utilisées pour les réactions sont décrites dans le tableau suivant.

Cibles	Epaisseur ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Support or (mm)	Ep (keV)
$^{34}\text{S}$ ( $\text{Ag}_2\text{S}$ )	220	20×20×0.25	1214
$^{27}\text{Al}$	200	10×0.5	1262

Tab 2.2 : Cibles et énergies de résonance employées.

Avec ce jeu de cibles, deux cascades composées de rayonnements gamma de 3164 keV et 4386 keV pour le  $^{35}\text{Cl}$  et de 5922 et 6878 keV pour le  $^{28}\text{Si}$  ont été utilisées [COR88] et [FIR99].

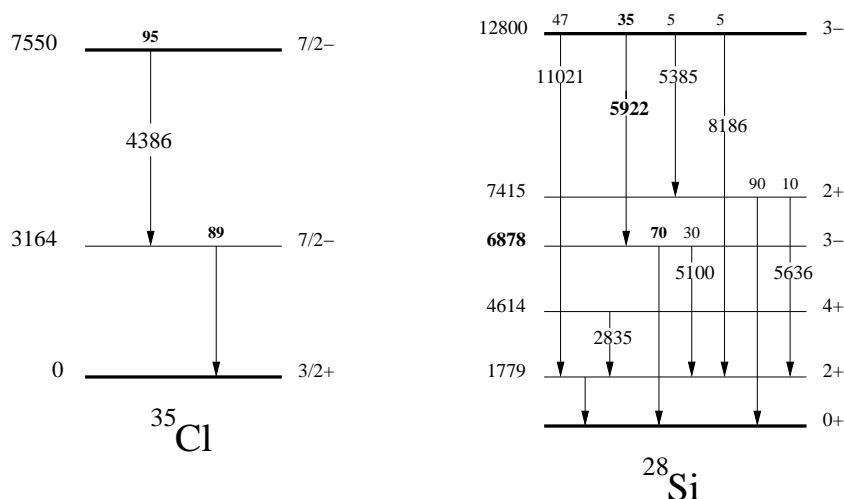


Fig. 2.5: Schémas simplifiés de décroissance pour les noyaux de  $^{35}\text{Cl}$  et  $^{28}\text{Si}$ .

Concernant le dispositif expérimental proprement dit, le scintillateur  $\text{C}_6\text{D}_6$  à étudier se trouvait dans l'axe du faisceau de protons, pris comme axe de référence ( $0^\circ$ ). Pour minimiser les effets de distribution angulaire et de corrélation angulaire lors de l'émission des cascades gamma produites lors de la réaction, nous avons placé le détecteur Germanium à  $125^\circ$  par rapport au faisceau et au scintillateur. La composante du polynôme de Legendre  $P_2(\cos\Theta)$  qui joue un rôle prépondérant dans ces effets, est ainsi rendue nulle.

Un faisceau de protons d'une intensité de  $5\mu\text{A}$  nous a été fourni par l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CENBG. L'impact du faisceau était de l'ordre de  $3\text{ mm}^2$ . Afin d'éviter leur détérioration par la chaleur, les deux cibles ont été refroidies par un filet d'eau continu.

Les mesures ont été réalisées pendant un temps d'environ 24h pour chaque cible et les taux de coïncidences Ge/ $\text{C}_6\text{D}_6$  étaient de quatre coups/s en moyenne. Un schéma et une photo du dispositif expérimental montrent ci-dessous le caractère très compact de la géométrie.

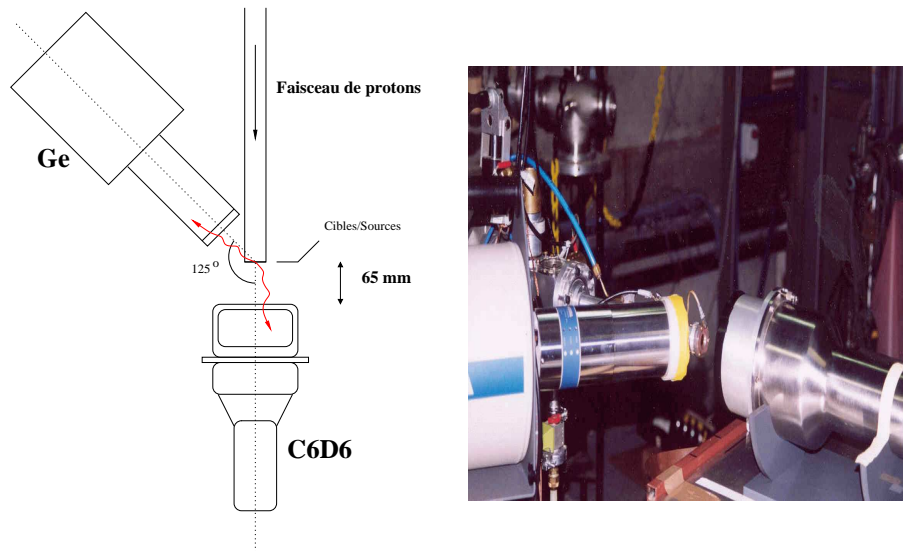


Fig. 2.6: Dispositif utilisé auprès du Van de Graaff.

Les résultats des mesures d'efficacité sont présentés dans le tableau suivant

$E_\gamma$ (keV)	Source / noyaux	Photopic sélectionné dans le Ge (keV)	$\epsilon_{\text{C}_6\text{D}_6}$ (%)
121	$^{152}\text{Eu}$	1408	1.54 (0.09)
244	$^{152}\text{Eu}$	867	2.98 <sup>b</sup> (0.08)
344	$^{152}\text{Eu}$	779	2.80 (0.08)
514	$^{85}\text{Sr}$	—	2.68 (0.07)
661	$^{137}\text{Cs}$	—	2.70 (0.07)
834	$^{54}\text{Mn}$	—	2.58 (0.07)
898	$^{88}\text{Y}$	1836	2.49 <sup>b</sup> (0.05)
1173	$^{60}\text{Co}$	1333	2.32 (0.05)
1333	$^{60}\text{Co}$	1173	2.27 (0.05)
1836	$^{88}\text{Y}$	898	1.95 (0.03)
2614	$^{232}\text{Th}$	860	2.05 (0.04)
3164	$^{35}\text{Cl}^{\text{a}}$	4386	2.13 <sup>b</sup> (0.10)
4386	$^{35}\text{Cl}^{\text{a}}$	3164	2.05 (0.10)
5922	$^{28}\text{Si}^{\text{a}}$	6878	1.91 <sup>b</sup> (0.12)

Tab 2.3: Efficacités mesurées du scintillateur  $\text{C}_6\text{D}_6$  dans la géométrie montrée en figure (2.6), en fonction de l'énergie des photons émis au point source. <sup>a</sup> noyaux produits par réaction  $(p,\gamma)$  <sup>b</sup> efficacités corrigées des branches contaminantes et des pertes d'intensité



Dans certains cas, les efficacités ont été corrigées, à la fois pour tenir compte d'éventuelles contaminations venant d'autres branches (cf. figure 2.5) comme par exemple le photon de 3164 keV du  $^{35}\text{Cl}$  (12 %), et pour tenir compte du fait que dans certains cas l'intensité de la raie émise n'était pas de 100 % (+6 % pour le 898 keV de  $^{88}\text{Y}$ ). L'efficacité du 6878 keV n'a pas pu être mesurée, à cause de la détection du 5922 keV qui peut se faire en coïncidence avec un trop grand nombre de gamma de la cascade autre que le 6878 keV (cf. figure 2.5). Dans le cas particulier du  $^{232}\text{Th}$ , il a fallu corriger l'efficacité de 3 % en raison de sa présence dans le béton des murs de la salle expérimentale.

Du fait de la géométrie de notre dispositif, de faibles corrections (<3 %) liées aux effets de corrélations et de distributions angulaires, ont également été appliquées pour certaines transitions. Néanmoins dans la plupart des cas les effets sont petits : la valeur moyenne  $P_2(\cos\Theta)$  du polynôme de Legendre est nulle et l'ouverture angulaire apporte une faible contribution qui après calcul a été négligée.

Les figures suivantes présentent la courbe d'efficacité et les fonctions de réponse expérimentales du détecteur  $\text{C}_6\text{D}_6$  obtenues pour le jeu de cibles et de sources utilisées.

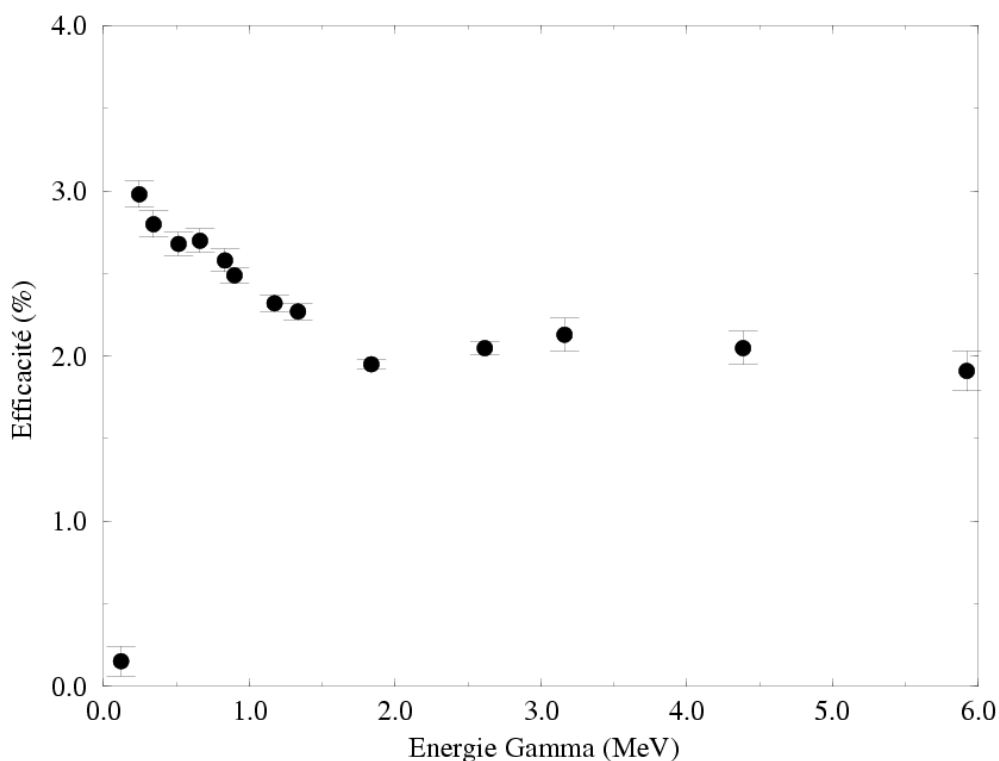


Fig. 2.7: Efficacité mesurée en fonction de l'énergie des photons incidents.

Le seuil électronique de détection était de l'ordre de 40 keV électron (~120 keV photon) et son influence au niveau des très basses énergies (<300 keV photon) est clairement visible sur la figure (2.7).

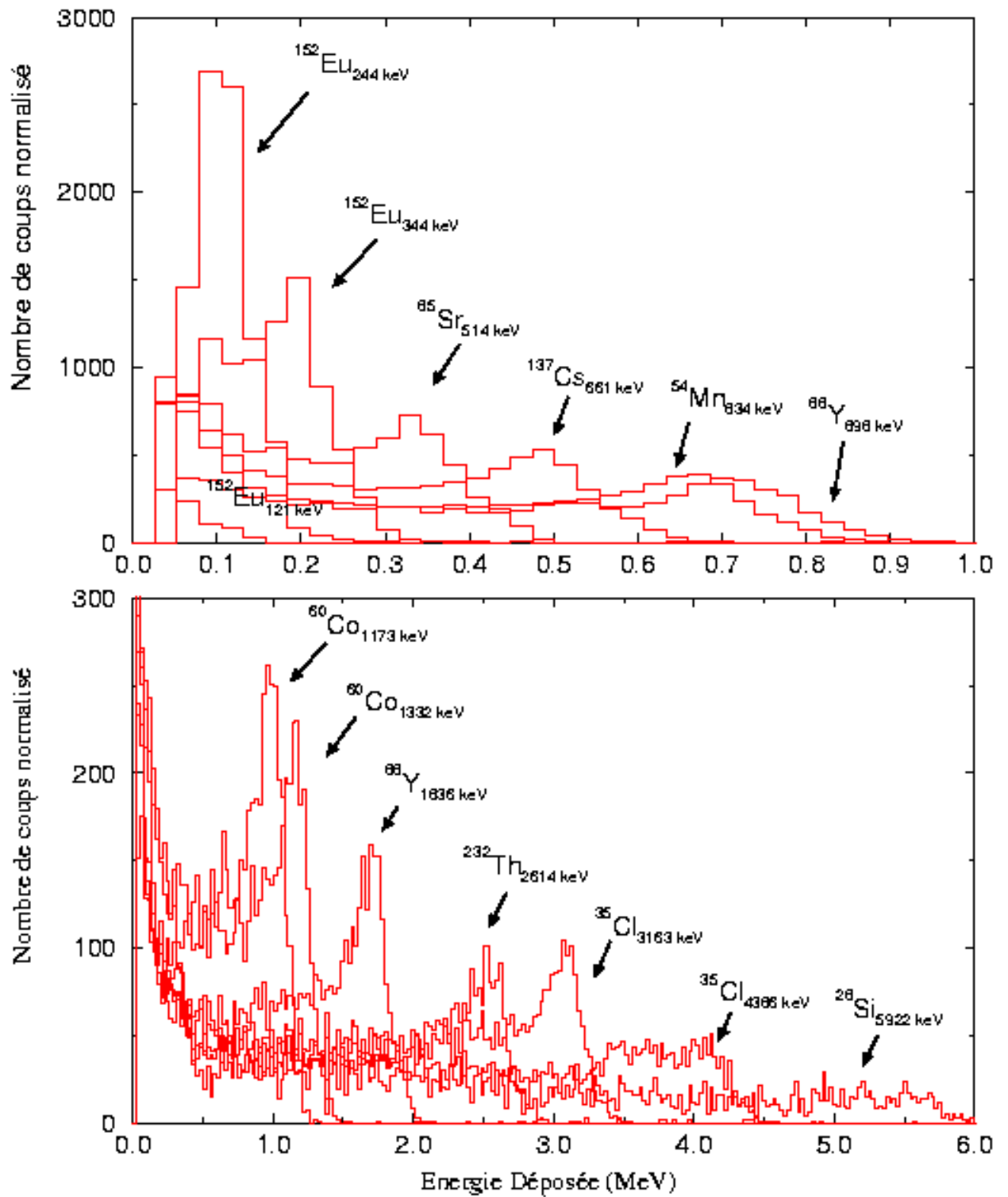


Fig. 2.8: Fonctions de réponse expérimentales du détecteur  $\text{C}_6\text{D}_6$  utilisé.

Pour compléter notre étude, nous avons simulé la réponse du détecteur.

### 2.2.3.2 Simulation de la réponse

Cette partie a été réalisée à l'aide du code de transport MCNP [BRI00], dans la gamme d'énergie étudiée au cours de nos mesures, c'est-à-dire 0,1-6 MeV. Ce code fera l'objet d'une présentation plus détaillée dans le chapitre suivant.

Une géométrie la plus complète possible a été introduite dans le code pour les différentes simulations. Ainsi, diverses simulations ont montré que la contribution des matériaux environnants devient prépondérante dès lors que ceux-ci se trouvent dans le voisinage proche de la cible. Cet effet est d'autant plus important que l'énergie du rayonnement gamma est élevée.

Il est dû au processus de création de paires dont l'importance devient non négligeable au-delà de 2 MeV d'énergie. Les électrons et les photons produits (511 keV) dans les matériaux voisins de la cible vont être détectés par le C<sub>6</sub>D<sub>6</sub>, ce qui modifie considérablement la réponse du détecteur et son efficacité à une énergie donnée. Plus le numéro atomique du matériau environnant sera élevé, plus le phénomène sera important, comme le montre la dépendance en Z<sup>2</sup> de la section efficace de création de paires [LEO87].

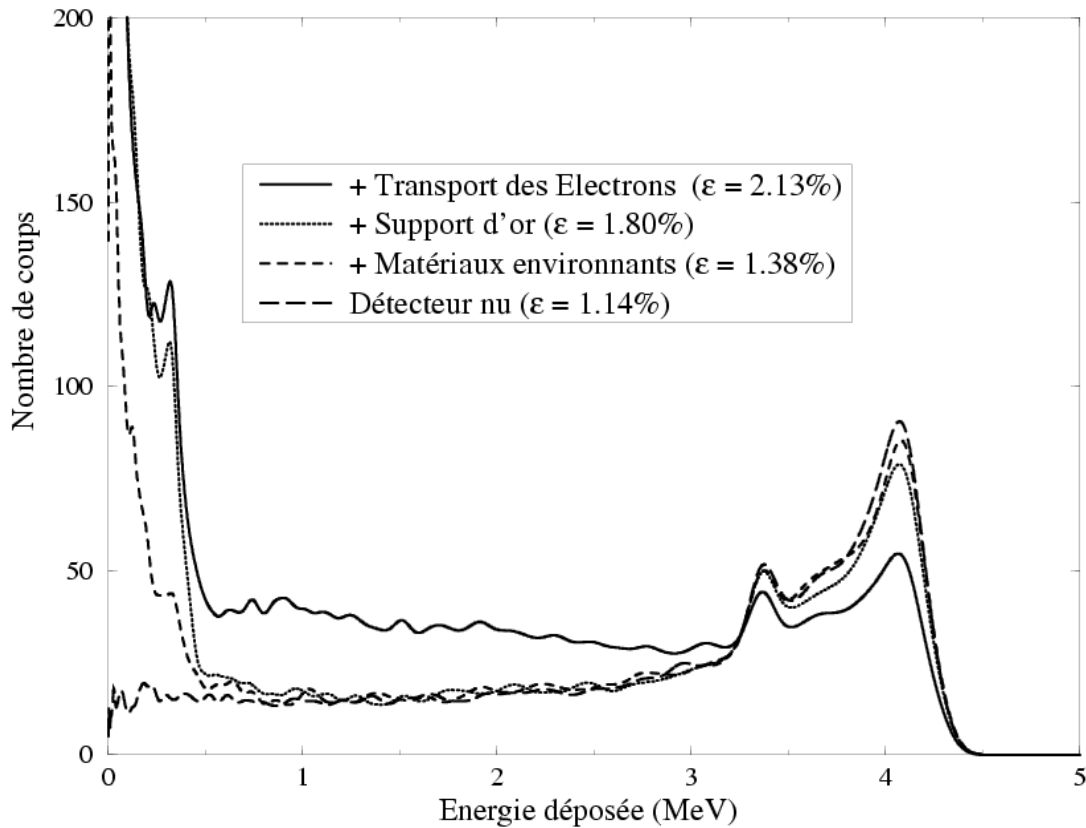
$$\sigma_{\text{paire}} = 4Z^2\alpha r_e^2 \left\{ \frac{7}{9} \left[ \text{Ln}(183 \times Z^{1/3}) - f(Z) \right] - \frac{1}{54} \right\} \quad (2.1)$$

où Z est le numéro atomique du matériau, r<sub>e</sub> le rayon classique de l'électron (2,817.10<sup>-15</sup> cm) et α la constante de structure fine (α = 1/137).

Plus le matériau lourd est voisin de la cible, plus son influence sera importante. On verra les répercussions que peut avoir la présence des supports en or (Z = 79) sur les mesures en réaction (p,γ) avec les cibles de <sup>27</sup>Al et de <sup>34</sup>S. Au final, la réponse du scintillateur n'est pas due qu'à la seule composante gamma. Pour bien reproduire la réponse mesurée, il faut absolument, en plus d'une géométrie exacte, incorporer le transport des électrons créés à l'intérieur et à l'extérieur du détecteur.

La figure (2.9) présente l'influence des différentes contributions vis à vis de la forme de la fonction de réponse d'un rayonnement gamma de 4386 keV et de la valeur de son efficacité de détection. On remarque l'effet drastique de l'introduction des matériaux environnants et des supports en or dans la simulation sur, d'une part l'efficacité et d'autre part sur la forme de la fonction de réponse. Le point de départ est le détecteur nu et des cibles auto portées. Lorsqu'on ajoute les matériaux environnants, puis le support de cible, on retrouve dans le détecteur une partie des photons de 511 keV créés par effet de paire dans ces matériaux, ce qui se traduit par une amplification de la partie basse du spectre tandis que les phénomènes d'absorption des rayonnements gamma émis par la cible se traduisent par une réduction du nombre de coups au niveau du front Compton. Le gain en efficacité est ici principalement dû

à la détection des ces photons de basse énergie, puisque aux énergies intermédiaires (500-2000 keV) la forme de plateau obtenue ne varie pas.



**Fig. 2.9 :** Illustration des différentes contributions à l'efficacité et à la forme de la fonction de réponse pour un photon d'énergie 4386 keV créé au point cible.

Dans cette géométrie plus complète (matériaux environnants et support en or), si on ne tient compte uniquement que du transport des photons, la simulation donne une fonction de réponse caractérisée par deux contributions principales: les photons issus des effets de paires (basse énergie) et les photons Compton à haute énergie. Avec ce type de transport (photon uniquement), les énergies des électrons créés au cours des interactions sont déposées aux points de création. En revanche, si on ajoute le transport d'électrons, des électrons créés dans les matériaux environnants pourront déposer de l'énergie dans le détecteur et de même, ceux qui sont créés dans le détecteur pourront éventuellement s'échapper de ce dernier. Ainsi, due aux créations de paires dans les matériaux proches de la cible, on constate une augmentation des événements dans le spectre aux énergies intermédiaires (500-2000 keV). Mais on remarque que les échappements au sein même du volume actif entraînent une diminution du nombre d'événements détectés dans la partie haute du spectre. Cet effet augmentant avec l'énergie du rayonnement gamma incident, on peut noter que la résolution du détecteur se dégrade vers les hautes énergies.

### 2.2.3.3 Comparaison expérience-simulation

Les simulations ont été réalisées sur la base de tirages de dix millions de particules transportées par le code Monte Carlo et les figures suivantes montrent les résultats obtenus, comparés aux mesures précédentes.

Les cercles pleins représentent les efficacités mesurées du détecteur  $C_6D_6$  avec leur barre d'erreur respective. Les triangles sont les valeurs obtenues par simulation avec MCNP IVB suivant la configuration la plus complète explicitée plus haut : matériaux environnants et support en or le cas échéant. L'erreur statistique sur ces points est bien plus petite (0,03 %) que les symboles, dû à un grand nombre de tirage ( $10^7$ ) pour chaque énergie. Pour les trois premiers points (121 keV, 244 keV et 344 keV) les efficacités simulées ont été normalisées post-simulation vis à vis de la coupure électronique à partir des efficacités expérimentales du scintillateur. On constate sur toute la gamme d'énergie 500 keV – 6 MeV un très bon accord entre l'expérience et les simulations. Cet accord a pu être estimé à partir d'un calcul de type moindres carrés, il est inférieur à 4% au-delà de 500 keV.

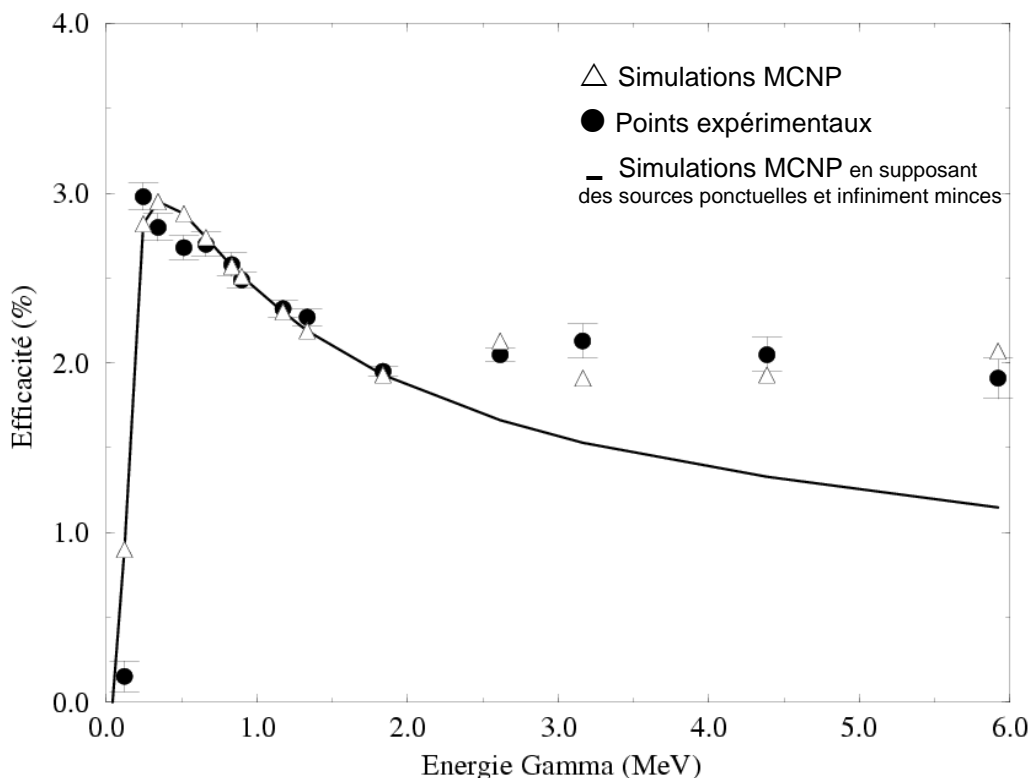
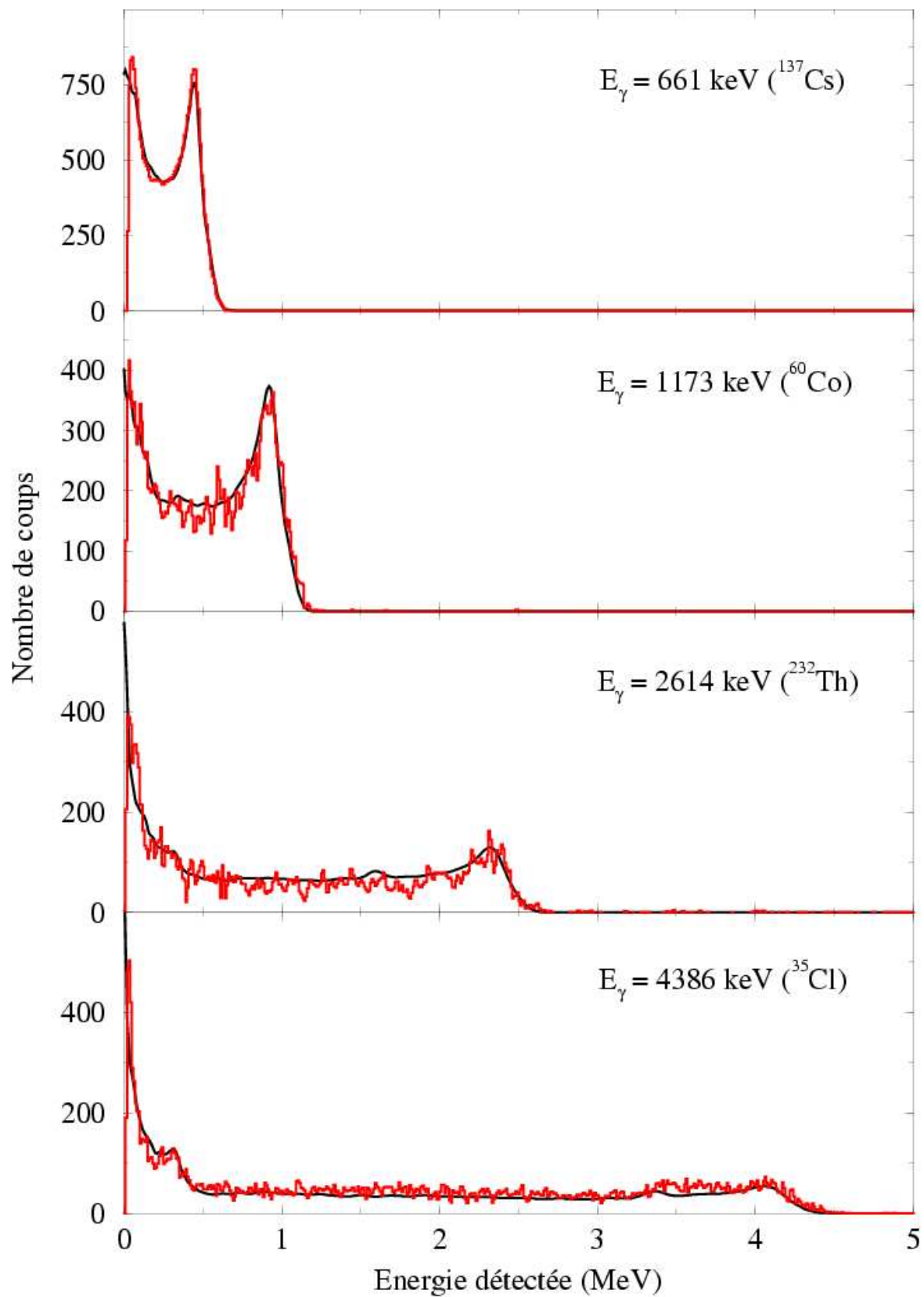


Fig. 2.10 : Comparaison des efficacités expérimentales et simulées normalisées pour  $E_\gamma = 661$  keV.

La courbe continue, représente les efficacités simulées obtenues lorsque les sources sont toutes ponctuelles. Dans ce cas l'influence des supports en or des réactions  $(p,\gamma)$  n'est pas prise en compte et la source de  $^{232}\text{Th}$  est supposée infiniment mince. La courbe représente

donc une configuration où l'influence des matériaux environnants est négligeable. C'est ce vers quoi il faudra tendre pour le dispositif expérimental de l'expérience finale GEMINI.

Concernant l'allure proprement dite de la courbe d'efficacité (Fig. 2.10), on remarque nettement la coupure due à l'électronique associée (40 keV d'énergie détectée) avec une efficacité qui augmente de façon drastique entre 100 keV et 300 keV. Puis, après un maximum aux environs de 500 keV, la courbe suit la chute de la probabilité d'interaction dans le scintillateur. Cette tendance est compensée à partir d'environ 2 MeV par la détection des électrons issus des créations de paires dans les matériaux environnants. Sur la page suivante, on a comparé les fonctions de réponse expérimentales et celles obtenues par simulation pour quatre énergies différentes. Là encore, on constate un très bon accord entre les fonctions de réponse expérimentales et simulées. Ceci nous permet de valider notre technique de simulation et confirme notre compréhension du fonctionnement du détecteur. Les fonctions de réponse simulées peuvent donc être à présent utilisées pour décrire le scintillateur dans la vaste plage d'énergie gamma considérée (0,1-6 MeV).

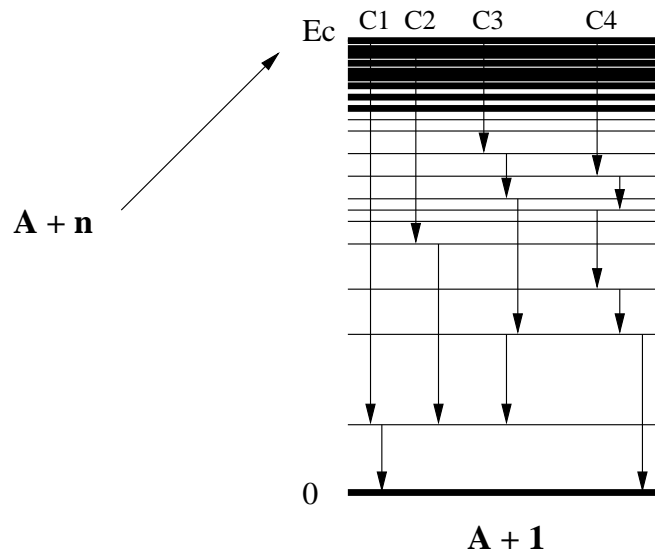


**Fig. 2.11:** Comparaison entre fonctions de réponses simulées (trait continu) et expérimentales (histogramme) pour quatre énergies de photons.

### 2.2.4 Première approche des fonctions de poids

Dans le cas de réactions de capture radiative induites par neutrons mono énergétiques, les états du noyau composé ( $A+1$ ) sont situés à une énergie que nous appellerons  $E_c$ .

Plusieurs chemins de désexcitation ou cascades ( $C_i$ ) sont possibles et l'efficacité de détection des rayonnements gamma associés est différente suivant l'énergie de la raie considérée.



**Fig. 2.12 :** Exemples de cascades possibles pour une énergie d'excitation donnée ( $E_c$ ) dans le noyau composé  $A+1$ .

Si, pour un chemin donné, la probabilité de détection individuelle (efficacité individuelle) d'une transition gamma est  $\varepsilon_i$ ,  $i$  repérant la transition, alors la probabilité de ne pas détecter une des transitions de cette cascade est  $1-\varepsilon_i$ . Il en découle que la probabilité de ne détecter aucune des transitions individuelles qui composent cette cascade de multiplicité  $m$  ( $m$  transitions gamma dans la cascade) peut s'écrire :

$$P = \prod_i^m (1-\varepsilon_i) \quad (2.2)$$

L'efficacité de détection de la cascade (la probabilité de détecter au moins une raie individuelle) peut donc s'exprimer par:

$$\varepsilon_c = 1 - \prod_i^m (1-\varepsilon_i) \quad (2.3)$$



Notre efficacité de détection étant faible, en moyenne 2 % (voir fig. 2.7), ceci implique que la probabilité de détecter des évènements multiples (2 ou plusieurs photons en même temps) est négligeable. Ainsi les termes de second ordre et plus dans (2.3) peuvent être ignorés.

L'efficacité de détection d'une cascade de désexcitation peut être donc approchée par la somme des efficacités individuelles des raies gamma qui composent cette cascade :

$$\mathcal{E}_c \approx \sum_i^m \mathcal{E}_i \quad (2.4)$$

Ce résultat dépend toujours du chemin emprunté. Plaçons nous maintenant dans la situation où l'efficacité serait une fonction linéaire de l'énergie du photon, ce qui n'est pas le cas expérimentalement (voir à nouveau fig. 2.7) et écrivons arbitrairement l'efficacité sous la forme

$$\mathcal{E}_\gamma = k.E_\gamma \quad \text{ou encore} \quad \mathcal{E}_i = k.E_i \quad (2.5)$$

où k est une constante.

Dans ce cas l'équation (2.4) devient :

$$\mathcal{E}_c = k.\sum_i^m E_i \quad (2.6)$$

Or  $\sum_i^m E_i$  n'est autre que  $E_c$ , l'énergie d'excitation du noyau (A+1) formé après capture du neutron par le noyau A. Ainsi on peut écrire:

$$\mathcal{E}_c = k.E_c \quad (2.7)$$

La probabilité de détecter une cascade est alors directement proportionnelle à son énergie totale. Cette dernière quantité est une constante dans le cas de réactions induites par neutrons monocinétiques et la probabilité devient donc indépendante du chemin emprunté. Cela permet au final, le comptage du nombre total de cascades indépendamment du chemin emprunté.

Malheureusement, expérimentalement la condition (2.5) n'est pas remplie : il va donc falloir convertir artificiellement (par introduction d'une fonction mathématique) notre efficacité vraie en une efficacité proportionnelle à l'énergie du rayonnement gamma incident.

C'est ici qu'entre en jeu ce que l'on appelle la fonction de poids.

Nous avons vu précédemment (fig. 2.11) que la fonction de réponse du détecteur était une distribution continue en énergie. A chaque énergie  $E_i$  de photon émis correspond une réponse  $R(E_d)$  continue couvrant toutes les énergies  $E_d$  ( $E_d$  énergie détectée) allant de 0 jusqu'à  $E_i$ .

La réponse du détecteur peut être ainsi décrite sous un format matriciel  $R(E_d, E_i)$  dont l'énergie détectée  $E_d$  et l'énergie incidente  $E_i$  seraient les indices.

Cette matrice est définie comme suit :

$$\sum_d R(E_d, E_i) = \varepsilon(E_i) \quad (2.8)$$

En d'autres termes, la projection sur l'axe des énergies émises notées aussi incidentes, doit donner la valeur de l'efficacité de détection  $\varepsilon$  en fonction de l'énergie du photon émis  $E_i$ .

Ne perdons pas de vue que nous voulons que notre efficacité de détection vraie soit proportionnelle à l'énergie du photon émis. Cette condition est obtenue en multipliant la matrice  $R$  par une fonction de poids  $W(E_d)$  fonction de l'énergie détectée, de telle sorte que l'on ait :

$$\sum_d W(E_d)R(E_d, E_i) = k.E_i \quad (2.9)$$

La constante de proportionnalité  $k$  est normalisée à 1 pour  $E_i = E_c$ ,  $E_c$  étant l'énergie totale de la cascade ou encore l'énergie d'excitation du niveau formé après capture neutronique.

#### 2.2.4.1 Construction de la matrice de réponse

Suite au travail précédent, nous disposons désormais de deux jeux de fonctions de réponse l'un expérimental, l'autre simulé, qui correspondent à des énergies incidentes discrètes. Ces deux jeux de fonction sont en très bon accord comme on peut le voir sur la figure (2.11). Nous pourrions donc construire une matrice avec ces fonctions de référence mais le but est de déterminer une fonction de poids continue qui s'appliquerait sur une plage continue d'énergie gamma  $E_i$ .

Il faut donc commencer par calculer les fonctions de réponse "manquantes" afin d'obtenir une matrice totale reliée à l'intervalle d'énergie considéré. L'avantage d'avoir une matrice continue, est que la détermination de la fonction de poids sera plus précise.

Dans la construction de la matrice totale, intervient un algorithme d'interpolation des valeurs situées entre chaque paire de distributions voisines  $R(E_n)$  et  $R(E_{n+1})$  obtenues à partir de simulations aux énergies  $E_n$  et  $E_{n+1}$ . Nous nous sommes placés ici dans le cas où toutes les sources étaient ponctuelles et infiniment minces (courbe noire de la figure 2.9).

L'idée pour déterminer la fonction de réponse à l'énergie  $E_j$  est de la déduire des 2 fonctions de réponses voisines d'énergie  $E_n$  et  $E_{n+1}$  où  $E_n < E_j < E_{n+1}$ .

Les spectres de celles-ci sont dans un premier temps étirés ou comprimés par rapport au gain attendu à l'énergie  $E_j$ , à l'aide de coefficient  $a_n$  et  $a_{n+1}$  que l'on définit comme  $a_n = E_j/E_n$  et  $a_{n+1} = E_j/E_{n+1}$  puis ajoutés ensemble suivant une combinaison linéaire. Lors de l'addition des spectres modifiés les deux paramètres  $p$  et  $q$  de normalisation sont définis comme suit :

$$p \frac{(E_i - E_n)}{(E_{n+1} - E_n)} = \text{et } q = 1 - p$$

de telle sorte que :

$$R(E_i) = R(E_n) \cdot p + R(E_{n+1}) \cdot q$$

Les contributions de  $R(E_n)$  et  $R(E_{n+1})$  au calcul de la fonction de réponse à l'énergie  $E_i$  sont normalisées au pas de l'itération  $(E_{n+1} - E_n)$ .

Les événements dans le spectre de départ sont redistribués en fonction du nouveau gain préservant ainsi l'aire totale de la fonction de réponse.

Une complication intervient lorsque dans les spectres adjacents des pics de second échappement ( $1022 \text{ keV} = 2 \times 511 \text{ keV}$ ) sont présents. Ceux-ci étant fixés à  $1022 \text{ keV}$  du front Compton, cette partie du spectre ne peut pas être étirée. Dans ce cas on décompose le spectre en deux parties : une fonction haute et une fonction basse, la séparation entre les deux fonctions se situant au canal correspondant au sommet du pic. Puis avec des coefficients de normalisation et de gain adéquats on fait coïncider les deux parties.

Pour les énergies gamma au-dessus de  $1.022 \text{ MeV}$  les coefficients  $a_n$  et  $a_{n+1}$  deviennent donc :

$$a_n = \frac{(E_i - 1.022)}{(E_n - 1.022)} \text{ et } a_{n+1} = \frac{(E_i - 1.022)}{(E_{n+1} - 1.022)}$$

Afin de tester le bon fonctionnement de l'interpolation nous avons calculé la réponse d'un rayonnement gamma de  $3164 \text{ keV}$  à l'aide des réponses des rayonnements de  $2614 \text{ keV}$  et  $4386 \text{ keV}$ . Puis nous l'avons comparé à la réponse simulée pour ce rayonnement de  $3164 \text{ keV}$ . Cet exemple d'interpolation est présenté dans la figure (2.13) en page suivante :

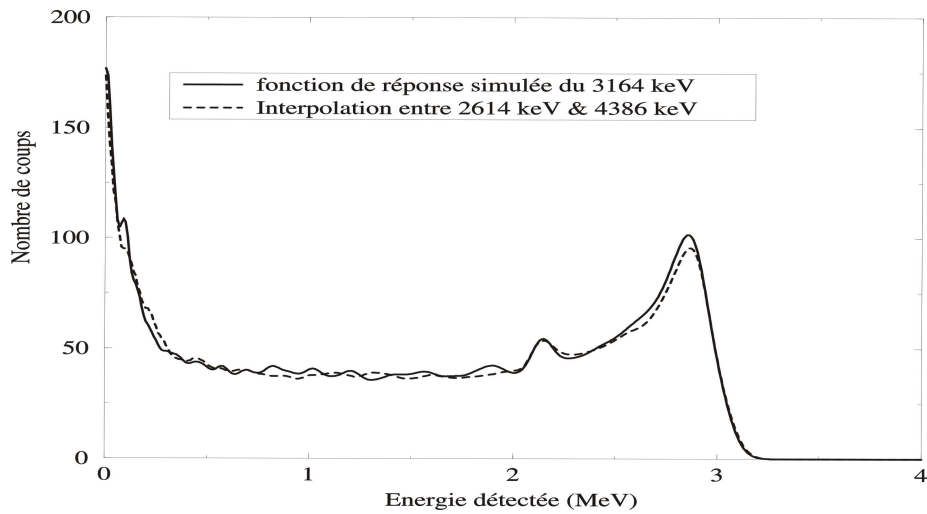


Fig. 2.13 : Comparaison entre fonction de réponse simulée et interpolée d'un gamma de 3164 keV

L'accord entre les deux spectres nous permet d'être confiant quant à la technique d'interpolation, et donc quant à la construction de la matrice totale à partir de la matrice de réponse obtenue par simulation.

#### 2.2.4.2 Obtention de la fonction de poids

La figure (2.14) illustre, dans une représentation en deux dimensions, une section à mi-hauteur de la matrice de réponse totale. Le spectre des couleurs s'étend du bleu au rouge dans le sens croissant.

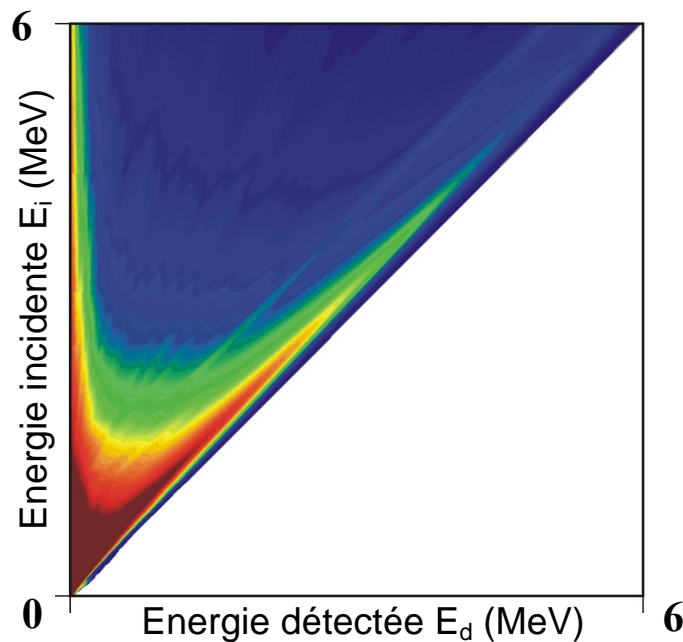


Fig. 2.14: Représentation en deux dimensions de la matrice des fonctions de réponse obtenue.

Une fois cette matrice calculée (700×700 avec un gain de 10 keV/canal), il suffit en principe de l'inverser pour obtenir une fonction de poids unique (à une énergie donnée) solution du système d'équations (2.9). Malheureusement la présence du seuil électronique rend la matrice singulière et son inversion n'est pas possible.

Il est tout de même possible de contourner cet écueil et de déterminer une fonction de poids qui permette l'obtention de la condition de linéarité (2.7). Cette approximation du problème est obtenue en contraignant la fonction de poids par un polynôme d'ordre 5 puis en minimisant l'expression suivante en fonction de paramètres de la fonction de poids  $W(E_d)$  :

$$\chi^2 = \sum_i \left( \sum_d (W(E_d)R(E_i, E_d)) - kE_i \right)^2 \quad (2.9)$$

où on rappelle que  $E_i$  fait référence à l'énergie incidente et  $E_d$  à l'énergie détectée.

La souplesse de cette expression permet au choix de minimiser  $\chi^2$ , pour certaines valeurs de  $R(E_i)$  ou pour la matrice totale, c'est à dire toutes les valeurs possibles de  $E_i$ . Dans ce dernier cas, la résolution de l'expression (2.9) prend beaucoup plus de temps de calcul (jusqu'à  $4 \times 10^5$  itérations pour chaque  $\chi^2$ ), la matrice de réponse allant jusqu'à une énergie de 6 MeV.

La minimisation proprement dite a été réalisée en utilisant un algorithme appelé "Downhill simplex method" [PRE02]. Ce dernier est un système robuste, converge toujours vers le plus petit minimum local et n'a pas besoin d'évaluer les dérivées de la fonction. Cette méthode due à Nelder et Mead [NEL65], est basée sur l'utilisation de ce qui est appelé un simplex. Un simplex est une figure géométrique constituée, dans un espace de recherche à N dimension, par N+1 points (sommets) et toutes leurs connections possibles, comme par exemple les lignes, les segments, les faces de polygones etc.. En deux dimensions le simplex est ainsi représenté par un triangle et en trois dimensions par un tétraèdre.

L'algorithme démarre avec un simplex dont un des points est pris comme point initial  $P_0$ , les autres points de définition étant, quant à eux, obtenus à l'aide de la relation suivante:

$$P_i = P_0 + \lambda e_i$$

où les  $e_i$  sont des vecteurs unitaires à N dimensions, et  $\lambda$  une constante introduite suivant la dimension de l'échelle caractéristique du problème. L'algorithme fonctionne par pas successifs ; la plupart du temps, les pas déplacent le point le plus haut vers la face opposée du simplex qui est le point le plus bas (minimum). Ces pas sont appelés réflexion et sont construits de manière à conserver le volume du simplex (pas de dégénérescence). Si l'espace de recherche le permet, l'algorithme peut étirer le simplex dans l'une ou l'autre des dimensions afin de créer des pas plus grands; on parle alors d'expansion. Sinon on parle de contraction lorsque l'espace est plus restreint.

Dans notre cas, les points situés sur la surface des  $\chi^2$ , sont testés. A tout moment l'algorithme connaît la position du maximum du simplex qui est sous une forme à trois sommets puis il détermine le prochain minimum par inversion. Comme nous venons de l'expliquer, le pas d'inversion peut être grand si la surface le permet ; sinon, l'algorithme réduit ses pas et descend ainsi de suite jusqu'à atteindre le minimum final. On peut également parler d'une forme de pavage de la surface à minimiser.

Une remarque ici, la routine de minimisation est aussi connue sous le nom d'Amibe (Ameoba) en référence au déplacement instinctif de cet organisme unicellulaire.

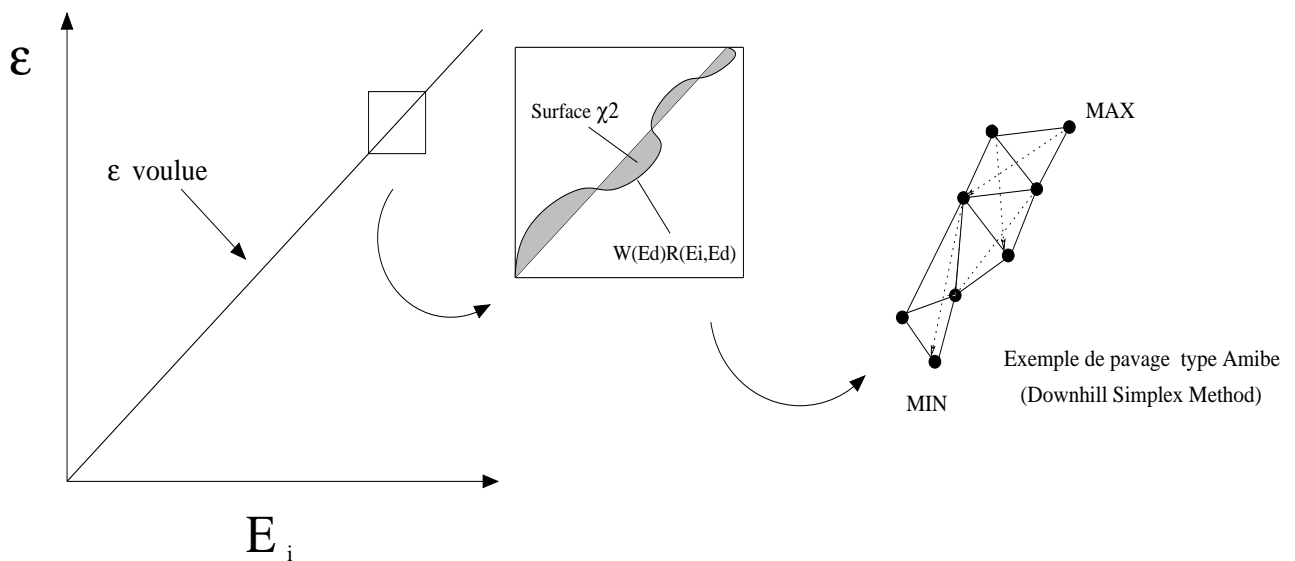
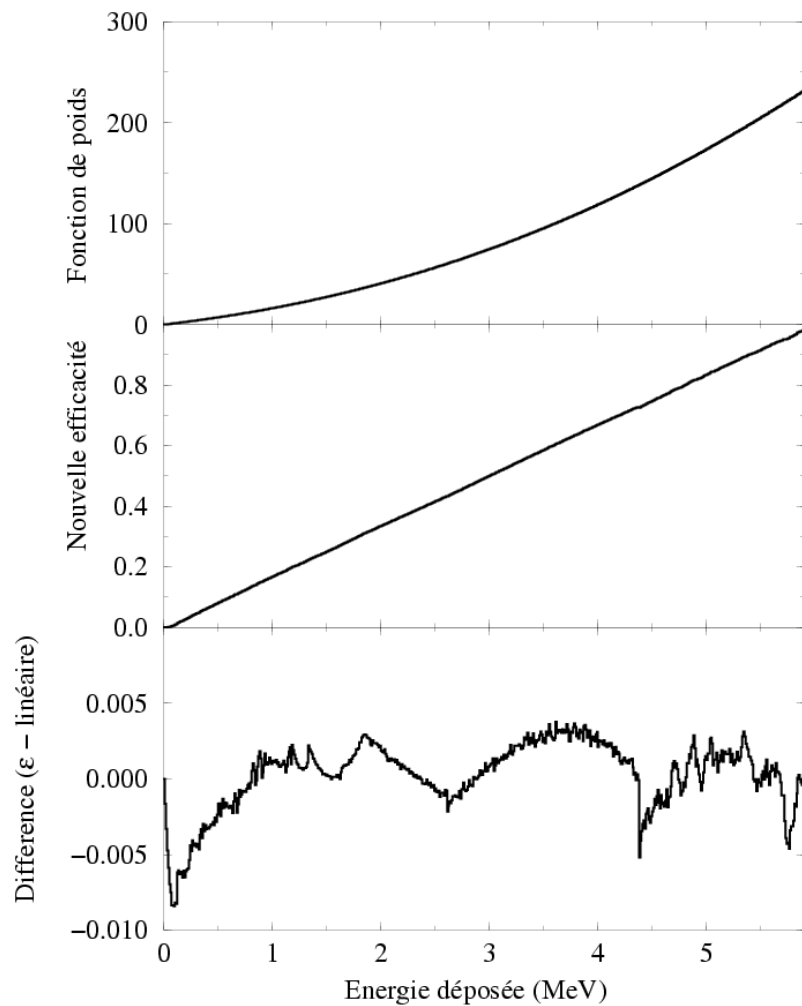


Fig. 2.15 : Représentation schématique du fonctionnement de la minimisation.

La figure suivante montre la fonction de poids obtenue, suite à la minimisation, et une comparaison entre l'efficacité voulue et la nouvelle efficacité après pondération. La courbe de la nouvelle efficacité est linéaire bien qu'il existe quelques petites fluctuations aux très basses énergies. En effet, sous le seuil de détection (40 keV électron) les fonctions de réponse sont par définition nulles et donc de ce fait il est impossible de pondérer à ces énergies. Ainsi il y aura toujours une déviation minimale par rapport à la linéarité. Dans notre cas les déviations sont inférieures à 1% mais contribueront tout de même à l'erreur systématique de la technique.



**Fig. 2.16 :** Graphe montrant la fonction de poids déterminée à partir de la matrice de réponse et l'efficacité du détecteur après pondération. La dernière fenêtre montre la déviation de la nouvelle efficacité par rapport à la linéarité.

### 2.2.4.3 Simulation d'une réaction de capture (n,γ)

Après avoir déterminé la fonction de poids par la méthode décrite plus haut, nous avons étudié les sources d'erreurs relatives à notre technique et la propagation de ces erreurs.

Une cascade gamma provoquée par une capture de neutron a été simulée à l'aide d'un modèle simple de désexcitation de niveaux nucléaires. Celui-ci a été choisi de telle sorte qu'il représente au mieux la réalité (multiplicité, distribution et énergie moyenne des rayonnements gamma émis lors de réactions de capture radiative (n,γ)). Un spectre de niveaux nucléaires de 1 à 6 MeV d'énergie d'excitation fut artificiellement constitué avec une densité d'états augmentant exponentiellement avec l'énergie d'excitation  $E_i$  suivant un paramètre de densité de niveaux  $\rho$  ( $\text{MeV}^{-1}$ ). Dans l'intervalle d'énergie d'excitation 0-1 MeV, six états fixes ont été également placés dans le spectre en énergie modèle.

Les énergies des différents états du spectre de niveaux nucléaires sont liées par la relation suivante:

$$E_{i+1} = E_i + \frac{1}{e^{\sqrt{a}E_i}} \quad (2.10)$$

Toutes les cascades gamma démarrent à 6 MeV d'énergie d'excitation. Un traitement Monte-Carlo construit différents schémas de désexcitation statistique pour atteindre le niveau fondamental en supposant que les transitions de désexcitation sont de type dipolaire électrique E1. La probabilité de décroissance des différents niveaux est donc proportionnelle à  $(E_\gamma)^3$ . Les spectres de transitions gamma ( $E_\gamma$  et multiplicité) sont stockés pour une utilisation ultérieure. Les résultats obtenus pour un paramètre de densité  $a = 21,0 \text{ MeV}^{-1}$  sont présentés sur la figure (2.17). Le spectre principal représente la distribution en énergie des transitions gamma simulées appartenant aux cascades. Les six niveaux discrets de basse énergie sont clairement définis. Le panneau en haut à droite met en relief les multiplicités mises en jeu dans la simulation.

Dans cet exemple particulier l'énergie moyenne des raies gamma et la multiplicité étaient respectivement 1,54 MeV et 3,8. C'est typiquement l'ordre de grandeur lors de capture radiative induite par neutrons sur des noyaux lourds.

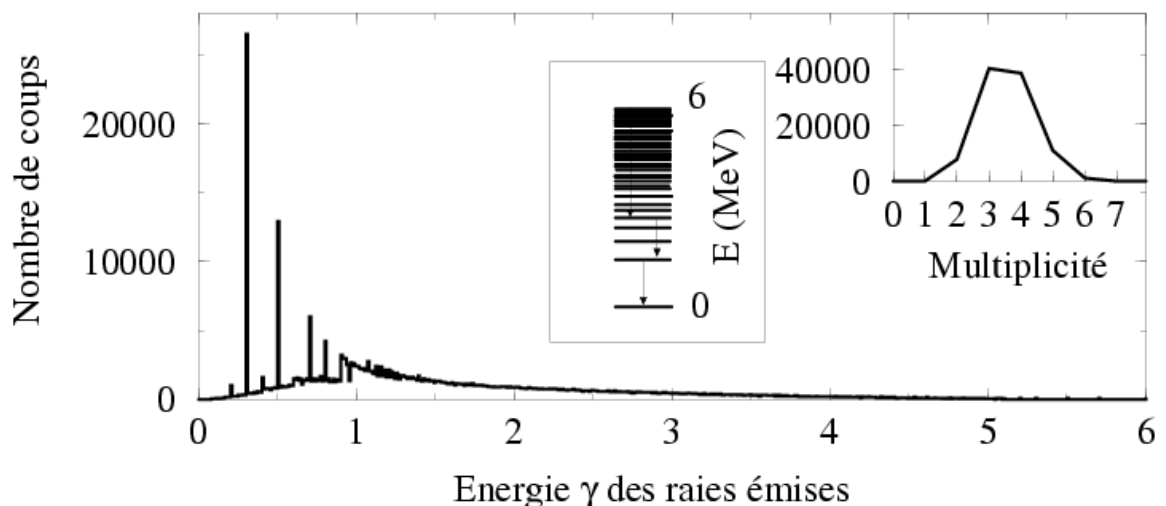


Fig. 2.17 : Résultat de la simulation des cascades

Rappelons que nous disposons d'une matrice de réponse simulée pour des photons incidents allant jusqu'à 6 MeV (figure 2.14). Nous allons pouvoir l'utiliser comme réponse du détecteur aux cascades simulées.



Les coups détectés ont été choisis de façon aléatoire, via une technique de tirage Monte Carlo, avec des probabilités pondérées par la fonction de réponse correspondant à l'énergie du photon interagissant dans le détecteur. En présentant à ce dernier un large nombre de cascades simulées (jusqu'à  $10^6$ ), un spectre d'événements détecté  $S_d$  a été construit. Si deux, voire plus de rayonnements gamma de la même cascade interagissent avec le détecteur, leurs énergies sont sommées de façon identique à ce qui se passe réellement dans le scintillateur.

En multipliant par la fonction de poids ce spectre détecté construit suite à un nombre parfaitement connu de cascades, on obtient un spectre pondéré. Après l'application de la fonction de poids  $W_d$  au spectre détecté  $S_d$ , l'aire du spectre pondéré  $S_d'$  doit être égale au nombre total de cascades émises lors de la simulation. Une différence entre ces deux valeurs illustrera les erreurs introduites par notre technique de détection.

De cette étude cinq sources d'erreurs ressortent :

- Erreurs sur les efficacités de détection mesurée ou simulée (erreur systématique).
- L'erreur statistique proprement dite, qui concerne les fluctuations statistiques sur le nombre de cascades détectées et leurs énergies relatives
- Les déviations de linéarité dans le calcul de la nouvelle efficacité liées à la précision du calcul de la fonction de poids (erreur systématique).
- Erreurs sur l'interpolation des fonctions de réponse lors de la construction de la matrice de réponse (erreur systématique).
- Une pondération incorrecte des énergies gamma due à une détection simultanée de plusieurs rayonnements gamma d'une même cascade (erreur systématique)

Les erreurs introduites dans le premier et le dernier point sont corrélées. En effet si on augmente la distance de détection du scintillateur, on diminue son efficacité ( $\propto 1/\text{dist}^2$ ). De ce fait, l'erreur statistique s'en trouve augmentée, mais la proportion de coups multiples, elle, diminue et inversement.

Le choix d'un pas fin (10 keV) lors de l'interpolation entre deux fonctions de réponse adjacentes introduit des erreurs suffisamment faibles pour être négligées. Nous avons testé qu'une détermination grossière de l'efficacité est bien plus dommageable pour l'obtention de la fonction de poids que ne le sont des variations de forme de la fonction de réponse. C'est la valeur de l'efficacité qui conditionne principalement la fonction de poids.

Un exemple de multiplication du spectre détecté par la fonction de poids est présenté sur la figure suivante:

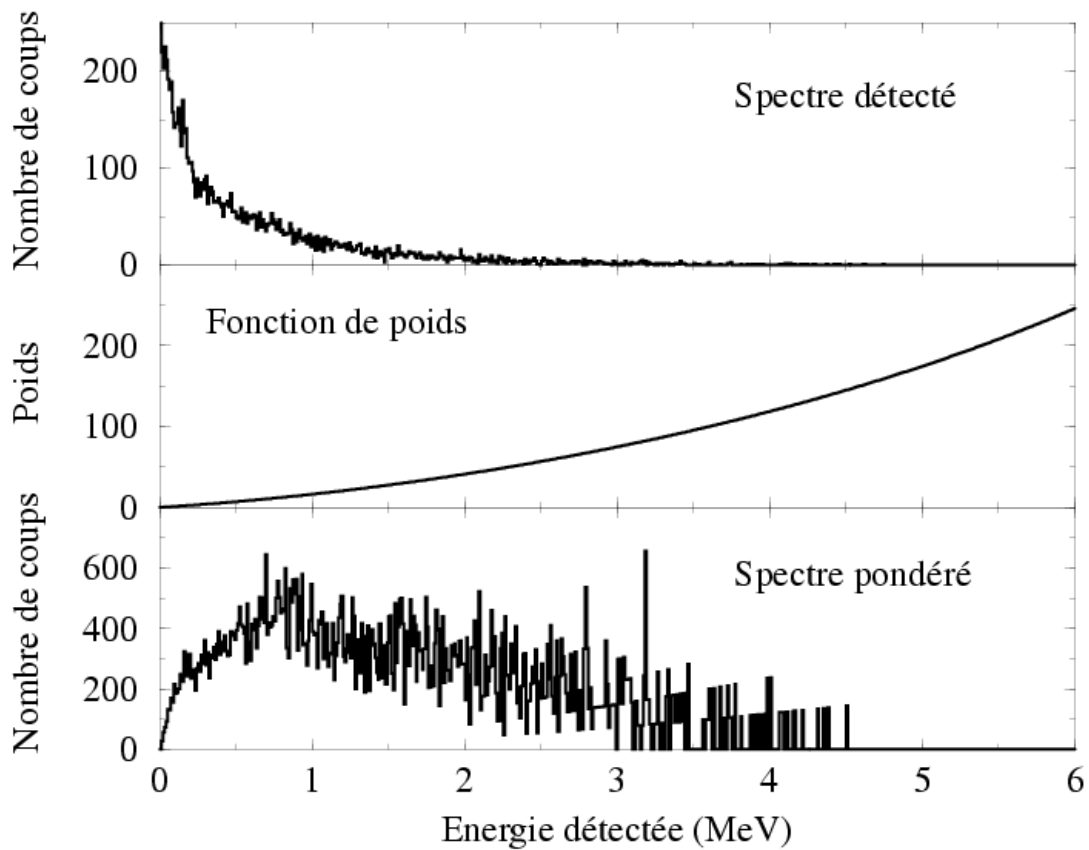


Fig. 2.18 : Multiplication par la fonction de poids

L'erreur statistique  $\sigma_s$ , sur le spectre pondéré peut être calculée à l'aide de l'expression suivante:

$$\sigma_s^2 = \sum_d (\sqrt{S_d} \times W_d)^2 \quad (2.11)$$

où  $S_d$  et  $W_d$  sont respectivement l'aire du spectre détecté et la fonction de poids.

Les données relatives à la cascade utilisée (multiplicité et énergies des raies) ont été introduites 1000 fois dans la simulation du détecteur et après chaque passage le nombre total de coups a été stocké puis sauvegardé dans un histogramme, formant une distribution de type gaussien. L'erreur statistique peut donc être calculée soit par la résolution de l'équation (2.11) soit à partir de la largeur du pic. L'erreur systématique est, quant à elle, déterminée par la déviation du centroïde par rapport au nombre total de cascades envoyées. Dans cet exemple particulier, l'erreur statistique pour  $10^5$  cascades (les deux méthodes fournissent les mêmes résultats), était de 2,15 % et l'erreur systématique de 0,6 %, même si 4,2 % des coups provenaient de comptages multiples dans le détecteur.

Si maintenant on introduit une erreur dans l'efficacité du scintillateur en augmentant ou diminuant artificiellement cette efficacité de par exemple  $x\%$ , on retrouve une sur- ou sous-estimation du nombre de coups pondérés finals de ce même facteur  $x\%$ . Suite aux comparaisons efficacités expérimentales et simulées (avec support) présentées figure (2.10), on a estimé une erreur systématique maximale de  $4\%$  sur la courbe simulée avec des cibles supposées ponctuelles et autoportées.

Un résultat surprenant venant des simulations est que si on augmente artificiellement l'efficacité et donc la détection de comptages multiples, l'erreur systématique n'est pas autant affectée que ce qu'on le pensait initialement. La méthode est donc beaucoup plus générale que prévue et l'hypothèse de départ, à savoir que l'efficacité de détection de rayonnements gamma doit être très petite ( $\epsilon \ll 1$ ) pour que la méthode marche, n'est pas nécessaire. Nous avons prouvé que l'on pouvait réaliser des mesures de section efficace ( $n, \gamma$ ) avec une précision raisonnable, sans pour autant répondre parfaitement à la condition d'une efficacité très faible et en ayant un fort taux de comptage multiple. Pour cela un test du comportement de notre méthode en supposant des efficacités de détection variant de 2 à 40 % a été réalisé.

Supposant que la forme des fonctions de réponses ne variait pas de façon significative, la matrice de réponse a été multipliée par différents facteurs. De nouvelles fonctions de poids ont été déterminées, puis la simulation de cascade a été appliquée pour chaque configuration. Au final, la différence entre les coups pondérés et le nombre de cascades de départ, donc l'erreur systématique, a été calculée et les résultats sont présentés sur la figure suivante :

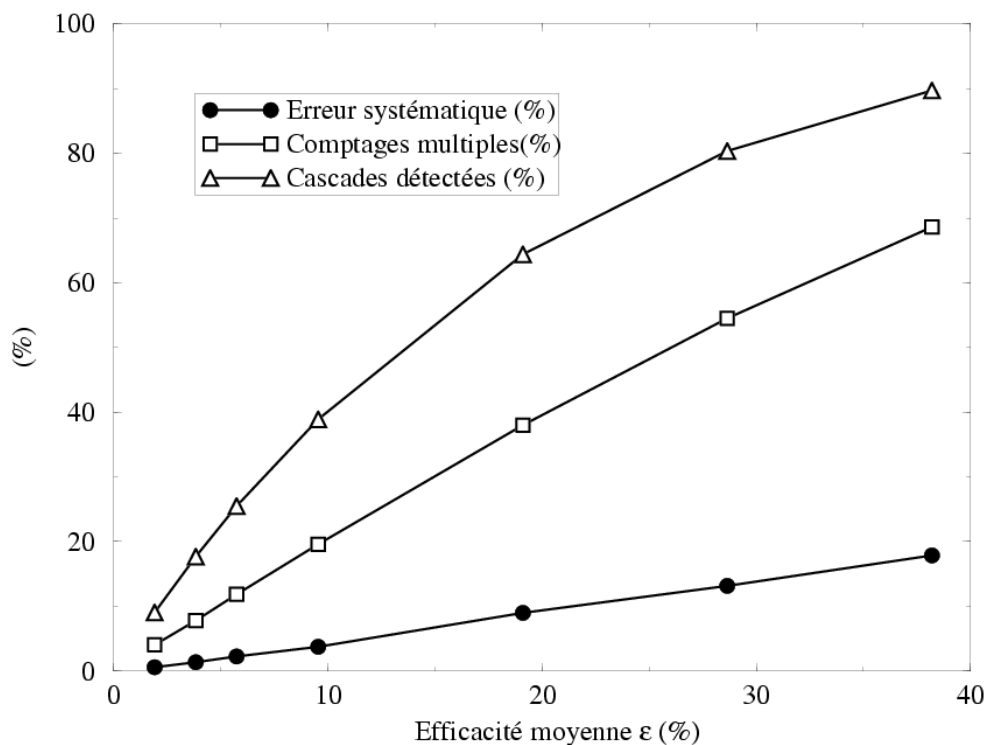
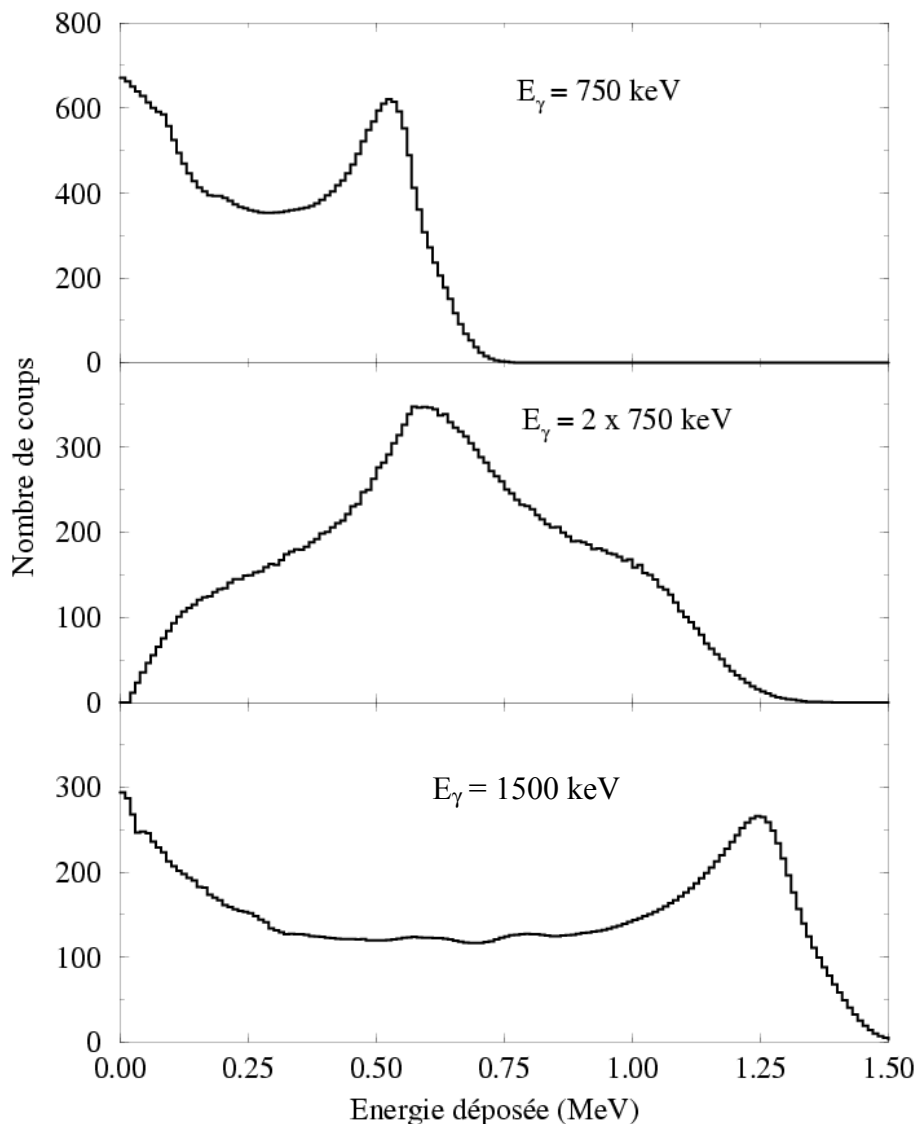


Fig. 2.19: Comportement de la méthode en fonction de l'efficacité moyenne de détection

On voit très clairement sur cette figure que si l'erreur systématique augmente comme prévu avec l'efficacité, dans ce cas à cause d'une surévaluation de la fonction de poids (multiplication de la matrice par différents facteurs), elle n'est pas si importante. Notre erreur systématique varie de 0,6 % ( $\bar{\varepsilon} = 1,91\%$ ) à 17,9 % ( $\bar{\varepsilon} = 38,2\%$ ) alors qu'à grande efficacité plus de la moitié des coups sont dus au comptage multiple.

Pour comprendre pourquoi, il est intéressant de considérer la réponse du scintillateur lorsque deux rayonnements gamma d'une même cascade interagissent simultanément dans ce dernier.



**Fig. 2.20 :** Comparaison de la réponse suite à un comptage multiple ( $E_\gamma = 2 \times 750 \text{ keV}$ ) et d'une détection simple ( $E_\gamma = 1500 \text{ keV}$ )

Cet exemple compare la réponse d'un rayonnement gamma de 1500 keV d'une cascade à celle de deux rayonnements gamma de 750 keV provenant d'une autre cascade ayant

emprunté un autre chemin de désexcitation. Les deux types de décroissance (strictement équivalents) sont censés avoir le même nombre de coups après pondération si la technique fonctionne également en comptage multiple. Le spectre double est une convolution de deux réponses simples d'un rayonnement de 750 keV. Il est clair qu'à aucun moment cette réponse ne correspond à celle du photon de 1500 keV. Pourtant les centroïdes des deux réponses (2×750 keV et 1500 keV) se trouvent être très proches. Ainsi, lors de la multiplication par la fonction de poids, certains coups dans le spectre double sont sous-estimés, tandis que d'autres au contraire sont surestimés. Les deux effets ont tendance à se compenser, ce qui a pour conséquence que la moyenne totale des coups pondérés n'est pas très différente de celle obtenue à partir de la réponse du rayonnement de 1500 keV. Pour cette raison, même si le pourcentage de comptage multiple est important, la validité de la technique n'est pas remise en cause. Il est d'ailleurs intéressant de noter que si l'on se place dans le cas idéal d'une efficacité constante avec de l'énergie, les fonctions de réponse sont simplement des distributions rectangulaires et la fonction de poids est linéaire, dans ce cas la technique marche parfaitement, quelles que soient les valeurs de l'efficacité. C'est donc bien une efficacité non constante et des fonctions de réponses légèrement asymétriques qui sont les principales causes de l'erreur systématique lorsque l'efficacité devient trop grande.

En résumé, si la section efficace ( $n,\gamma$ ) est très faible on peut rapprocher le dispositif de détection pour augmenter l'efficacité de détection. Même pour des valeurs d'environ 10 % l'erreur systématique sur le comptage des cascades gamma n'est que de l'ordre de 3 %, résultat qui semble indiquer que l'hypothèse nécessaire pour obtenir la relation (2.4) n'est pas trop sévère.

Par le biais de cette série d'expérimentations nous avons pu étudier et développer une technique originale de mesure de section efficace de décroissance gamma lorsque l'utilisation de détecteurs Germanium n'est pas possible à cause de problèmes d'endommagement dus aux neutrons. Nous avons mis en évidence l'influence primordiale de la géométrie et des matériaux environnants sur les résultats finals grâce à des mesures expérimentales d'efficacité et de fonction de réponse d'un détecteur  $C_6D_6$ . Il apparaît indispensable de faire ces mesures in situ afin de valider les simulations. Ce travail a pu être réalisé avec des sources et des réactions de référence.

La possibilité d'accepter des efficacités de détection de l'ordre de 10 % pour des réactions avec de très faibles sections efficaces a été également discutée pour les expériences futures. Cette étude détaillée du fonctionnement d'un scintillateur  $C_6D_6$  a fait l'objet d'une publication dans Nucl. Inst. and Meth. [WIL03].

Désormais nous disposons d'une méthodologie qui s'avère robuste et précise. Pour l'expérience GEMINI, l'objectif est de concevoir un dispositif qui tienne compte de toutes ces remarques et tout particulièrement celles qui concernent les matériaux au voisinage de la cible.

## 2.3 Expérience GEMINI 2003

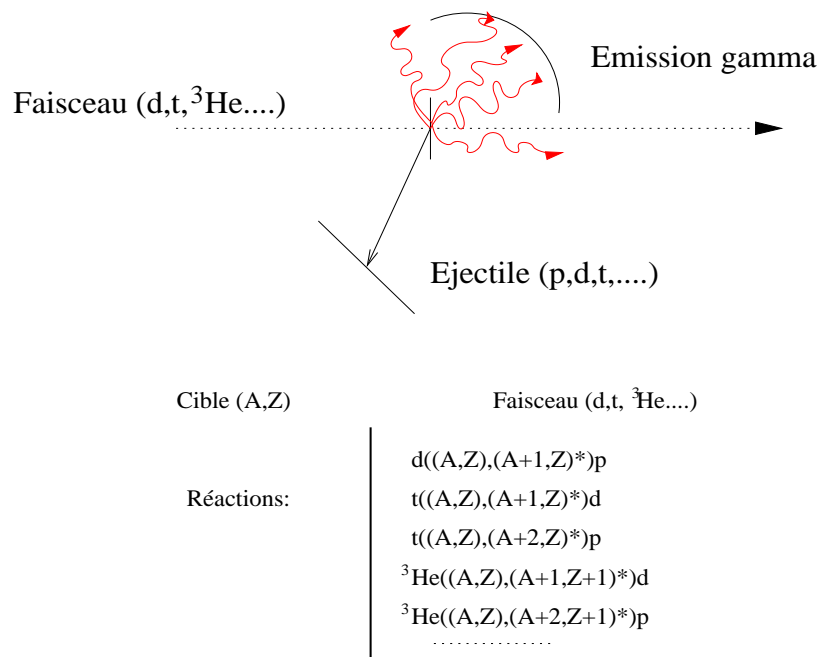
L'objectif de cette expérience est de former le noyau  $^{234}\text{Pa}$  dans un état excité puis de déterminer le nombre de fois où il se désexcite via une cascade gamma, afin de déduire la section efficace de capture radiative  $\sigma_{(n,\gamma)}$  de la réaction  $^{233}\text{Pa} + n$  en fonction de l'énergie des neutrons, c'est-à-dire en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$ .

### 2.3.1 Etudes préliminaires

#### 2.3.1.1 Contraintes expérimentales

Au sein de la filière Thorium comme dans la filière Uranium, il est possible de former des noyaux pour lesquels l'activité peut atteindre plusieurs Giga Becquerel. C'est le cas pour le noyau charnière  $^{233}\text{Pa}$  (27 j), de la filière  $^{232}\text{Th}$ - $^{233}\text{U}$ , dont l'activité est de  $10^9$  Bq/ $\mu\text{g}$ . Pour des raisons de radioprotection (et donc de fortes contraintes administratives..), il est très difficile d'envisager l'utilisation d'une telle cible pour une expérience dans un laboratoire du CNRS.

Afin de contourner cette difficulté, nous nous sommes tournés vers une méthode originale, proposée dès le début des années 1970 par Cramer et Britt [CRA70]. Leur approche consistait à utiliser des réactions de transfert de particules pour former le noyau excité dont ils voulaient étudier les propriétés. C'est un protocole expérimental dont s'est déjà inspiré avec succès le groupe ACEN du CENBG pour l'étude de la fission du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$ .



\*Energie d'excitation déterminée par la cinématique

Fig. 2.21 : Principe schématique des réactions de transfert.

Le principe des réactions de transfert repose sur le fait que lorsqu'un faisceau de particules légères ( $^3\text{He}$  par exemple) d'énergie supérieure à la barrière Coulombienne du système projectile/cible, interagit avec une cible stable (ou considérée comme telle), la détection de l'éjectile permet de signer le noyau formé et donne également accès à son énergie d'excitation. Si maintenant on détecte en coïncidence son rayonnement gamma à l'aide du type de détecteur décrit précédemment, on peut compter le nombre de cascades émises et remonter dans un premier temps aux probabilités d'émission gamma (pour une énergie d'excitation donnée).

Lors de l'étude de la fission du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ , il a été montré que, bien que les moments angulaires orbitaux ( $\ell$ ) transférés ne soient pas parfaitement identiques dans le cas d'une réaction de transfert ou dans le cas d'une capture directe de neutrons, ces différences n'affectaient pas grandement les valeurs de sections efficaces de fission [PET04]. Nous allons nous placer dans le cadre de cette hypothèse pour la désexcitation gamma.

### 2.3.1.2 Le couple cible projectile

Le choix du couple ( $^{232}\text{Th}, ^3\text{He}$ ) n'a bien entendu pas été modifié. Cette étude s'inscrit, comme nous l'avons déjà signalé, dans la continuité des travaux réalisés par le groupe ACEN sur le noyau de  $^{233}\text{Pa}$  commencés trois ans auparavant avec l'étude de la voie fission. Comme nous pouvons le voir sur la figure (2.21) avec une liste non exhaustive de réactions possibles, les réactions de transfert permettent d'étudier pour un même couple plusieurs réactions à la fois. Ainsi nous allons étudier les quatre réactions suivantes :



dont les caractéristiques générales sont portées dans le tableau (2.4).

Cible projectile	Ejectile	Particules transférées	Noyau formé	Q (MeV)	Barrière Coulombienne (MeV)	Bn (MeV)	Bf (MeV)
$^{232}\text{Th} - ^3\text{He}$	proton	1p,1n	$^{234}\text{Pa}$	+2.745	28.47	5.219	6.219
$^{232}\text{Th} - ^3\text{He}$	deuton	1p,0n	$^{233}\text{Pa}$	-0.246	28.47	6.527	5.250
$^{232}\text{Th} - ^3\text{He}$	triton	1p,-1n	$^{232}\text{Pa}$	-0.513	28.47	5.553	5.773
$^{232}\text{Th} - ^3\text{He}$	alpha	0p,-1n	$^{231}\text{Th}$	+14.14	28.47	5.118	5.450

**Tab 2.4:** Réactions de transfert possibles à partir du couple  $^{232}\text{Th} - ^3\text{He}$

$Q$  = chaleur de réaction

$Bn$  = énergie de séparation du premier neutron

$Bf$  = énergie approximative de la barrière de fission

Lors de réactions induites par neutrons, la capture radiative, la diffusion de neutron ou la fission sont autant de processus de réactions qui entrent en compétition. Au-delà du seuil de fission des rayonnements gamma de basse énergie (~500 keV) et de multiplicité élevée (jusqu'à 8) provenant des fragments de fission vont se mélanger aux rayonnements de capture radiative. C'est pourquoi on s'est limité à des énergies d'excitation situées sous la barrière de fission. Dans le cas de la réaction  $^{233}\text{Pa} + n$ , le seuil fission correspond à une énergie de neutrons d'environ 1 MeV [PET04].

Sur le tableau (2.4), on peut remarquer que la réaction signée par le deuton conduisant au  $^{233}\text{Pa}$ , a un seuil de fission  $B_f$  inférieur au seuil neutron  $B_n$  et que dans ces conditions les rayonnements gamma de fission sont partout présents, aussi nous ne pourrions pas exploiter cette voie de réaction.

Pratiquement, le dispositif expérimental doit permettre de déterminer le noyau résiduel formé en identifiant la nature et l'énergie de l'éjectile associé. Cette signature par particules légères doit être couplée à une détection en coïncidence de l'éventuelle émission gamma des noyaux associés. Les barrières Coulombiennes propres aux réactions ne nous autorisent pas la réalisation de l'expérience auprès du Van de Graaff du CENBG, c'est pour cela que nous nous sommes orientés vers les facilités offertes par l'accélérateur Tandem d'Orsay.

### 2.3.1.3 Cinématique des réactions de transfert

La connaissance de l'énergie de l'éjectile permet de remonter à l'énergie d'excitation du noyau associé. Les différents paramètres mis en jeu dans les réactions de transfert (réactions à deux corps) peuvent être reliés par des relations de cinématique que nous allons présenter maintenant.

- Les paramètres de la voie d'entrée sont :
  - l'énergie cinétique et la masse du projectile ( $E_{\text{pro}}, m_{\text{pro}}$ )
  - la masse de la cible ( $m_{\text{cib}}$ )
- Les paramètres de la voie de sortie sont :
  - l'énergie cinétique, la masse et l'angle d'émission de l'éjectile ( $E_{\text{ej}}, m_{\text{ej}}, \theta_{\text{ej}}$ )
  - l'énergie cinétique, la masse, l'angle d'émission et l'énergie d'excitation du noyau de recul ( $E_{\text{rec}}, m_{\text{rec}}, \theta_{\text{rec}}, E^*$ )

Une vision schématisée d'une réaction à deux corps résumant les données cinématiques disponibles lors d'une réaction de transfert est présentée sur la figure (2.22):



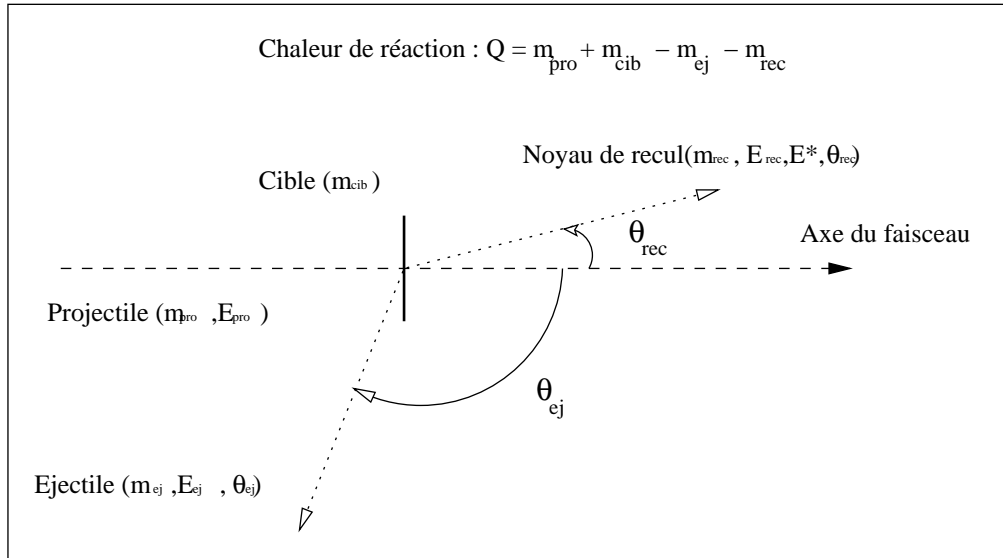


Fig. 2.22 : Les données cinématiques d'une réaction de transfert

Pour connaître l'énergie d'excitation  $E^*$  du noyau de recul en fonction des grandeurs cinématiques de la figure (2.22) il suffit d'utiliser les relations classiques liées à la conservation de l'énergie totale et celle de l'impulsion. On se place dans le cas d'une cinématique non relativiste.

La conservation de l'énergie nous donne :

$$E_{ej} = E_{pro} - E_{rec} - E^* + Q \quad (2.12)$$

avec  $Q = m_{pro} + m_{cib} - m_{ej} - m_{rec}$

et celle de l'impulsion :

$$\vec{p}_{pro} = \vec{p}_{ej} + \vec{p}_{rec} \quad (2.13)$$

où  $\vec{p}_{pro}, \vec{p}_{ej}, \vec{p}_{rec}$  sont respectivement les quantités de mouvement du projectile, de l'éjectile et du noyau de recul.

L'énergie d'excitation du noyau de recul s'exprime en fonction de l'énergie de l'éjectile :

$$E^* = E_{pro} + Q - E_{ej} - \frac{1}{m_{rec}} \left[ \alpha_{pro} + \left[ \alpha_{ej} - 2\sqrt{(\alpha_{pro} \cdot \alpha_{ej})} \cdot \cos(\theta_{ej}) \right] \right] \quad (2.14)$$

avec  $\alpha_{pro} = m_{pro} \cdot E_{pro}$   
et  $\alpha_{ej} = m_{ej} \cdot E_{ej}$

On peut renverser la relation (2.14) pour avoir l'énergie de l'éjectile en fonction de l'énergie d'excitation. Le résultat de cette opération donne la relation finale (2.15).

$$E^* = E_{pro} + Q - E_{ej} - \frac{1}{m_{rec}} \left[ \alpha_{pro} + \left[ \alpha_{ej} - 2\sqrt{(\alpha_{pro} \cdot \alpha_{ej})} \cdot \cos(\theta_{ej}) \right] \right] \quad (2.15)$$

$$\text{avec } \alpha = m_{pro} \cdot E_{pro} \cdot m_{ej},$$

$$\text{et } m_{com} = m_{ej} + m_{rec}$$

les expressions (2.11) et (2.12) nous donnent également l'énergie de recul et la relation entre l'angle de recul et l'angle de l'éjectile :

$$\text{Energie de recul :} \quad E_{rec} = E_{pro} - E_{ej} - E^* + Q \quad (2.16)$$

$$\text{Angle de recul :} \quad \theta_{rec} = \arcsin \left( \sqrt{\frac{m_{ej} \cdot E_{ej}}{m_{rec} \cdot E_{rec}}} \cdot \sin(\theta_{ej}) \right) \quad (2.17)$$

### 2.3.2 Détection des éjectiles : contraintes et dispositif

Nous avons vu que les éjectiles sont des particules légères chargées, pouvant être de nature différente comme des protons, des deutons, des tritons ou des particules alpha.

Pour la détection de telles particules nous avons utilisé des jonctions semi-conductrices dont le principal matériau est le silicium. Ce type de jonction développée depuis le début des années 60 est opérationnel à température ambiante et donne une réponse en temps rapide et une bonne résolution en énergie. Afin de réduire leur encombrement on peut aisément diminuer leur surface semi-conductrice à quelques dizaines de  $\text{cm}^2$ , ce qui était tout à fait adapté à l'expérience que l'on se proposait de réaliser.

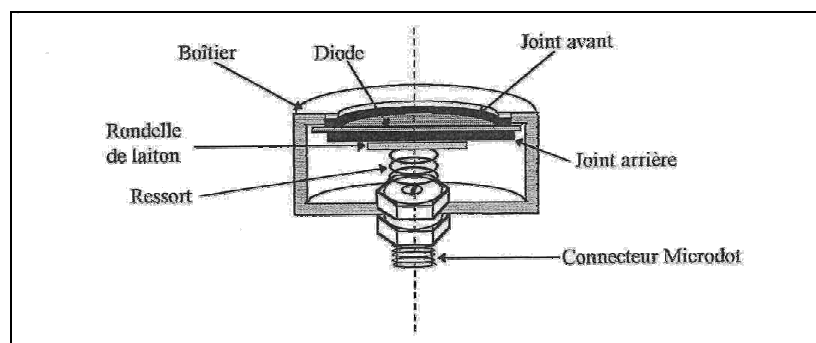


Fig. 2.23: Boîtier et détecteur en coupe [EUR97]

La fabrication des jonctions que nous avons utilisées, combine la "passivation" (oxydation à haute température, création d'un dépôt de  $\text{SiO}_2$ ) et l'implantation ionique d'impuretés (bore)

dopant ainsi la jonction en niveaux accepteurs d'électrons (type p). Par cette méthode, on minimise les courants de fuite et donc au final le bruit des détecteurs. La fenêtre d'entrée étant de très faible épaisseur, la bonne résolution intrinsèque de la jonction est préservée.

Ces types de détecteurs sont toujours alimentés en polarité positive et les tensions d'alimentation varient suivant l'épaisseur de la jonction (Ex: (300  $\mu\text{m}/40\text{V}$ ), (5000  $\mu\text{m}/500\text{V}$ )). Une fois polarisés, ceux-ci sont très sensibles à la lumière.

Les combinaisons de deux détecteurs silicium, voire plus, d'épaisseur différente, sont tout à fait possibles : on parle alors de montage télescope (figure 2.24).

### 2.3.2.1 Fonctionnement d'un télescope

Classiquement, il est composé d'au moins deux détecteurs montés en série dont le premier est utilisé en transmission. En le traversant, la particule incidente est ralentie, puis elle entre dans le second détecteur où elle est complètement stoppée. Les signaux observés en sortie de chaque détecteur sont proportionnels à la quantité d'énergie déposée lors du passage ou de l'arrêt de la particule.

En ne prenant que les évènements en coïncidence entre les deux détecteurs on peut mesurer simultanément pour chaque particule incidente la perte d'énergie  $\Delta E$  dans la jonction fine, ce qui nous renseigne sur l'identité de la particule et l'énergie résiduelle  $E$  dans la jonction plus épaisse. La somme  $\Delta E + E$  nous donne alors son énergie initiale.

### 2.3.2.2 Identification de la nature des particules

En plus de leur énergie, il est possible d'identifier la nature des particules détectées. Cette identification se base sur la formule de Bethe Bloch qui régit les propriétés de passage des particules à travers la matière. Dans le cas non relativiste, d'une particule de masse  $m$  et de charge  $ze$ , cette formule peut s'écrire:

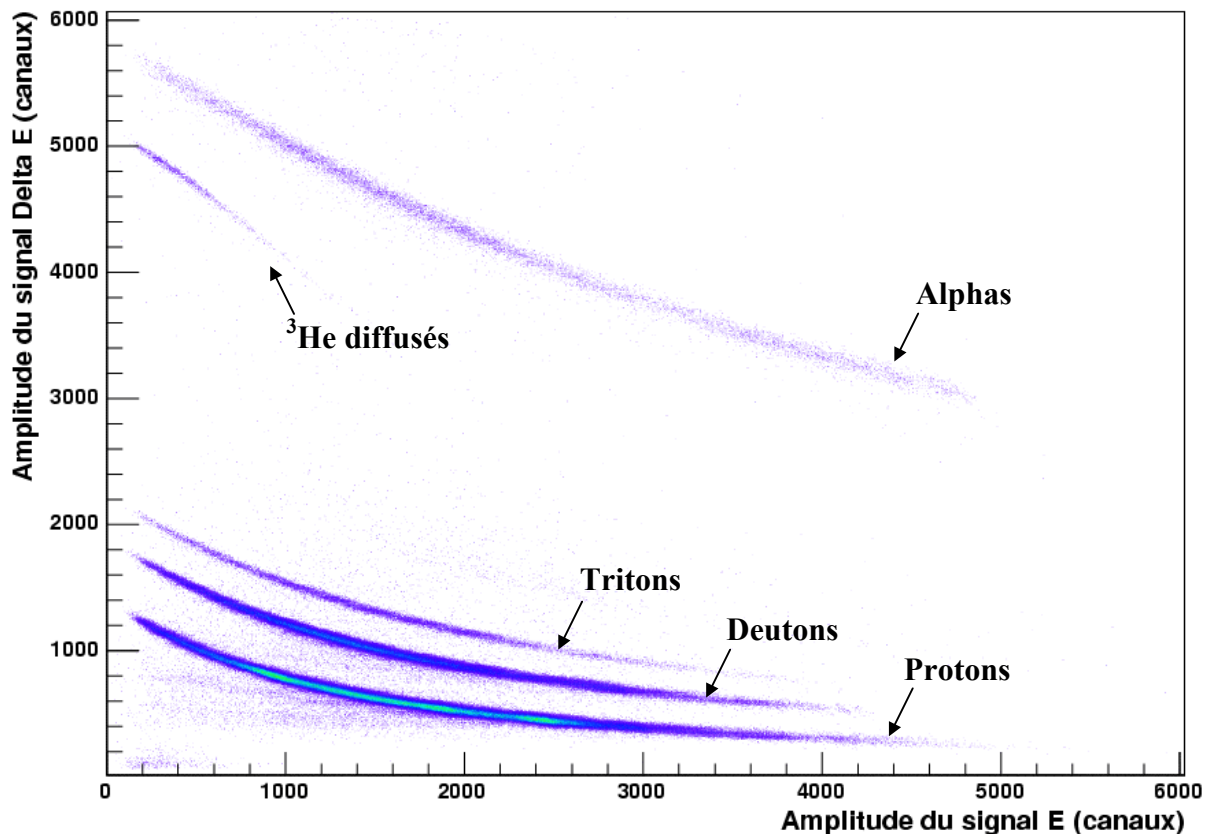
$$\frac{dE_i}{dx} = C1 \frac{mz^2}{E_i} \text{Ln}(C2) \quad (2.18)$$

où  $C1$  et  $C2$  sont des constantes,  $E_i$  et  $\frac{dE_i}{dx}$  sont respectivement l'énergie initiale et le pouvoir d'arrêt de la particule.

De façon encore plus simple (2.18) s'écrit:

$$\frac{dE_i}{dx} \propto \frac{mz^2}{E_i} \quad (2.19)$$

(2.19) exprime une relation entre l'énergie initiale de la particule et son pouvoir d'arrêt directement proportionnel à sa masse et à son numéro atomique qui sont les deux paramètres qui identifient une particule. Ainsi après intégration et dans le cas où  $\Delta E \ll E_i$  (id  $E_i \approx E$ ) en traçant  $\Delta E = f(E)$  on obtient pour chaque particule des courbes qui suivent une distribution en  $\ln E$  espacées d'un facteur d'échelle en  $mz^2$ .



**Fig. 2.24:** Exemple de représentation  $\Delta E$ - $E$  réalisée sur une partie de la statistique pour la réaction  $^{232}\text{Th} + ^3\text{He}$ . L'identification des particules est visible sous forme de "bananes" distinctes.

### 2.3.2.3 Dispositif expérimental utilisé

Afin d'augmenter notre statistique nous avons utilisé quatre montages télescopes identiques disposés en forme de croix à  $120^\circ$  par rapport à l'axe du faisceau. Chacun de ces montages était composé d'un détecteur  $\Delta E$  de  $300 \mu\text{m}$  et d'un détecteur  $E$  de  $5000 \mu\text{m}$  dont l'épaisseur suffisait à arrêter les protons les plus énergétiques ( $\sim 30 \text{ MeV}$ ). Suivant les réactions utilisées, différents jeux de collimateurs en tantale ont été placés devant les fenêtres d'entrée situées à  $32,2 \text{ mm}$  du support de cible, les diamètres d'ouverture ( $2 \text{ mm}$ ,  $5,6 \text{ mm}$ ,  $7 \text{ mm}$  et  $10 \text{ mm}$ ) ayant été optimisés pour assurer un taux de comptage maximum compatible avec une résolution en énergie acceptable. Ces collimateurs diminuent les effets de bord dans le détecteur  $E$ .

Pour ne pas endommager les détecteurs par d'éventuels fragments de fission, une mince feuille en aluminium ( $\sim 30 \mu\text{m}$ ) était placée sur les collimateurs. Elle était suffisamment fine pour stopper les fragments sans engendrer une détérioration notable de l'énergie de la particule.

Le dispositif a été non seulement utilisé pour la mesure de section efficace ( $n, \gamma$ ) mais également dans le cadre de mesures préliminaires de fonctions de réponse et d'efficacité des scintillateurs  $\text{C}_6\text{D}_6$  avec des réactions sur cible légère productrices de rayonnements gamma de haute énergie et identifiées par l'émission de particules légères.

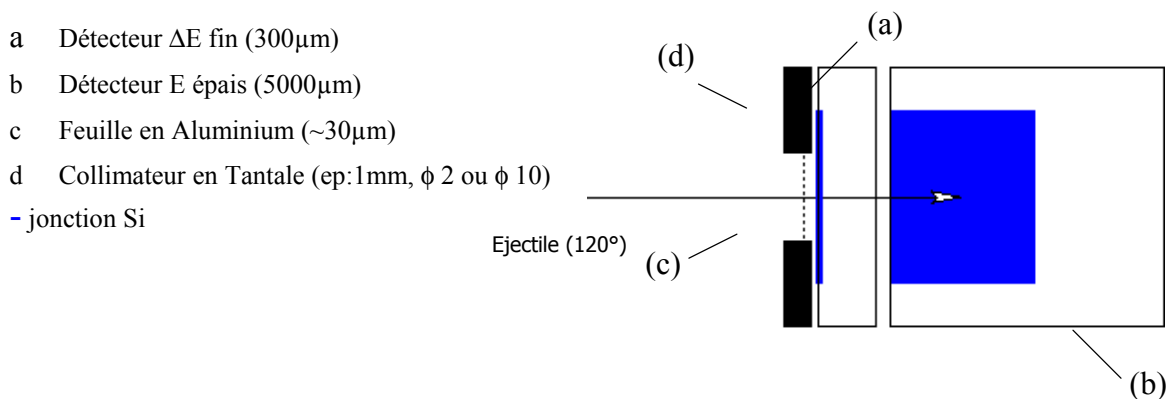


Fig. 2.25 : Schéma représentant un de nos montages télescopes.

### 2.3.2.4 Résolution en énergie des télescopes

Elle a été déterminée en vide primaire à l'aide d'une source  $3\alpha$  ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ) pour chacun des quatre détecteurs  $\Delta E$  et E. Les mesures ont été effectuées sans la présence des collimateurs mais suivant la géométrie du dispositif final de détection de particules.

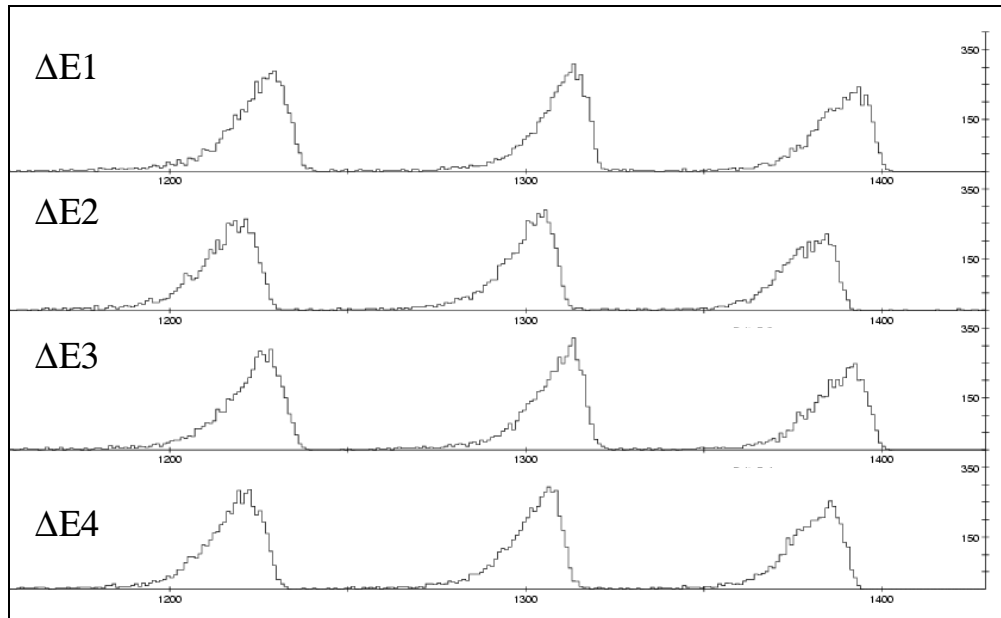
Les résolutions expérimentales (%) aux énergies  $\alpha$  considérées (0,94 kBq au 20/09/01) sont portées dans le tableau ci-dessous pour chaque détecteur:

Isotope	$E_\alpha$ (MeV)	$\Delta E1$	$\Delta E2$	$\Delta E3$	$\Delta E4$	E1	E2	E3	E4
$^{239}\text{Pu}$	5,156	1,50	1,55	1,52	1,55	2,47	2,12	2,34	1,78
$^{241}\text{Am}$	5,485	1,13	1,16	1,21	1,10	2,40	2,11	1,99	1,91
$^{244}\text{Cm}$	5,805	1,19	1,20	1,19	1,19	2,23	1,77	1,76	1,60

Tab 2.5: Résolution (%) des quatre détecteurs  $\Delta E$  et E en source  $3\alpha$ . Les mesures ont été réalisées dans la géométrie du dispositif final de détection de particules et sans collimateur.

Un exemple de spectre en source  $3\alpha$  pour le cas de détecteurs  $\Delta E$  est porté sur la figure ci-dessous. Les trois pics  $\alpha$  sont parfaitement séparés permettant ainsi la détermination des

résolutions aux énergies considérées. La mesure a été effectuée dans une géométrie où le dispositif de détection de particules était complet.



**Fig. 2.26:** Spectres  $\Delta E$  réalisés en source  $3\alpha$  sans collimateur dans une géométrie où le dispositif de détection de particules était complet (quatre montages  $\Delta E/E$ ).

### 2.3.3 Détection gamma: Contraintes et dispositif

Nous ne reviendrons pas sur le choix du type de détecteur discuté précédemment mais nous remarquerons que le dispositif doit nous permettre de réaliser à la fois une étude complète des scintillateurs dans la géométrie choisie (dans l'optique de détermination des fonctions de poids) et un comptage de cascades gamma en environnement neutronique lors de la réaction de transfert.

#### 2.3.3.1 Discrimination neutron-gamma

La discrimination neutron gamma a déjà été exposée lors de la présentation du scintillateur au tout début du chapitre (cf. 2.2.1).

#### 2.3.3.2 Dispositif expérimental de détection gamma

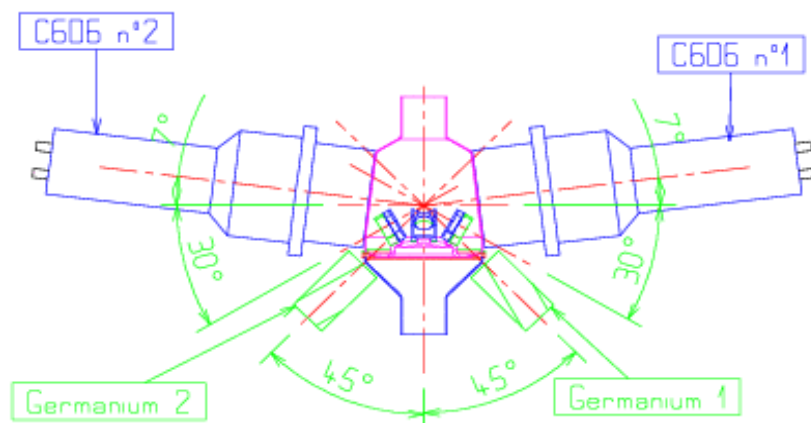
Deux configurations ont été utilisées. La première, composée de quatre scintillateurs  $C_6D_6$  et de deux détecteurs Germanium de haute résolution en énergie, a servi à mesurer

l'efficacité et les réponses des scintillateurs  $C_6D_6$  à l'aide de sources scellées, en n'analysant que les cascades de multiplicité égale à 2 (cf. 2.2.2.1).

La deuxième configuration, composée des quatre scintillateurs  $C_6D_6$  uniquement, a été utilisée avec des sources mono énergétiques ou en réactions sur cibles légères ( $Z \sim 6$ ). Cette deuxième configuration est celle adoptée pour l'expérience de capture radiative sur le  $^{233}Pa$ . La disposition des différents détecteurs, est bien entendu inspirée par la campagne d'étude au CENBG.

Ainsi les scintillateurs étaient placés en hélice, chacun formant une pale suivant un angle de  $45^\circ$  par rapport à l'horizontale. En raison de leurs dimensions, les détecteurs se trouvaient dans un plan incliné de  $7^\circ$  par rapport au plan perpendiculaire à l'axe du faisceau pris comme axe de référence. Cet artifice permettait d'atteindre la distance, la plus proche possible (7 cm des futures cibles) de celle utilisée à Bordeaux (6,5 cm).

En configuration mixte ( $C_6D_6$  + Germanium) les détecteurs Germanium situés à  $45^\circ$  en retrait par rapport à la direction du faisceau, au plus proche de la chambre de réaction afin d'augmenter leur efficacité de détection. La configuration géométrique générale est présentée sur le dessin en coupe (vue de dessus) ci-dessous où les scintillateurs ont été ramenés dans le plan de la feuille pour les besoins de la figure. On notera encore une fois l'aspect très compact de la géométrie de l'ensemble du dispositif de détection.



**Fig. 2.27:** Coupe montrant une vue de dessus de la géométrie du dispositif de détection de rayonnements gamma formé de quatre scintillateurs  $C_6D_6$  et de deux détecteurs Germanium. Dans un souci de clarté les scintillateurs ont été ramenés dans le plan de la page. Lors de l'expérience de mesure de section efficace ( $n, \gamma$ ) les détecteurs Germanium sont dépolarisés et démontés.

Suivant le type de configuration choisie, ce dispositif permet d'enregistrer, via une électronique appropriée, des coïncidences gamma/gamma ( $C_6D_6$  + Germanium) ou des coïncidences gamma/particules (détecteurs Germanium démontés). Les seuils de détection des

scintillateurs ont été réglés le plus bas possible ( $\sim 40$  keV électron) pour ne pas perturber la détermination des fonctions de réponse et surtout pour ne pas trop diminuer l'efficacité du dispositif.

### 2.3.4 Electronique et traitement du signal associé

Les informations ont été traitées via un système d'acquisition composé de deux cartes électroniques au standard VXI (**VME (Versa Module Europa) eXtention for Instrumentation**, standard industriel développé, entre autre, pour le multi-détecteur EUROGAM). Ces cartes comprennent tous les modules de base d'une acquisition de physique nucléaire, comme par exemple des amplificateurs linéaires (LA), des amplificateurs à filtre temporel (TFA), des discriminateurs à fraction constante (CFD) etc.. L'avantage ici est de pouvoir modifier directement en ligne via une station de contrôle SUN tous les paramètres, puisqu'ils sont regroupés.

Dans son principe, le système doit pouvoir gérer les événements dits simples et les événements en coïncidence pour chaque détecteur. Et ceci dans les deux configurations expérimentales possibles:

#### *Mesure des efficacités et des réponses des détecteurs $C_6D_6$*

Un événement simple est ici soit un signal qui provient du OU logique des deux détecteurs Germanium, indépendamment des signaux dans les  $C_6D_6$ , soit un signal venant du "OU" logique des quatre scintillateurs  $C_6D_6$ , indépendamment des signaux dans les détecteurs Germanium.

Un événement en coïncidence est un signal provenant de l'un des détecteurs Germanium mais avec également une détection dans l'un des scintillateurs  $C_6D_6$ . Le déclenchement de l'acquisition est donc assuré par le OU logique Germanium et la fenêtre en temps qui autorise la prise en compte d'éventuels signaux venant des  $C_6D_6$  est de 400 ns.

Cette hiérarchie autorise l'enregistrement de tous les événements (événements simples et en coïncidence) nécessaires à nos mesures. Dans le cas particulier où seul le OU logique des  $C_6D_6$  déclenche l'acquisition les autres voies sont inhibées, c'est donc une mesure complètement à part.

Pour l'utilisation des réactions signées par particules dans le cadre des mesures d'efficacité et de fonctions de réponse, les détecteurs Germanium sont déconnectés du dispositif et l'électronique de coïncidence est alors déclenchée par le "OU" logique des quatre  $\Delta E$  (même largeur de la fenêtre en temps). Le traitement d'événements simples ne concerne ici que les seuls signaux fournis par l'un des quatre détecteurs  $\Delta E$ , qui remplacent donc, par rapport au cas précédent, ceux venant des détecteurs Germanium.



*Mesure de section efficace ( $n, \gamma$ )*

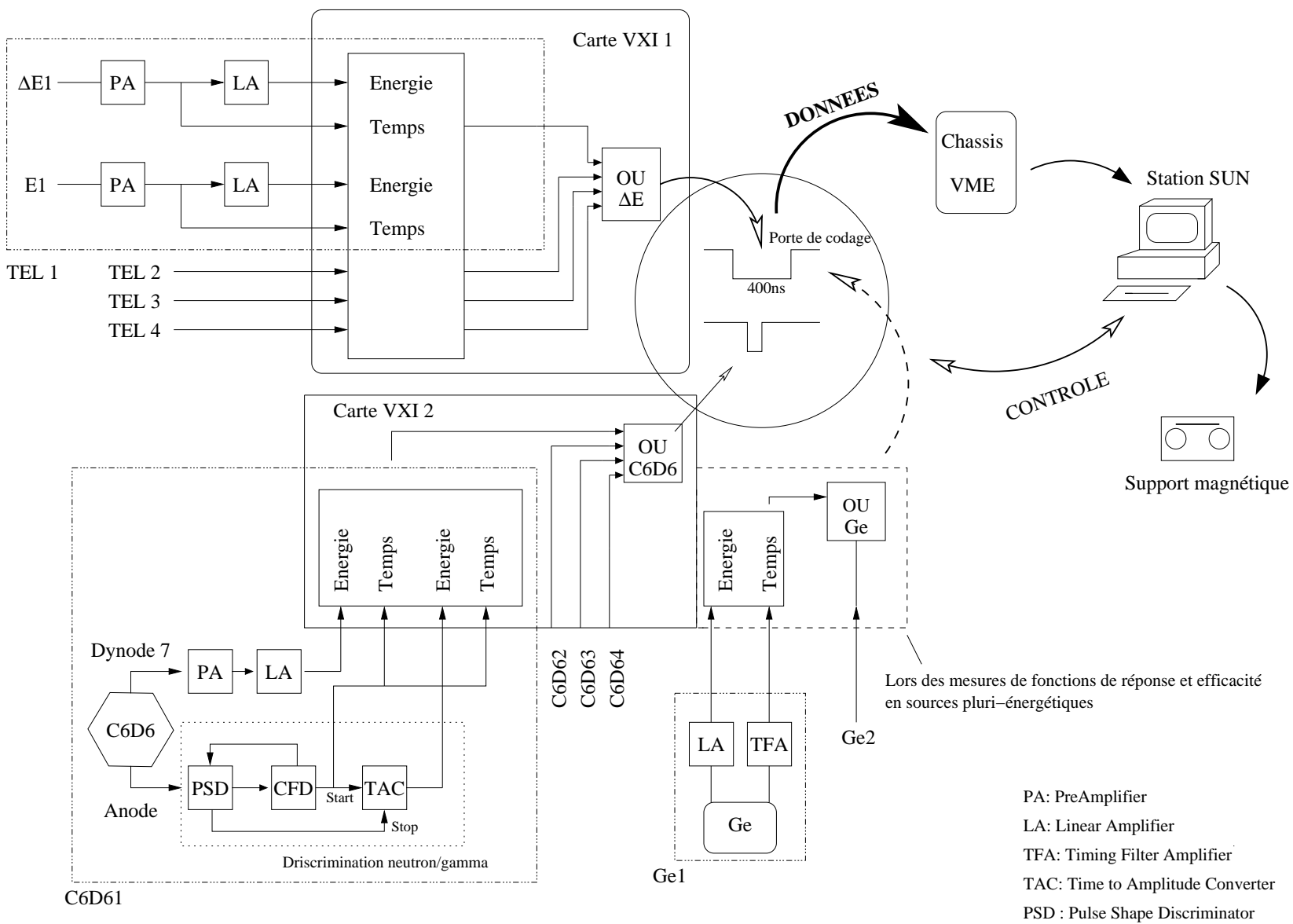
Dans ce cas, les détecteurs  $\Delta E$  sont les seuls à déclencher l'électronique. Le déclenchement de l'acquisition en coïncidence est opéré par le OU logique des quatre détecteurs  $\Delta E$  avec également une largeur de fenêtre temporelle de 400 ns. Une coïncidence entre les différents couples  $\Delta E/E$  a été rajoutée par l'intermédiaire de modules de conversion temps-amplitude (TAC) internes à la carte gérant les signaux provenant des voies particules chargées. Ceci, permet d'être sûr de sélectionner les particules dont on connaît parfaitement l'énergie totale ( $E + \Delta E$ ). De même, tous les évènements nécessaires à la mesure sont enregistrés.

Chaque carte dispose de 16 voies d'acquisition et chaque voie nécessite un signal énergie et un signal temps. Nous avons utilisé un total de 18 voies réparties sur les deux cartes dont l'une gérait la détection de particules chargées (8 voies) et l'autre la détection gamma (8 ou 10 voies selon la configuration).

Les signaux énergie des détecteurs étaient principalement traités en externe afin d'avoir plus de souplesse dans les réglages ainsi que la discrimination neutron/gamma au niveau des scintillateurs  $C_6D_6$  qui s'effectuait à l'aide de modules NIM associés (PSD-CFD-TAC). Le CFD déclenche la conversion temps-amplitude réalisée par l'intermédiaire du module TAC à l'arrivée d'une impulsion à traiter, jusqu'à ce que le module PSD détectant un passage à zéro sur sa base de temps vienne lui indiquer de stopper la conversion.

Pour chaque voie de sortie, les cartes délivrent également un signal énergie et un signal temps codés sur 8K. 8 TAC (4  $\Delta E/E$  et 4 ( $\Delta E$  ou Ge)/ $C_6D_6$ ) ont été générés à l'intérieur des cartes, ce qui amène à 26 le nombre de voies de sortie totales à gérer par le système.

Les informations prises en compte par les deux cartes d'acquisition sont ensuite envoyées via un VRE (**Vxi Readout Engine**) sur une plage de stockage temporaire de données VME contrôlée en ligne par une station SUN en connexion Ethernet. Les données peuvent être ainsi visualisées et/ou stockées sur bande magnétique. La figure (2.28) schématise le traitement électronique associé au dispositif expérimental global.



**Fig. 2-28:** Schéma simplifié du dispositif électronique et de traitement du signal utilisé pour GEMINI. La partie concernant les détecteurs Germanium n'est utilisée que lors de mesures en sources calibrées en vues de la détermination des fonctions de réponse et de mesures des efficacités aux énergies correspondantes des 4  $C_6D_6$ .

### 2.3.5 Cibles et faisceaux employés

Comme nous l'avons précisé dans l'introduction, l'expérience GEMINI a été réalisée au printemps 2003 et s'est déroulée en deux périodes d'une semaine auprès de l'accélérateur Tandem de l'IPN d'Orsay. Durant le temps qui nous était imparti, cette machine de type électrostatique (tension maximale 15 MV) a été utilisée pour divers objectifs de mesure en nous fournissant des faisceaux de deux natures différentes.

La détermination des fonctions de réponse et des efficacités des  $C_6D_6$  au-delà de 2 MeV d'énergie gamma a nécessité, comme pour nos études préliminaires à Bordeaux, le concours de réactions nucléaires de référence. Cette fois-ci un faisceau continu de protons de 12 MeV d'énergie pour un courant d'environ 20 nAe a été produit pour un premier jeu de réactions de type  $(p,p'\gamma)$  et  $(p,\alpha)$ . Le second faisceau qui a été notre principal outil de travail était un faisceau continu d' $^3He$  (24 MeV;  $\sim 40$  nAe) produit dans le but de générer des réactions de transfert sur différents types de cibles. Outre sa principale implication dans l'expérience proprement dite  $^{232}Th(^3He,X)$ , il a également servi pour l'étalonnage des montages télescope via une réaction de transfert sur une cible de  $^{208}Pb$  et certaines fonctions de réponse ont été déterminées grâce à l'utilisation de ce faisceau.

*Sous faisceau de protons, trois cibles différentes, fournies par le service des cibles du CENBG ont été bombardées:*

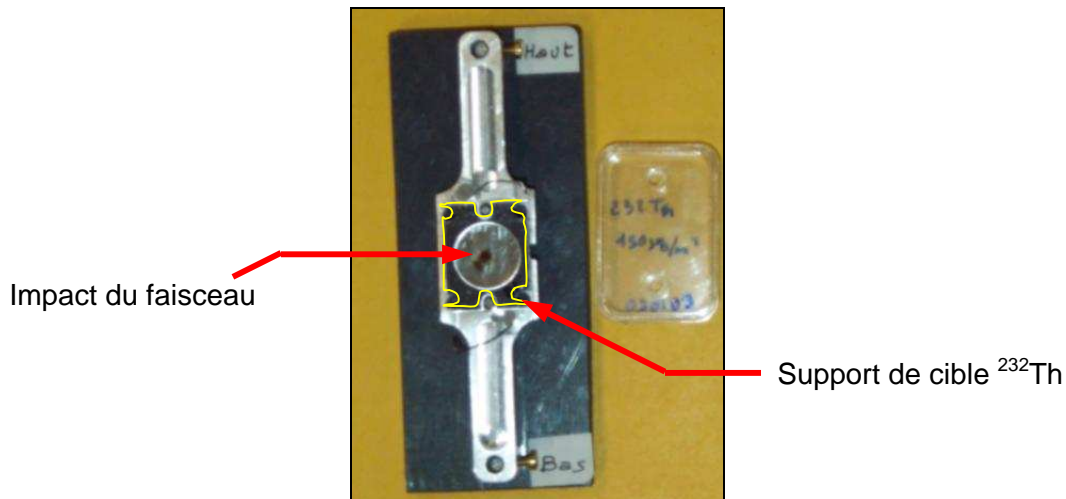
- une cible de  $^{12}C$  de  $100 \mu g/cm^2$ .
- une cible de  $^{13}C$  de  $200 \mu g/cm^2$ .
- une cible de  $^{19}F$  de  $105 \mu g/cm^2$  de  $CaF_2$  sur  $10 \mu g/cm^2$  de C.

*Sous faisceau d' $^3He$  nous avons utilisé:*

- une cible de  $^{208}Pb$  de  $100 \mu g/cm^2$  pour l'étalonnage des télescopes.
- la cible de  $^{13}C$  de  $200 \mu g/cm^2$  précédemment citée dans le cadre de mesures d'efficacité et de fonctions de réponse.
- deux cibles de  $^{232}Th$  de  $150 \mu g/cm^2$  sur  $40 \mu g/cm^2$  de  $^{12}C$  pour l'expérience proprement dite.
- une cible de  $40 \mu g/cm^2$  de  $^{12}C$  pour la mesure de fond associé aux cibles de  $^{232}Th$ .

Les cibles de  $^{232}Th$ ,  $^{12}C$  et  $^{208}Pb$  ont été fabriquées par le service des cibles de l'IPN d'Orsay. La photo (2.27) montre une des cibles de  $^{232}Th$  sur son support après irradiation, on peut voir clairement le point d'impact du faisceau relativement bien centré. Les dimensions de la tache sont estimées à  $1,2 \times 2,5 \text{ mm}^2$ .

Un coffret de sources calibrées délivré par le CERCA a également été utilisé pour nos mesures d'efficacité et de fonction de réponse pour les basses énergies gamma et un fond gamma de la salle expérimentale a été sauvegardé dans le but de permettre l'analyse des spectres en sources calibrées.



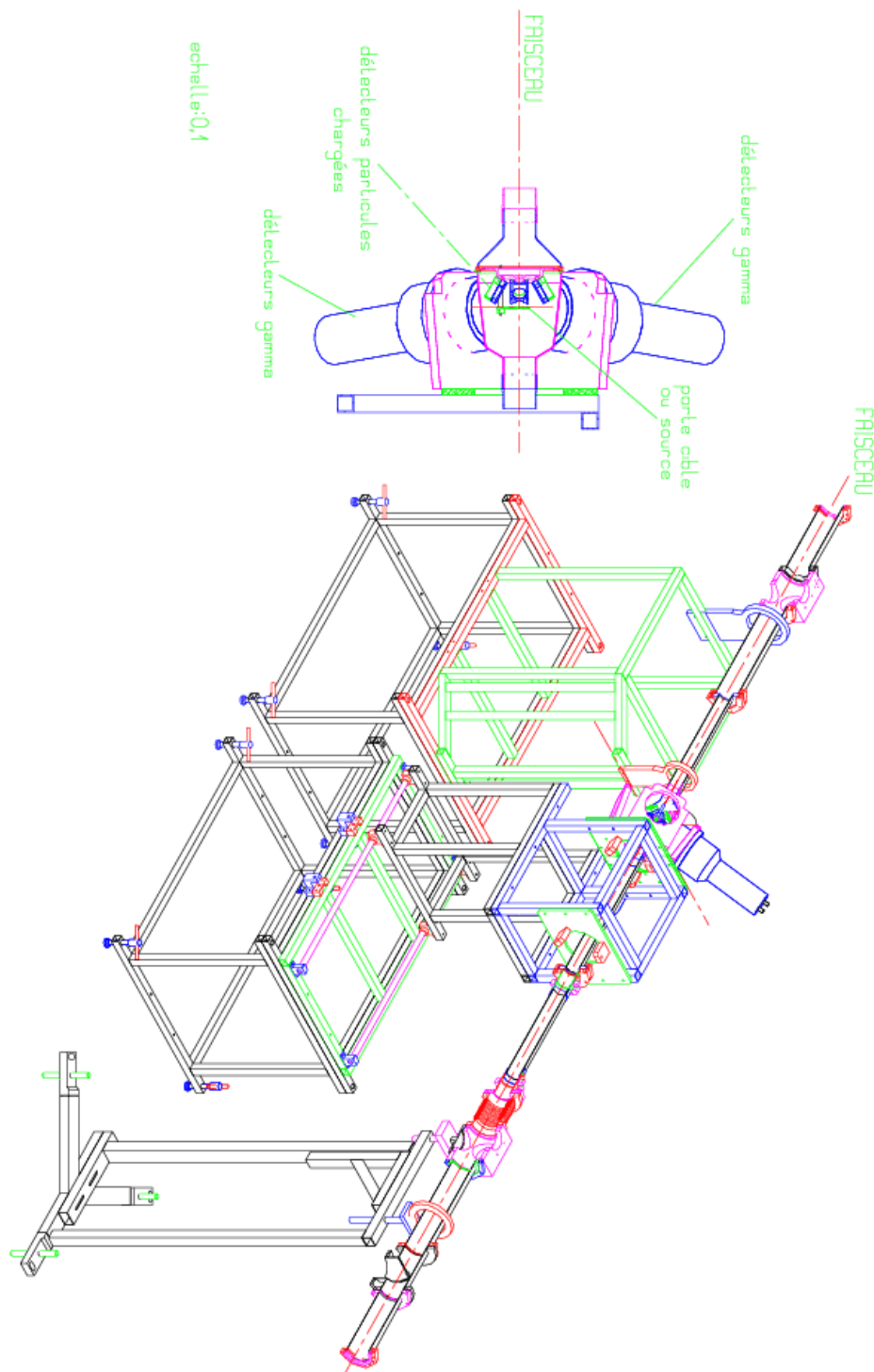
**Fig. 2.29:** Photo d'une des cibles de  $^{232}\text{Th}$  après irradiation d'une dizaine d'heures. On notera l'impact du faisceau relativement bien centré et la forme originale du support de la feuille de  $^{232}\text{Th}$ .

### 2.3.6 Dispositif expérimental final

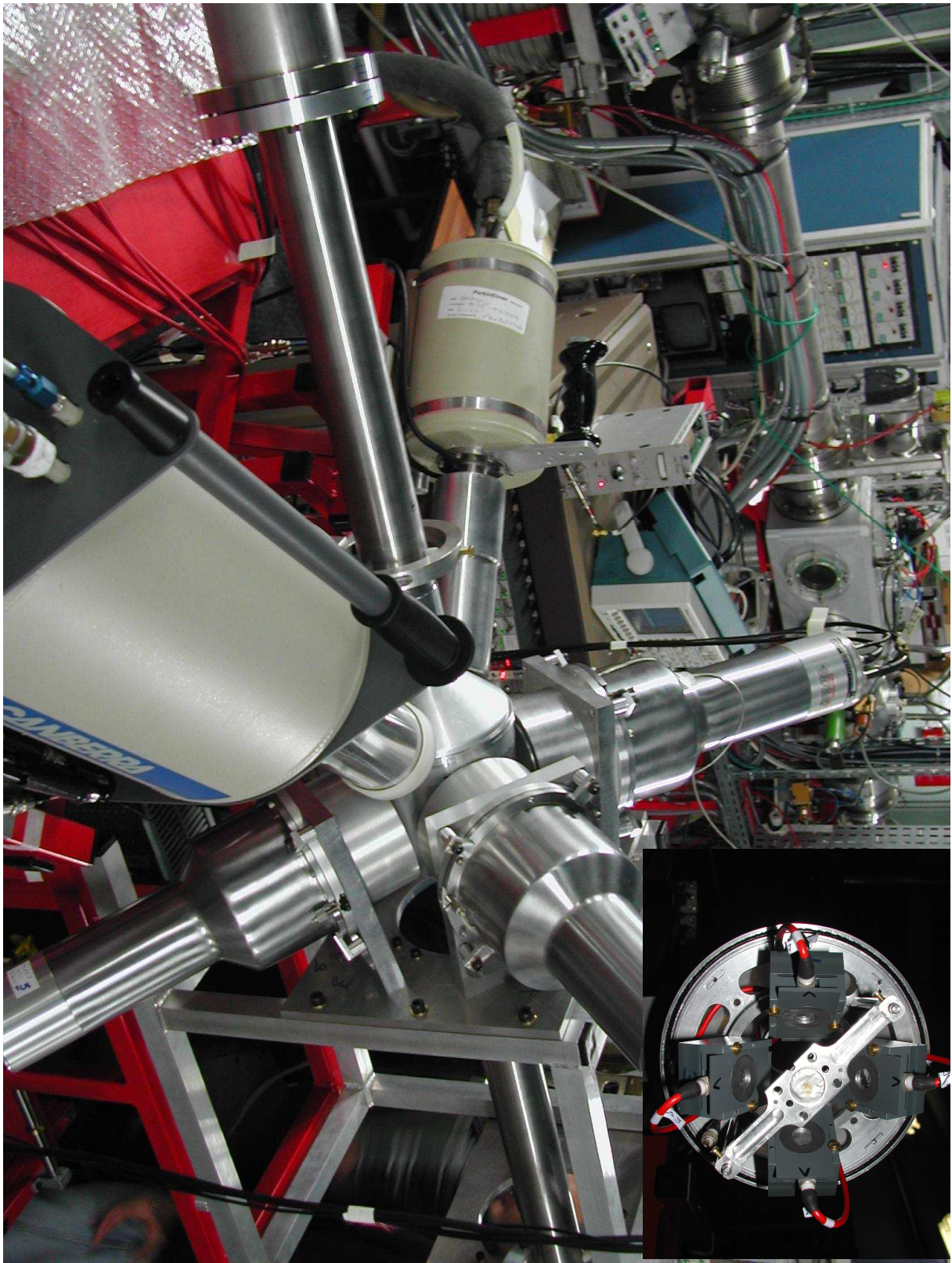
Un soin particulier a été apporté dans l'utilisation de matériaux légers pour l'environnement proche des cibles. La chambre de réaction entièrement en aluminium est composée de deux coques coniques indépendantes, dont l'une supporte les quatre montages télescopes grâce à une couronne également en aluminium et spécialement découpée dans un souci de réduction de matière. Sur cette couronne étaient également fixées deux tiges rigides dont le rôle était de maintenir à distance constante les différents supports de cible.

Les brides de support des scintillateurs ont bénéficié d'un soin spécial dans leur découpe afin de donner la position angulaire désirée aux détecteurs. Là encore, la volonté de réduire la quantité de matière a dicté notre choix en faveur d'un matériau léger comme l'aluminium.

Une fois les quatre détecteurs  $\text{C}_6\text{D}_6$  installés, un système de glissières couplé à un tube amovible permet de déplacer le bloc support des scintillateurs ainsi que la coque associée, ce qui permet d'atteindre aisément les cibles sans modifier la géométrie. Trois types de supports (tous en aluminium) ont été confectionnés, suivant les gabarits des cibles. Le faisceau traverse la chambre de part en part et est arrêté à l'aide d'une plaque de carbone (isolée de la ligne de faisceau) entourée de blocs de plomb et de paraffine à une dizaine de mètres des cibles. Cet arrêt du faisceau est suffisamment éloigné pour que d'éventuels signaux provenant de réactions parasites ne perturbent pas nos mesures. Ainsi la figure (2.30) présente une vue complète en trois dimensions du dispositif de GEMINI ainsi qu'un détail de la chambre de réaction sous la forme d'une coupe suivant l'axe du faisceau. La photo (2.31) illustre les mesures en sources calibrées avec le dispositif de détection de rayonnement gamma dans sa configuration la plus complète au premier plan.



**Fig. 2.30:** *Vision en perspective du dispositif de GEMINI utilisé dans le cadre des mesures de section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$ . Dans ce dispositif les détecteurs Germanium ne sont pas en service. On remarquera également sur le dessin en coupe le caractère très compact de la géométrie proche du support de cible.*



**Fig. 2.31:** Photo du dispositif expérimental de GEMINI en configuration mesure de fonction de réponse et efficacité. On remarque l'utilisation en grande quantité d'aluminium (matériau léger) pour la chambre et le châssis supportant les scintillateurs (en encart les 4 télescopes et la cible lors de la réaction  $^{232}\text{Th}(\beta\text{He},p)^{234}\text{Pa}$ ).



# Chapitre 3.

## Analyse des données.

### Sommaire

---

<b>3.1 Introduction</b> .....	<b>82</b>
<b>3.2 Normalisation en temps des fenêtres d'analyse</b> .....	<b>82</b>
<b>3.3 Etalonnages des détecteurs &amp; efficacité</b> .....	<b>84</b>
3.3.1 Etalonnage en énergie d'excitation des télescopes.....	84
3.3.2 Efficacité, fonctions de réponse et étalonnages des détecteurs C <sub>6</sub> D <sub>6</sub> lors de l'expérience GEMINI.....	87
<b>3.4 Simulation MCNP</b> .....	<b>94</b>
3.4.1 Le code MCNP en quelques mots.....	94
3.4.2 Les paramètres des simulations.....	95
3.4.3 Comparaison expérience/simulations.....	96
<b>3.5 Construction de la matrice de réponse, détermination des fonctions de poids</b> ....	<b>100</b>
3.5.1 La matrice totale.....	100
3.5.2 La minimisation.....	102
<b>3.6 Analyse de l'expérience <sup>232</sup>Th(<sup>3</sup>He,p)<sup>234</sup>Pa*</b> .....	<b>104</b>
3.6.1 Expression de la probabilité de capture radiative.....	104
3.6.2 Plage d'analyse en énergie.....	104
3.6.3 Traitement de la voie simple.....	106
3.6.4 Traitement de la voie coïncidence.....	109
3.6.5 Exemple de fonctions de poids: cas du noyau de <sup>234</sup> Pa.....	111
<b>3.7 Présentation des probabilités expérimentales d'émission gamma</b> .....	<b>113</b>

---



## 3.1 Introduction

Rappelons que nous formons le noyau excité  $^{234}\text{Pa}$  par réaction de transfert et que le dispositif expérimental élaboré autour des réactions  $^{232}\text{Th}({}^3\text{He},(p,d,t,\alpha))^{234,233,232}\text{Pa}, {}^{231}\text{Th}$  autorise également l'analyse des voies triton et alpha.

En fin d'expérience, l'ensemble des données brutes est stocké sur bandes magnétiques (Exabyte). Un premier tri des données nous a permis de séparer les informations issues d'événements simples de celles issues d'événements en coïncidence et pour chacun des tris, de les archiver sous forme de matrices.

Chaque matrice est construite événement par événement et renferme tous les paramètres nécessaires à l'analyse de la mesure associée. Une fois agencée au format matriciel (de 100 à 600 Mo) les données ont été retravaillées à l'aide de l'environnement d'analyse ROOT [ROO95].

Mais au préalable, cette étude a nécessité une normalisation en temps des fenêtres d'analyse et un étalonnage en énergie des détecteurs, puis on a effectué un ajustement en gain des différents détecteurs (particules et photons). Dans un deuxième temps, nous verrons que ce chapitre fera également intervenir des simulations avec le code de transport MCNP que nous présenterons cette fois-ci plus en détail. A l'aide de ces simulations, notre démarche a consisté par la suite à construire une matrice continue de fonctions de réponse et à calculer les fonctions de poids nécessaires à la détermination des probabilités de décroissance gamma. Enfin, l'analyse de la réaction  $^{232}\text{Th}({}^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$  sera présentée via le traitement des voies simple et de coïncidence, puis nous terminerons par une présentation des probabilités expérimentales d'émission gamma.

## 3.2 Normalisation en temps des fenêtres d'analyse

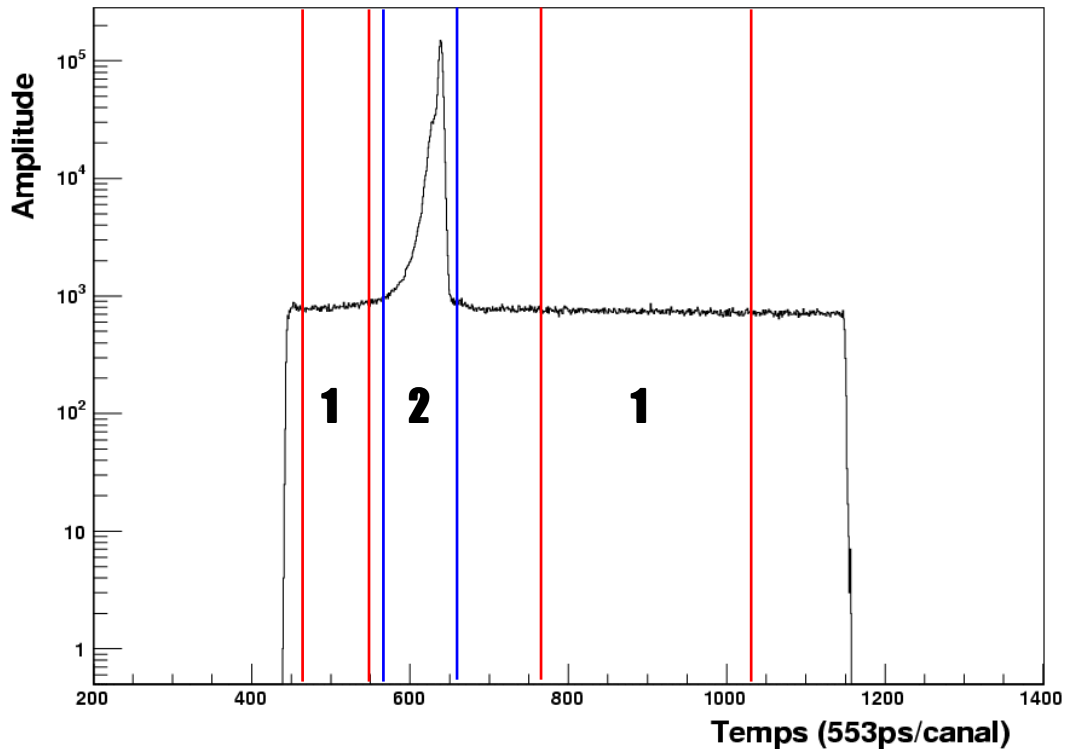
Rappelons ici que le déclenchement maître de l'électronique associée à GEMINI lorsque l'expérience se déroulait sous faisceau, était assuré par les détecteurs  $\Delta E$  ("OU" logique des quatre jonctions). En revanche, pour les mesures en sources gamma de multiplicité égale à 2, cette fonction revenait au "OU" logique des détecteurs Germanium.

Une fois l'électronique déclenchée, le traitement des informations issues des différents détecteurs était géré par l'intermédiaire de fenêtres temporelles qui autorisaient la prise en compte des signaux (ce sont les modules de conversion temps-amplitude, TAC, qui assuraient cette fonction). Cette gestion est rendue relativement complexe en raison du nombre de combinaisons possibles entre les détecteurs présents (jusqu'à 16) et du nombre d'informations souhaitées.

L'idéal étant d'avoir une seule fenêtre, commune aux jeux de détecteurs utilisés, que l'on veuille analyser des événements simples (TAC  $\Delta E$ -E par exemple) ou des événements en

coïncidence (TAC Ge-C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> ou TAC ΔE-C<sub>6</sub>D<sub>6</sub>), un premier travail a consisté en une normalisation temporelle des différents spectres TAC.

La figure (3.1) illustre un exemple de spectre TAC ΔE-C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> du détecteur ΔE<sub>1</sub> et du scintillateur C<sub>6</sub>D<sub>61</sub> lors de l'expérience sous faisceau d'<sup>3</sup>He à partir d'une cible de <sup>232</sup>Th.



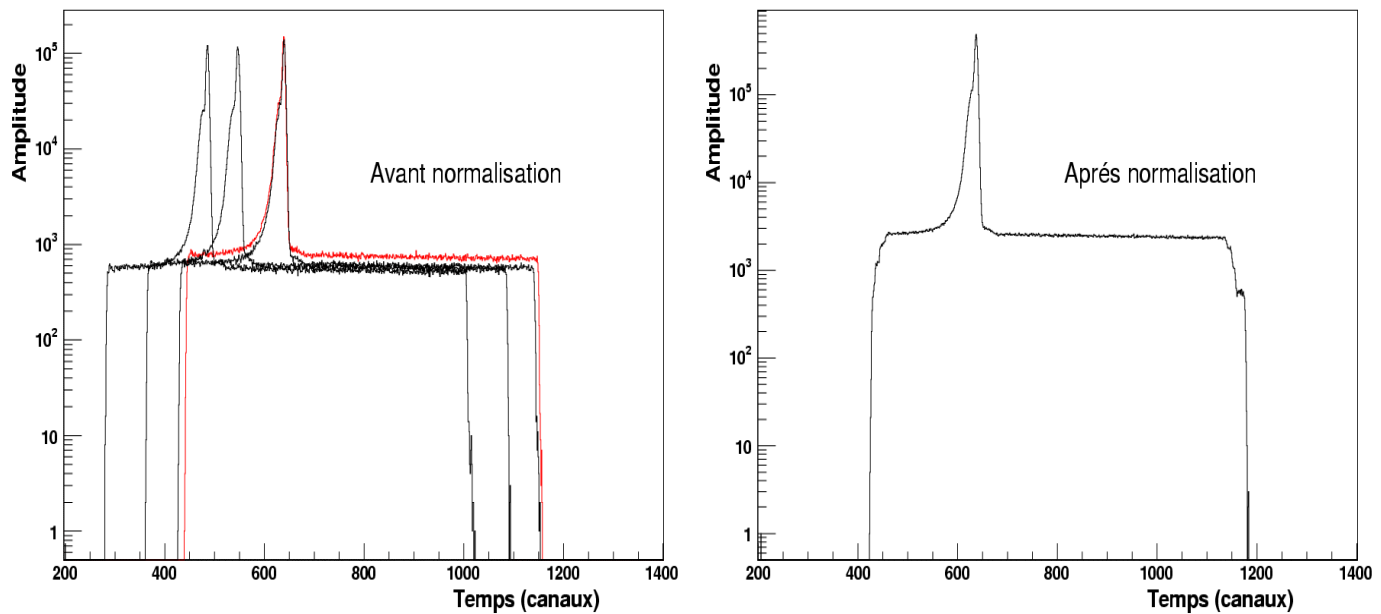
**Fig. 3.1:** Représentation schématique des deux zones temporelles sur un spectre provenant d'un signal délivré par un TAC ΔE-C<sub>6</sub>D<sub>6</sub>. La zone 1 représente les coïncidences fortuites et la zone 2 les coïncidences vraies. Il est à noter la présence d'un fond fortuit sous le pic.

On voit apparaître très clairement deux zones sur le spectre. La première correspond aux coïncidences temporelles fortuites provenant de la radioactivité ambiante ou de l'activation de certaines parties du dispositif lors d'instabilité du faisceau et ces événements sont soustraits de l'analyse. La seconde zone correspond aux coïncidences vraies, qui apparaissent sous la forme d'un pic auquel viennent s'ajouter des fortuites (~ 1 % du total dans le cas présent)..

La normalisation consiste, tout d'abord à rechercher le maximum du spectre puis à déterminer le canal correspondant, pour chacune des combinaisons envisagées.

Ensuite vient la modification des spectres proprement dite sous la forme d'un ajustement canal à canal (déplacement) par rapport à un spectre de référence, étant donné que les gains des différents TAC sont identiques.

Les deux figures suivantes, présentent un exemple de résultats obtenus suite à cette normalisation pour des spectres TAC ΔE-C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> associés au déclenchement des quatre jonctions ΔE dans la configuration expérimentale citée précédemment.



**Fig. 3.2:** Exemple de spectres TAC  $\Delta E$ - $C_6D_6$  avant et après normalisation. Le spectre en rouge est le spectre pris comme référence.

Ce procédé a été appliqué sur tous les fichiers bruts comportant des coïncidences entre détecteurs (principalement  $\Delta E$ -E et  $\Delta E$ - $C_6D_6$ ). Ainsi, suivant le type de coïncidence étudiée, les bornes temporelles des fenêtres d'analyse associées sont désormais communes aux différents détecteurs. A chaque spectre créé via l'unique fenêtre de coïncidences vraies, il faudra soustraire (moyennant une éventuelle normalisation au nombre de canaux) un spectre dont les événements proviennent de la zone de coïncidences fortuites.

Des explications plus concrètes seront données plus tard à travers l'exemple des mesures concernant la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$ .

### 3.3 Etalonnage des détecteurs et efficacités

#### 3.3.1 Etalonnage en énergie d'excitation des télescopes

D'après (2.13) et pour une réaction à 2 corps, connaissant l'énergie cinétique de l'éjectile (p, d, t ou  $\alpha$ ), on a accès à l'énergie d'excitation du noyau de recul. La gamme d'énergie associée aux éjectiles que nous voulons principalement étudier se situant entre 20 et 30 MeV, l'utilisation de réactions de transfert de référence s'est avérée nécessaire pour l'étalonnage des montages télescopes. Il s'agit des réactions  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},d)^{209}\text{Bi}^*$  et  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},\alpha)^{207}\text{Pb}^*$  réalisées à partir d'une cible de  $^{208}\text{Pb}$  avec un faisceau d' $^3\text{He}$  de 24 MeV et

un jeu de quatre collimateurs en Tantale de 2 mm de diamètre, placés devant les quatre télescopes  $\Delta E$ -E. Cette ouverture a été choisie afin d'avoir une bonne résolution en énergie.

Une feuille en Aluminium d'une épaisseur voisine de 30  $\mu\text{m}$  a été placée devant les collimateurs comme pour les mesures de l'expérience proprement dite, où cette feuille servait à protéger les jonctions des éventuels fragments de fission du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ .

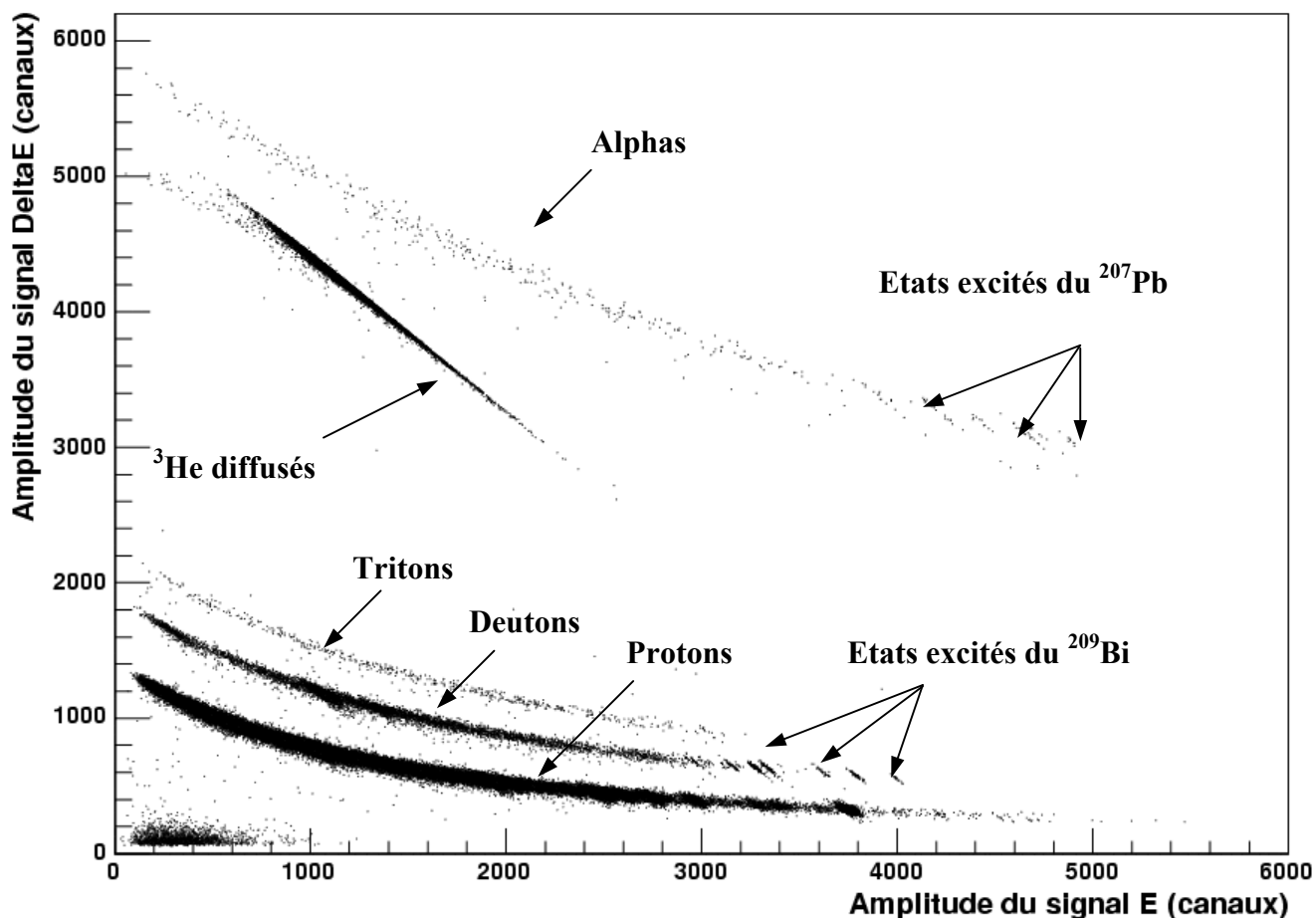
La durée de la mesure a été d'environ 4h et le taux de comptage au niveau du "OU" logique des détecteurs  $\Delta E$  était de l'ordre de 300 coups/s. Durant ce temps, les états fondamentaux et les cinq premiers états excités des noyaux de  $^{209}\text{Bi}$  et  $^{207}\text{Pb}$  ont été suffisamment alimentés pour permettre un calibrage des télescopes. Les différents niveaux d'énergie utilisés pour cet étalonnage sont reportés dans le tableau suivant, ainsi que les chaleurs de réaction (Q) calculées à partir des tables de masse de Audi et Wapstra [AUD93].

Noyau	Energie d'excitation (MeV)						Q (MeV)
$^{209}\text{Bi}$	0,0	0,896	1,608	2,826	3,119	3,638	-1,696
$^{207}\text{Pb}$	0,0	0,570	0,898	1,633	2,340	3,475	+13,21

**Tab 3.1:** Niveaux d'énergie des noyaux de  $^{209}\text{Bi}$  et  $^{207}\text{Pb}$  utilisés pour l'étalonnage des montages télescopes et chaleur des réactions de transfert correspondantes.

La figure (3.3) est un exemple de représentation graphique de la perte d'énergie dans le détecteur  $\Delta E$  en fonction de l'énergie résiduelle déposée dans le détecteur E pour les réactions  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He}, X)$  à une énergie faisceau de 24 MeV. Les différentes voies de réaction sont parfaitement identifiées et des structures discrètes associées aux états excités des noyaux de  $^{209}\text{Bi}$  et  $^{207}\text{Pb}$  apparaissent clairement sur les courbes deutons et particules Alpha. Chaque structure discrète a fait alors l'objet d'un contour graphique dont le centroïde suivant chaque axe était déterminé par projection du contour. Des calculs de cinématique ont permis de déterminer les énergies cinétiques des deutons et des particules alpha, correspondant aux différents états excités, pour un angle d'émission de  $120^\circ$ . Les pertes d'énergie de ces particules à travers la feuille d'Aluminium et lors du passage dans le détecteur  $\Delta E$  ont été calculées à l'aide des tables élaborées par Ziegler ([ZIE77] et [AND77]).

Pour donner un ordre de grandeur, il a été par exemple calculé que des deutons de 21,5 MeV alimentant l'état fondamental du  $^{209}\text{Bi}$ , perdent environ 260 keV dans la feuille d'aluminium et environ 2,4 MeV dans le détecteur  $\Delta E$ . La résolution en énergie dans cette géométrie était de 2,5 %.

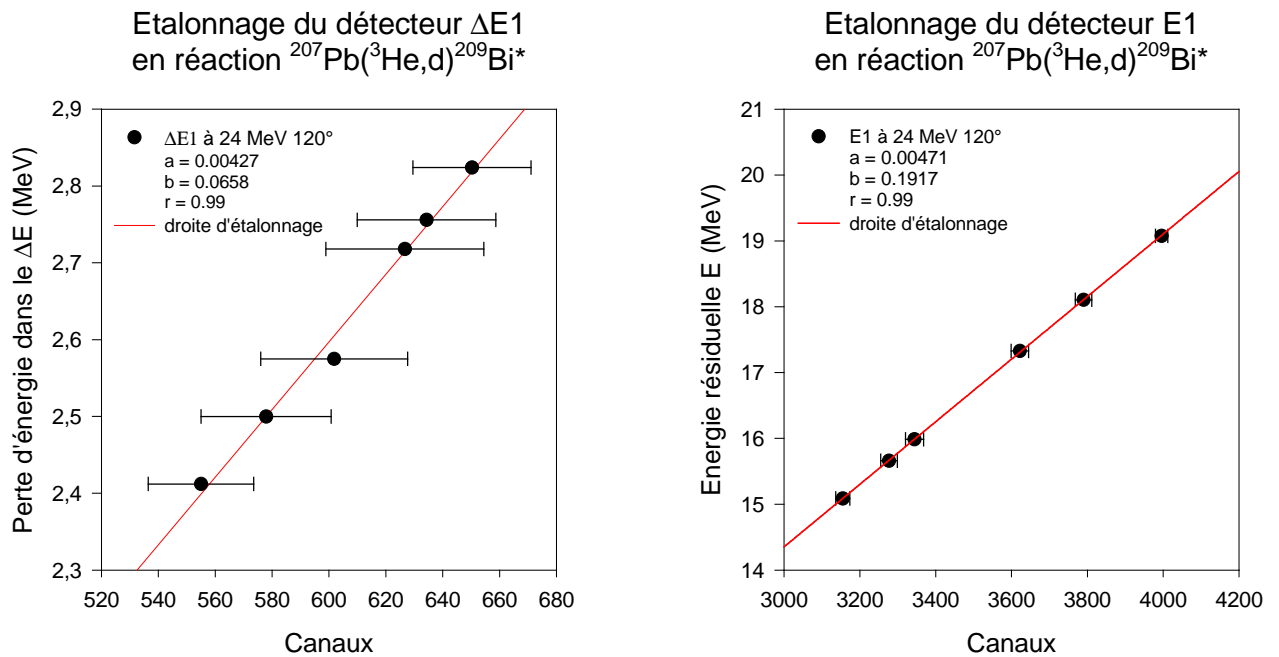


**Fig. 3.3:** Exemple de représentation graphique  $\Delta E$ - $E$  pour les réactions  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},X)$  à une énergie de 24 MeV pour un montage télescope disposé à  $120^\circ$ .

Cette méthode a été appliquée aux quatre montages télescopes. Les quatre graphes  $\Delta E$ - $E$  ont été considérés suivant deux zones distinctes dont la première se composait à la fois des voies protons, deutons, et tritons et la deuxième uniquement des particules alpha. Ainsi la réaction  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},d)^{209}\text{Bi}^*$  a été utilisée pour l'étalonnage de la première zone et la réaction  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},\alpha)^{207}\text{Pb}^*$  pour l'étalonnage de la seconde.

Au final, les quatre montages télescopes ont tous été calibrés de façon indépendante. Néanmoins, afin de faciliter l'analyse proprement dite, tous les gains des détecteurs de particules ont été par la suite réajustés sur celui du montage  $(\Delta E/E)_1$  pris arbitrairement comme montage étalon et ceci dans le cadre de l'analyse des voies proton et triton comme dans le cadre de l'analyse de la voie alpha.

La figure (3.4) illustre un exemple d'étalonnage linéaire réalisé pour le montage télescope numéro un à l'aide de la réaction  $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},d)^{209}\text{Bi}^*$ .



**Fig. 3.4:** Etalonnage linéaire ( $\text{Energie} = a \times \text{Canaux} + b$ ) du montage télescope numéro 1 réalisé à l'aide de la réaction de référence  $^{207}\text{Pb}(^3\text{He},d)^{209}\text{Bi}^*$ . Les trois autres montages ont été calibrés de manière similaire à l'aide de contours graphiques sur les états excités du  $^{209}\text{Bi}$ . Les coefficients de régression  $r$  sont mentionnés dans chaque cas.

### 3.3.2 Efficacités, fonctions de réponse et étalonnages des détecteurs $\text{C}_6\text{D}_6$ lors de l'expérience GEMINI

#### 3.3.2.1 Mesures des efficacités et des fonctions de réponse

Nous avons vu que la technique de mesure employée et développée dans le chapitre précédent implique une connaissance parfaite de la réponse du scintillateur dans un environnement donné. Nous avons déterminé expérimentalement l'efficacité des quatre détecteurs  $\text{C}_6\text{D}_6$  dans le montage GEMINI et avons vérifié que les scintillateurs se comportent de manière identique dans cette géométrie.

Les comptages en sources (mono énergétiques et de multiplicité égale à 2) ont tout d'abord permis de déterminer les efficacités et fonctions de réponse des scintillateurs entre 121 keV et 1333 keV. Les spectres des sources mono énergétiques ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  et  $^{54}\text{Mn}$ ), ont été enregistrés durant environ 2h et une soustraction du fond ambiant  $\text{C}_6\text{D}_6$  (comptage de 3h) a été nécessaire. Les mesures en coïncidence ( $^{88}\text{Y}$ ,  $^{60}\text{Co}$  et  $^{152}\text{Eu}$ ) ont fait intervenir des comptages plus longs (entre 12h et 24h) et l'utilisation de deux détecteurs Germanium de haute résolution suivant la disposition présentée dans le chapitre précédent. Une remarque ici : le point d'efficacité à 121keV obtenu à partir de la source  $^{152}\text{Eu}$  nous renseigne également sur la valeur des seuils électroniques appliqués aux scintillateurs.

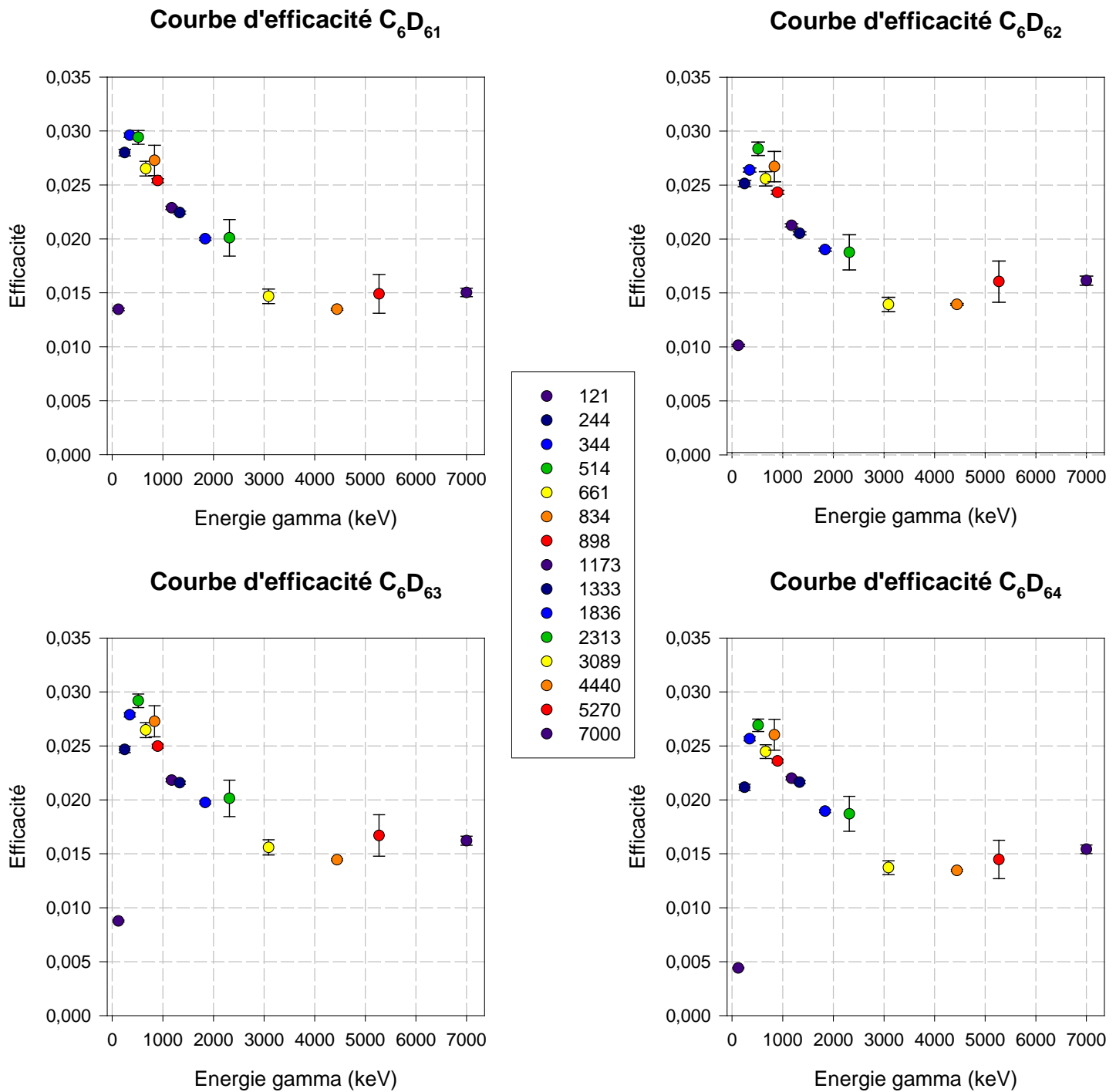
Pour les points de plus haute énergie, comme dans le cadre de notre campagne d'étude réalisée auprès de l'accélérateur du CENBG, nous avons utilisé des réactions de référence (réaction de diffusion inélastique et réaction de transfert sur les noyaux légers  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ , et  $^{19}\text{F}$ ) pour produire les rayonnements gamma aux énergies souhaitées. Un taux de comptage de l'ordre de 2000 cps/s au niveau du "OU" logique des jonctions  $\Delta E$  a été enregistré pour des temps de mesure compris entre 1h et 10 h.

Ainsi pour chaque  $\text{C}_6\text{D}_6$ , un total de quinze valeurs efficacité et fonctions de réponse ont été analysées pour une plage énergie comprise entre 121 keV et 7000 keV. Les voies de production et les rayonnements gamma associés sont explicités dans le tableau suivant:

Energie $\gamma$ (keV)	Sources	Energie $\gamma$ (keV)	Sources/Réactions
121	$^{152}\text{Eu}$	1333	$^{60}\text{Co}$
244	$^{152}\text{Eu}$	1836	$^{88}\text{Y}$
344	$^{152}\text{Eu}$	2313	$^{12}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{14}\text{N}^*$
514	$^{85}\text{Sr}$	3089	$^{13}\text{C}(\text{p},\text{p}')^{13}\text{C}^*$
661	$^{137}\text{Cs}$	4440	$^{12}\text{C}(\text{p},\text{p}')^{12}\text{C}^*$
834	$^{54}\text{Mn}$	5270	$^{13}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{15}\text{N}^*$
898	$^{88}\text{Y}$	6219	$^{19}\text{F}(\text{p},\alpha)^{16}\text{O}^*$
1173	$^{60}\text{Co}$	7000	$^{19}\text{F}(\text{p},\alpha)^{16}\text{O}^*$

**Tab 3.2:** Tableau récapitulatif des énergies des rayonnements gamma utilisés lors des mesures des efficacités et fonctions de réponse des quatre détecteurs  $\text{C}_6\text{D}_6$  de GEMINI.

Les résultats expérimentaux des mesures d'efficacité pour les quatre scintillateurs sont présentés sur la figure suivante. L'ensemble des valeurs de ces efficacités est reporté dans l'annexe.

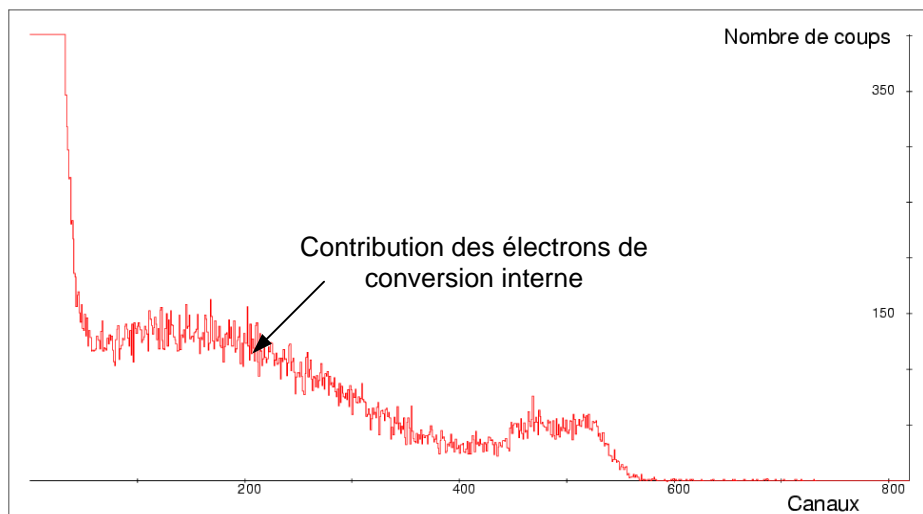


**Fig. 3.5:** Courbes des efficacités expérimentales en fonction de l'énergie des rayonnements gamma incidents pour les quatre détecteurs  $C_6D_6$  du dispositif de GEMINI.



La première observation que l'on peut faire à partir de la figure (3.5), est que sur la plage en énergie étudiée, et moyennant des seuils électroniques légèrement différents, les quatre scintillateurs ont le même comportement. L'hypothèse qui consiste à considérer notre dispositif de détection gamma comme étant un seul et même scintillateur divisé en quatre détecteurs équivalents nous apparaît donc comme parfaitement acceptable. Remarquons que la forme des courbes d'efficacité est identique à celle de la courbe simulée présentée au second chapitre (figure 2.10) et correspondant à des cibles infiniment minces et ponctuelles. Ceci valide les choix techniques (matériaux légers, la plus faible quantité de matière possible...) retenus lors de la confection de GEMINI.

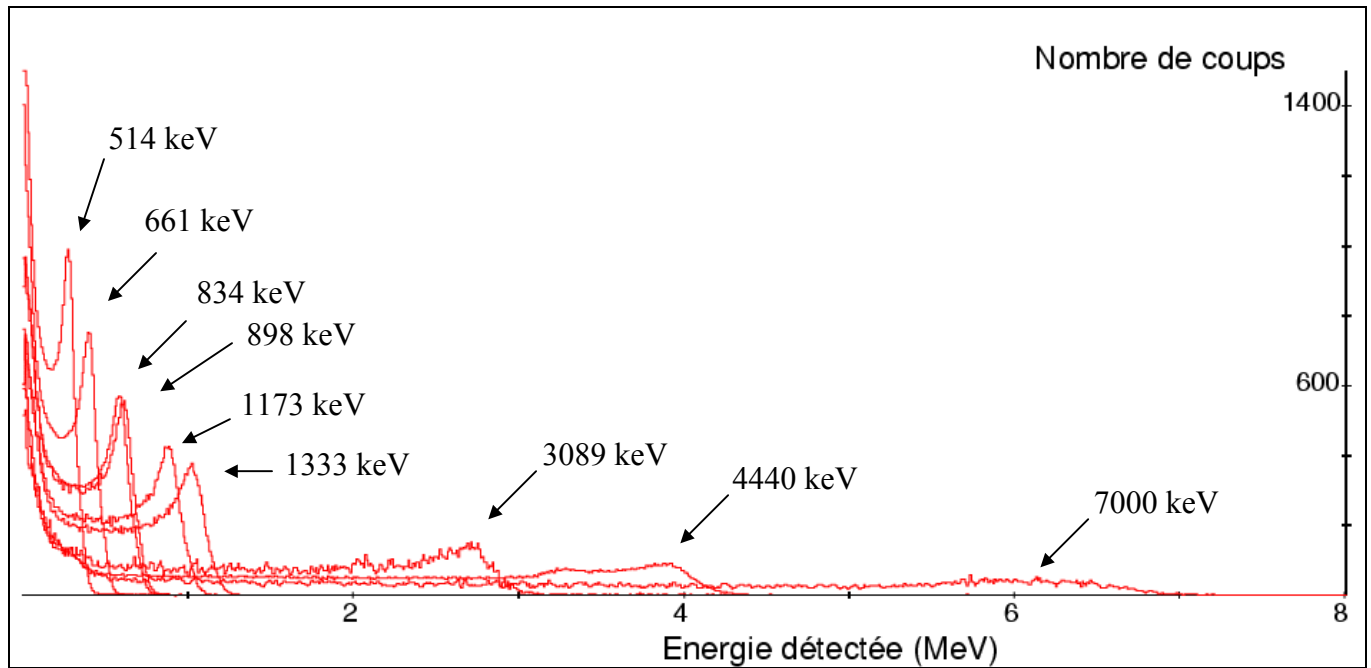
Les points aux énergies 2313 keV et 5270 keV rendent compte d'une faible statistique rencontrée lors de l'analyse, tandis que le point à 6129 keV initialement prévu avec la réaction  $^{19}\text{F}(p,\alpha)^{16}\text{O}^*$ , n'a pas pu être analysé en raison d'une compétition avec une décroissance par conversion interne où la détection de l'électron émis fausse les données. A titre d'exemple, la figure (3.6) présente la fonction de réponse obtenue lors de cette mesure: la contribution de la conversion interne apparaît très clairement sous la forme d'une bosse aux énergies intermédiaires.



**Fig. 3.6:** Fonction de réponse d'un rayonnement gamma de 6129 keV obtenue par la réaction  $^{19}\text{F}(p,\alpha)^{16}\text{O}^*$ . La statistique des quatre scintillateurs a été sommée puis comprimée par un facteur 10 pour les besoins de la figure. Cette figure montre la contribution de la détection des électrons de conversion interne sur la forme générale de la fonction de réponse.

Néanmoins la partie haute du spectre obtenu pour l'énergie de 6129 keV n'étant pas altérée, sa statistique relativement importante autorise l'utilisation de cette fonction de réponse pour l'étalonnage des scintillateurs.

Les fonctions de réponse associées aux quinze autres énergies gamma ont été extraites et certaines sont représentées sur la figure suivante:



**Fig. 3.7:** Exemple de fonctions de réponse expérimentales obtenues avec le dispositif GEMINI. Les réponses des quatre scintillateurs sont ici sommées et normalisées.

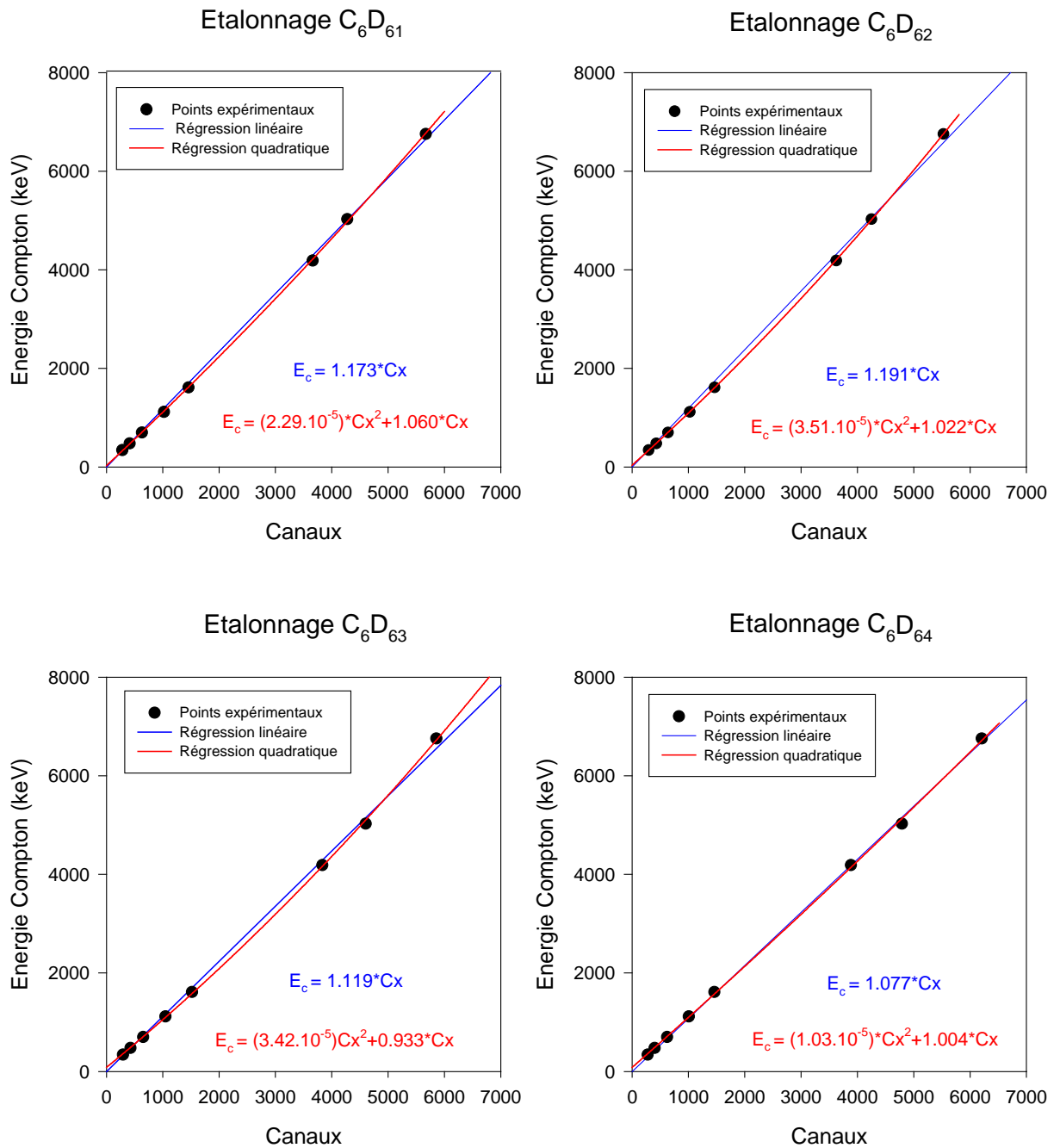
### 3.3.2.2 Etalonnage et normalisation en gain des détecteurs $C_6D_6$

En raison du nombre de points expérimentaux relativement important et de la statistique associée conséquente, l'étalonnage des quatre scintillateurs n'a pas posé de problème. A présent, on peut utiliser différentes méthodes pour étalonner les quatre scintillateurs de manière précise à l'aide des fonctions de réponse continues. Citons parmi les plus couramment utilisées:

- Affecter l'énergie Compton associée au sommet de la fonction de réponse
- A 90 % à droite de ce sommet
- Au centre du segment de droite délimité par les 10 % et 90 % de la valeur au sommet.

A ce stade, des simulations peuvent nous venir en aide pour trancher définitivement entre ces méthodes. En comparant une fonction de réponse expérimentale et une réponse brute simulée il est possible de connaître parfaitement l'emplacement du front Compton. Il s'est avéré dans notre cas, avec la résolution de nos détecteurs, que celui-ci se trouvait dans une région proche des 82 % de la valeur du sommet de la fonction de réponse. Si l'on prend le sommet comme référence, l'erreur sur l'affectation de l'énergie Compton est inférieure à 1 % et c'est cette procédure qui a été utilisée lors du calibrage en gain des quatre scintillateurs par souci de simplification.

Pour établir les courbes d'étalonnage deux types de régression (linéaire et quadratique) ont été testés pour chaque  $C_6D_6$  et comparés. Les résultats de ces comparaisons sont illustrés sur les figures suivantes. Cette partie a été traitée avec le logiciel d'analyse GF3 [GF300].



**Fig. 3.8:** Comparaison entre une régression linéaire et quadratique dans le cadre de l'étalonnage des quatre scintillateurs. Les erreurs sur la détermination des canaux ne sont pas apparentes car elles sont plus petites que les dimensions des points.

Comme dans le cas des télescopes, nous avons procédé à un réajustement des gains des quatre scintillateurs concernant les deux séries d'expériences, pour réaliser une sommation de la statistique. D'après la figure (3.8), il s'avère que les scintillateurs ont tous un comportement très légèrement quadratique. Seul le détecteur labellisé C<sub>6</sub>D<sub>64</sub> semble être moins affecté par cette tendance. Dans un souci de simplification, c'est le scintillateur C<sub>6</sub>D<sub>64</sub> qui sera pris comme référence et donc les gains quadratiques des trois autres détecteurs C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> seront normalisés au gain linéaire du C<sub>6</sub>D<sub>64</sub> du premier étalonnage.

On part de:

$$E_c = a_4 X_4 \quad (3.1)$$

où  $E_c$  et  $X_4$  sont respectivement l'énergie Compton considérée et le canal associé au sommet de la fonction de réponse du C<sub>6</sub>D<sub>64</sub> à  $E_c$ .

On pose :

$$X_4 = \gamma_i X_i^2 + \alpha_i X_i \quad (3.2)$$

où  $\gamma_i$  et  $\alpha_i$  sont les coefficients de normalisation entre gains de scintillateurs et ainsi pour chacun des C<sub>6</sub>D<sub>6i</sub> quadratiques on a:

$$E_c = c_i X_i^2 + d_i X_i \quad (3.3)$$

et donc:

$$\gamma_i = \frac{c_i}{a_4} \text{ et } \alpha_i = \frac{d_i}{a_4} \quad (3.4)$$

Cette normalisation a été testée avec certaines fonctions de réponse expérimentales présentées plus haut. Elle a été appliquée directement aux fichiers issus du premier tri des données brutes et une projection des quatre scintillateurs sur toute la statistique de l'expérience, bande magnétique par bande magnétique, a permis également de vérifier le bon fonctionnement de la normalisation.

Dorénavant nous ne raisonnerons que sur des spectres dont la statistique résulte de la sommation de spectres provenant des quatre scintillateurs.

Maintenant des simulations avec le code MCNP vont nous permettre de construire une matrice de réponse continue et de déterminer des fonctions de poids en accord avec notre géométrie. Mais tout d'abord nous allons présenter plus en détails le code de simulation et les outils qui ont été mis à contribution pour ce travail.

## 3.4 Simulations MCNP

### 3.4.1 Le code MCNP en quelques mots

#### 3.4.1.1 Présentation générale

Le code de transport MCNP (Monte Carlo Neutron Particle) est historiquement attribué au groupe de développement du même nom appartenant à la division des Sciences Physiques Appliquées (X Division) du Laboratoire National de Los Alamos. La source actuelle du code développée depuis le début des années 80 est principalement écrite en langage FORTRAN (48 000 lignes, commentaires inclus) mais combine maintenant une partie écrite en C (1000 lignes).

Dans un premier temps conçu pour les calculs de transport de neutrons, il s'est généralisé par la suite au transport des neutrons (mode N), des photons (mode P) et des électrons (mode E), il est à l'heure actuelle une des références en la matière. Les applications diverses et variées d'un tel outil vont des études de détecteurs aux simulations de cœur de réacteur en passant par la conception de cible de spallation dans le cas d'un accélérateur couplé à un réacteur sous-critique.

Pratiquement, le code est capable de traiter une géométrie arbitraire en trois dimensions d'un système physique, dans laquelle il est par exemple possible d'introduire une définition de matériaux, des sources complexes, le couplage (NP, PE, EP ou encore NPE) du transport des différentes particules citées plus haut ou une dépendance en temps dans le devenir de celles-ci. Le transport est assuré sur une plage d'énergie continue, à l'aide d'une technique Monte Carlo qui utilise des bibliothèques de données nucléaires et atomiques qui sont des évaluations provenant du système ENDF (Evaluated Nuclear Data File) disponibles pour un grand nombre de matériaux.

Le régime neutron pris en compte dans les simulations avec le code utilisé est compris entre  $10^{-11}$  MeV et 20 MeV pour la plupart des isotopes et jusqu'à 150 MeV pour d'autres versions (MCNP-X, MCNP-5) tandis que pour les photons il est compris entre 1 keV et 100 GeV et enfin pour les électrons entre 1 keV et 1 GeV (MCNP-5).

Une fois que les paramètres liés à la géométrie du système physique et la définition des matériaux sont entrés, l'utilisateur choisit alors le mode de transport, les réponses désirées (calcul de flux, dépôt d'énergie etc..).

#### 3.4.1.2 La technique Monte Carlo

Cette méthode est utilisée pour étudier un processus statistique mais de façon théorique. Les événements qui composent le processus sont simulés de façon séquentielle,

l'échantillonnage statistique étant basé sur une sélection de nombres aléatoires (l'analogie avec le jeu de dés dans un casino a donné le nom à la méthode).

Le transport de particules à l'aide de technique Monte Carlo peut s'apparenter à une expérience "virtuelle". Au sein du code MCNP, chaque particule émise à partir d'une source est suivie depuis sa naissance jusqu'à sa mort (échappement, diffusion, absorption, etc.). Les probabilités de distribution sont échantillonnées aléatoirement en utilisant les bibliothèques de données livrées avec le code dans le but de déterminer le devenir de la particule à chaque instant de sa vie.

Contrairement à la méthode déterministe qui résout l'équation de transport pour le comportement moyen de la particule, la méthode Monte Carlo ne résout pas d'équation explicite. Elle obtient des réponses par la simulation des particules individuelles et enregistre certains aspects de leur comportement moyen (appelés tally dans le code). Le comportement moyen des particules dans le système physique est alors inféré (en utilisant le théorème à limite centrale) à partir du comportement moyen des particules simulées.

### 3.4.2 Les paramètres des simulations

Nous avons vu précédemment l'importance d'une description précise des matériaux proches du détecteur et surtout de la géométrie du système. C'est donc avec le plus de rigueur possible que le dispositif de GEMINI a été simulé dans sa configuration de mesure de section efficace ( $n,\gamma$ ). Ainsi sur la figure (3.9) qui présente en coupe une partie de la géométrie générale entrée dans le code on peut remarquer l'effort particulier apporté à la description du dispositif de détection des rayonnements gamma. Les quatre montages télescopes (non visibles sur la figure) munis de leurs collimateurs respectifs en Tantale ainsi que de leur couronne supportrice ont été également décrits dans les moindres détails en raison de leur proximité des cibles.

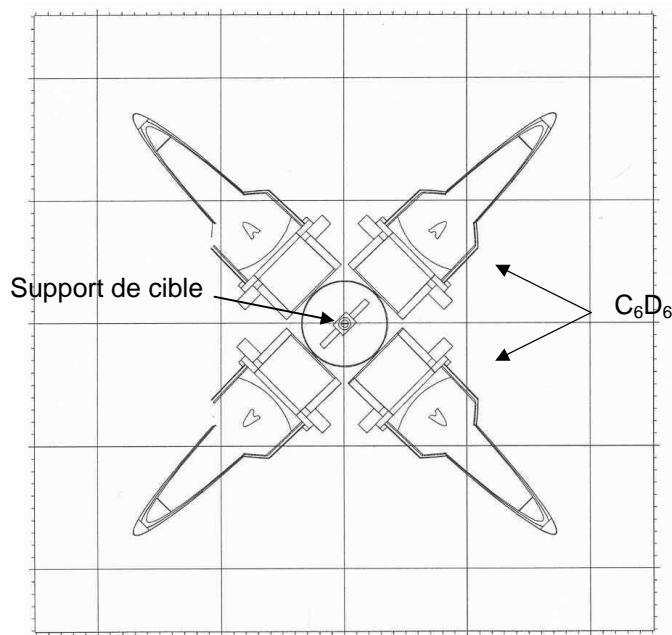
En vue d'une comparaison expérience/simulation, les énergies des rayonnements gamma sélectionnés pour les simulations étaient identiques à celles prises pour la détermination des efficacités expérimentales des détecteurs  $C_6D_6$ . De ce fait, à chaque type de production de rayonnements gamma (sources scellées, réactions (pp') etc.) correspondait une source décrite avec précision dans le fichier d'entrée suivant les caractéristiques des cibles et de leurs supports.

Une simulation de  $10^6$  particules a été effectuée avec la même philosophie que pour les études préliminaires à Bordeaux concernant le suivi des photons et des électrons (mode de simulation PE) et concernant les dépôts d'énergie dans le volume actif.

Nous avons opté pour des seuils électroniques expérimentaux les plus bas possibles, en conséquence aucun seuil en énergie n'a été introduit dans les simulations. De ce fait, les calculs des efficacités à partir des réponses simulées ont dû être corrigés pour les faibles

énergies gamma ( $< 500$  keV) car ils se trouvaient surévalués par rapport à la réalité expérimentale.

Les quatre scintillateurs étant identiques, dans un souci d'optimisation et surtout de gain de temps, les  $C_6D_{63}$ ,  $C_6D_{62}$ , et  $C_6D_{64}$  ont été dupliqués à partir du  $C_6D_{61}$  pris arbitrairement comme référence. Grâce à ce type de fichier d'entrée, les simulations ont été réalisées avec MCNP-4C2 sur un PC linux (DELL power edge 2400 bipro, PIII 600MHz Ram 1Go Redhat 7.2) pour des temps variant entre 1h (photons de 121 keV) à 50h (photons de 7000 keV).



**Fig. 3.9:** Section suivant un axe perpendiculaire à l'axe du faisceau représentant une partie de la géométrie entrée dans le code MCNP. Les déformations des  $C_6D_6$  sont dues à l'intersection entre le plan et la géométrie. N'apparaissent pas sur la figure les montages télescopes sur leur couronne et la plaque supportrice des quatre scintillateurs.

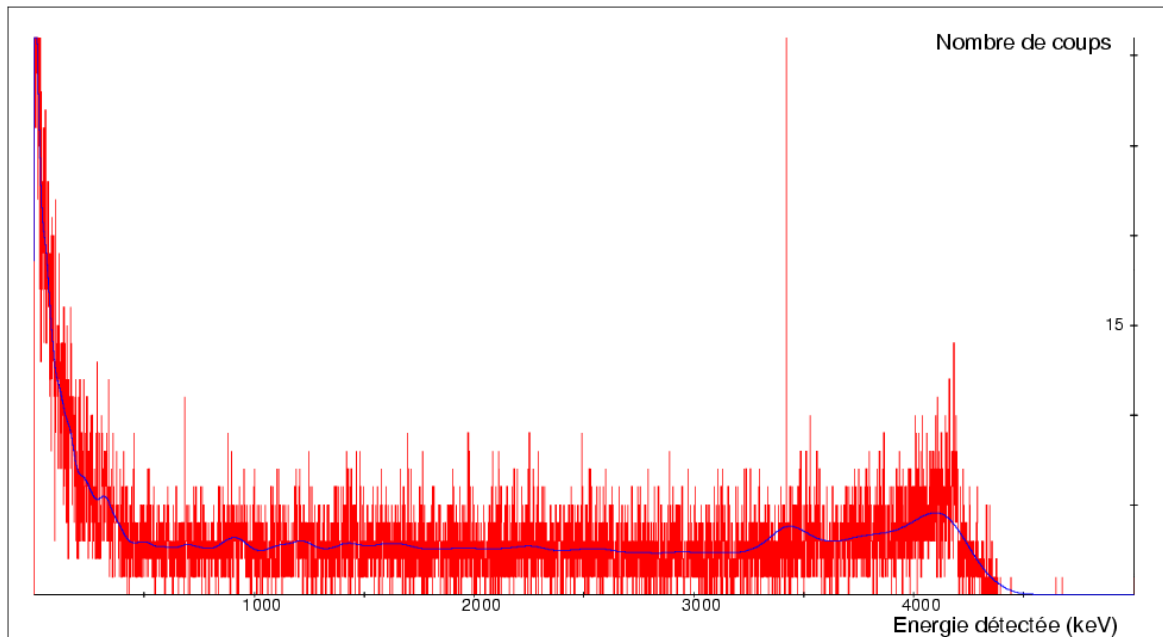
### 3.4.3 Comparaison expérience/simulations

Les fonctions de réponse brutes issues des simulations ne tiennent pas compte de la résolution de la photocathode du scintillateur ; il est donc assez difficile de comparer directement les fonctions de réponse expérimentales et simulées. Pour pallier ce problème, il a été inséré dans le programme d'analyse des spectres simulés une fonction de lissage de forme Gaussienne :

$$B = A \times \frac{e^{-num^2}}{2s\sqrt{\pi}} \quad (3.5)$$

où  $A$  et  $B$  sont respectivement les nombres de coups dans un canal considéré avant et après lissage,  $num$  représente l'intervalle de lissage pour le canal considéré et  $s$  l'erreur sur le nombre de coups affectée à ce canal.

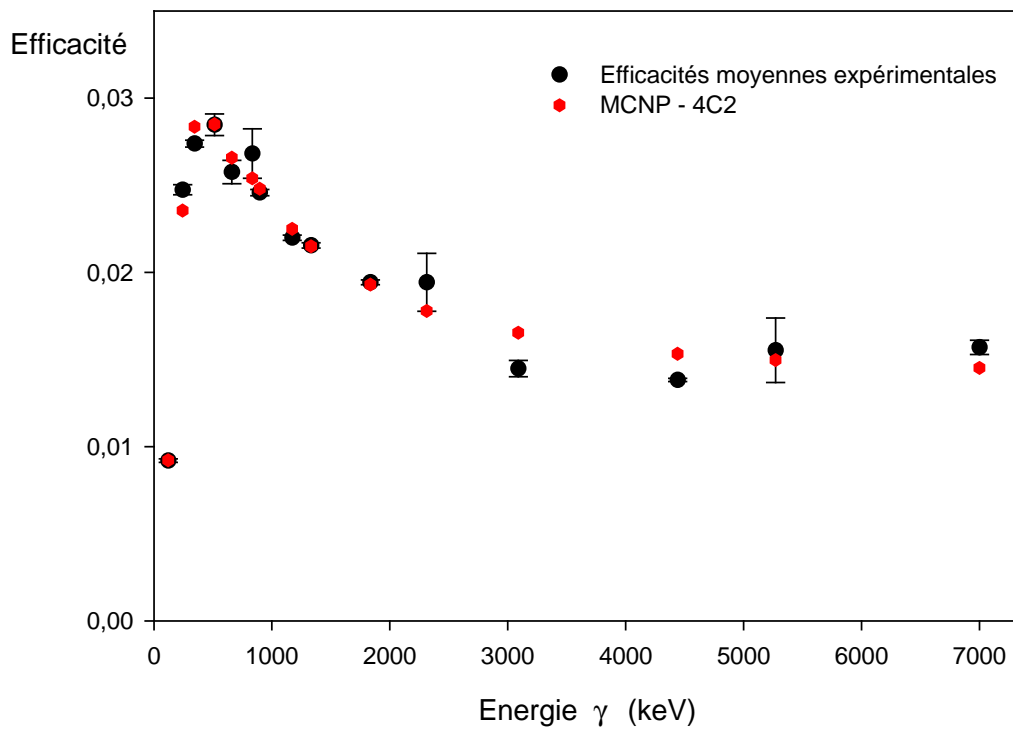
Sur la figure suivante, nous pouvons voir à l'aide des deux spectres superposés un exemple de lissage réalisé sur une des fonctions de réponse simulée pour un rayonnement gamma d'une énergie de 4440 keV.



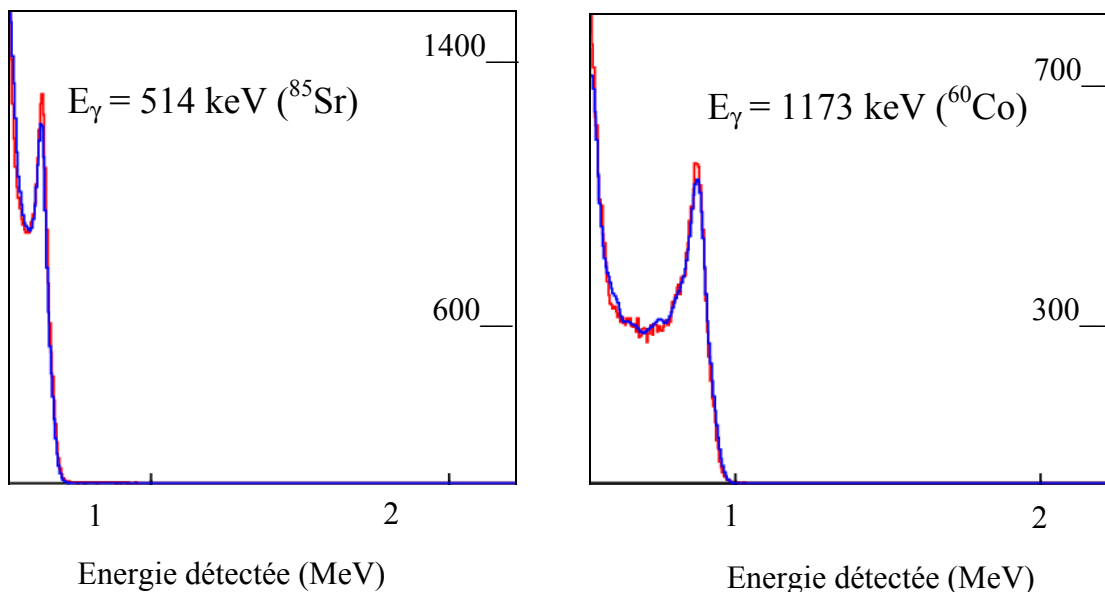
**Fig. 3.10:** Fonction de réponse simulée brute (en rouge) et lissée (en bleu) d'un rayonnement gamma de 4440 keV. On remarque que lors des simulations le front Compton est clairement défini tandis qu'une fois lissée pour tenir compte de la résolution de la photocathode la fonction de réponse simulée coïncide avec la forme de la fonction de réponse expérimentale considérée.

Pour la partie expérimentale nous avons, pour chaque énergie de référence, comparé la moyenne des quatre efficacités analysées pour les quatre scintillateurs et les efficacités calculées à partir des résultats des simulations réalisées sur MCNP. La coupure due à l'électronique a été artificiellement introduite post simulation à partir d'une fonction mathématique développée par Radford [RAD95], légèrement modifiée pour l'occasion et déterminée à partir d'un ajustement sur les points d'efficacité expérimentaux du  $C_6D_6$  de basses énergies ( $< 514$  keV). Les résultats, tant au niveau des efficacités que des fonctions de réponse sont portés sur les figures suivantes:

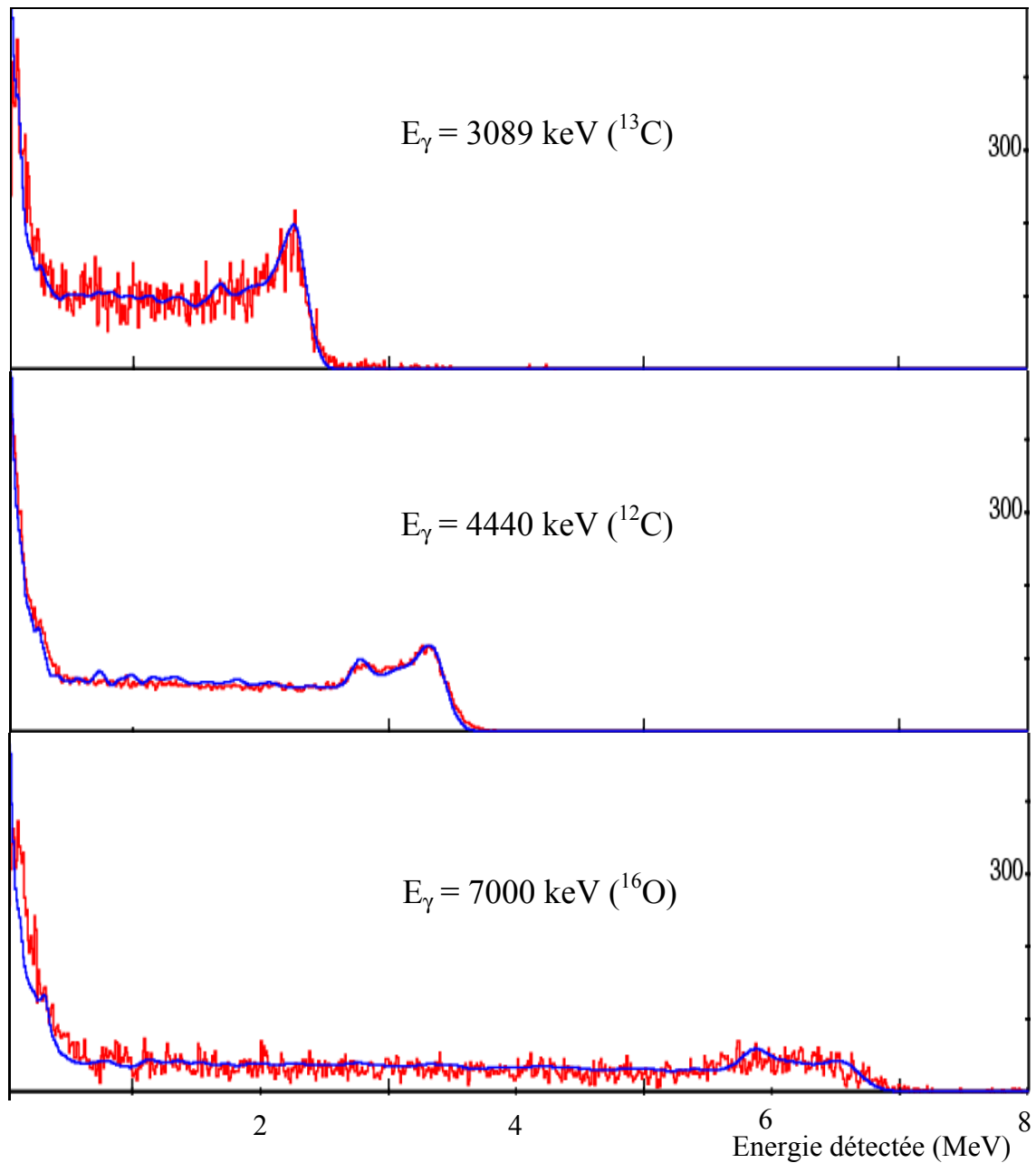




**Fig. 3.11:** Comparaison entre les efficacités moyennes expérimentales et les résultats des simulations pour des énergies gamma entre 121 keV et 7000 keV. Les énergies inférieures à 514 keV ont été ajustées post-simulation à partir du comportement expérimental commun aux quatre scintillateurs.



**Fig 3.12a:** Comparaisons entre fonctions de réponses expérimentales (rouges) et simulées (bleues) pour des énergies gamma incidentes de 514 keV et de 1173 keV.



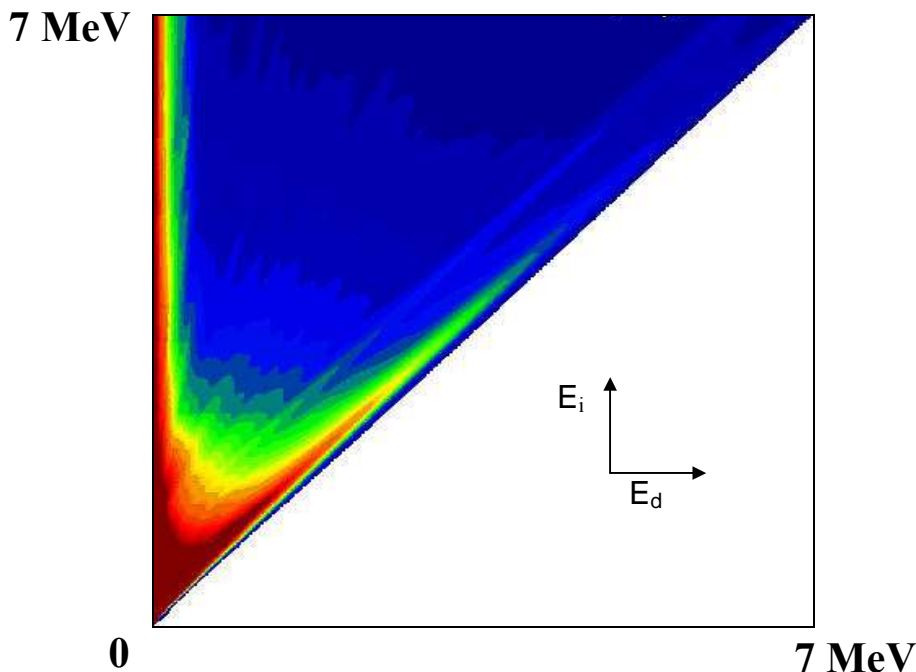
**Fig. 3.12b:** Comparaisons entre fonctions de réponses expérimentales (rouges) et simulées (bleues) pour des énergies gamma incidentes allant de 514 keV à 7000 keV.

Comme dans le chapitre 2, nous avons calculé par estimateur moindres carrés l'erreur entre efficacité expérimentale moyenne et efficacité simulée au-delà du seuil électronique. Cette erreur est estimée à 5%, elle confirme le très bon accord entre l'expérience et la simulation et nous amène une nouvelle fois à être confiants quant à la compréhension de notre dispositif expérimental. Les fonctions de réponse simulées, renormalisées aux efficacités moyennes pour les basses énergies ( $E_\gamma < 514 \text{ keV}$ ) des quatre détecteurs  $\text{C}_6\text{D}_6$ , peuvent donc être utilisées pour la construction de la matrice continue des fonctions de réponse afin de déterminer les fonctions de poids dans le cadre du dispositif GEMINI.

## 3.5 Construction de la matrice de réponse, détermination des fonctions de poids de GEMINI

### 3.5.1 La matrice totale

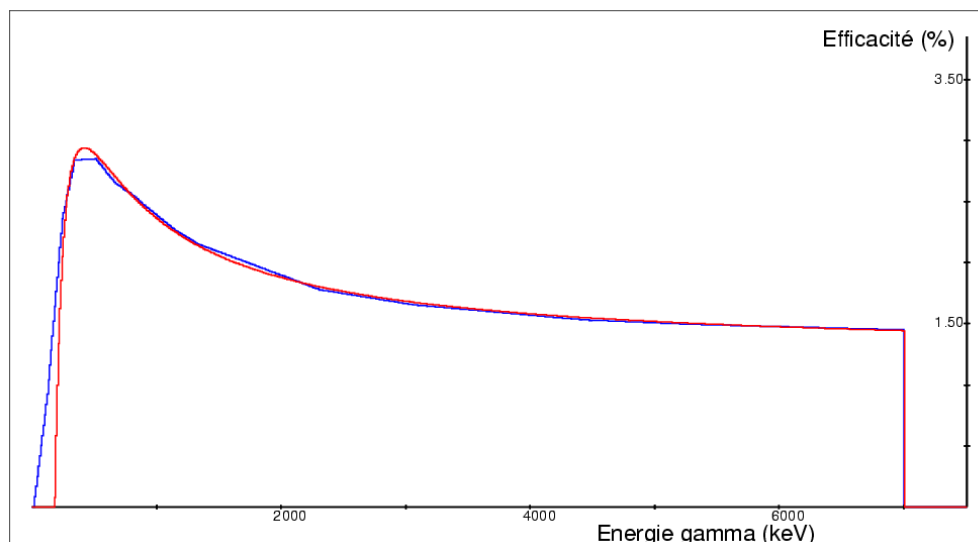
Les diverses opérations qui permettent la construction d'une telle matrice ayant déjà été exposées dans le chapitre précédent, nous ne reviendrons pas sur la méthode employée. Néanmoins, nous précisons que la matrice affectée à l'expérience GEMINI est une matrice  $800 \times 800$  canaux déterminée avec un jeu de fonctions de réponse simulées dont le gain était de 10 keV/canal.



**Fig. 3.13:** Représentation en deux dimensions de la matrice continue calculée pour l'expérience GEMINI,  $E_i$  est l'énergie gamma du photon incident émis et  $E_d$  est l'énergie déposée dans le détecteur. L'intervalle en énergie a été limité à 7 MeV sur les deux axes.

Dans le but de tester le bon déroulement de la construction de la matrice continue à partir des fonctions de réponse discrètes, une comparaison entre l'efficacité obtenue par projection de la matrice suivant l'axe des énergies des rayonnements gamma (l'axe  $E_i$  sur la figure (2.14) du chapitre 2) et la courbe des efficacités simulées de la figure (3.11) a été réalisée.

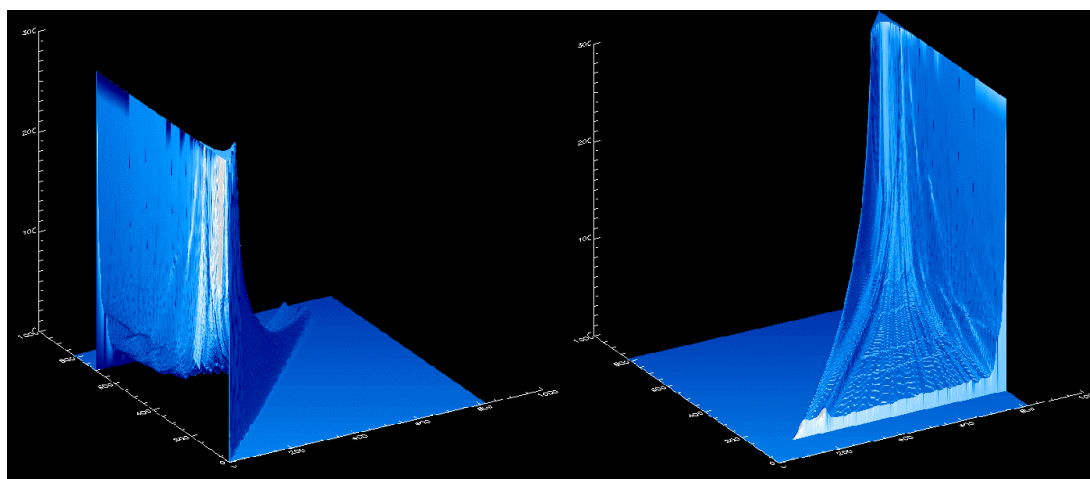
La figure (3.14) illustre le test réalisé, sur l'intervalle total d'énergie (0-7 MeV). La courbe bleue représente l'ajustement réalisé sur la courbe des efficacités simulées et la courbe rouge représente la projection de la matrice des fonctions de réponse suivant l'axe des énergies des rayonnements gamma incidents.



**Fig. 3.14:** Comparaison entre l'ajustement des efficacités simulées (bleu) et la projection de la matrice des fonctions de réponse suivant l'axe des énergies gamma (rouge).

Le recouvrement tout à fait convenable entre les deux graphes valide la matrice que nous avons construite puisqu'elle est contrainte par notre courbe d'efficacité.

Sur les figures suivantes nous pouvons mieux nous rendre compte de l'allure d'une telle matrice avec une vision cette fois-ci en trois dimensions. La troisième grandeur introduite ici est l'axe vertical qui correspond aux valeurs des  $R(E_d, E_i)$  de la matrice de réponse.



**Fig. 3.15:** Représentations 3D de la matrice de réponse sous différents angles. La figure de gauche est réalisée à angle nul, et celle de droite pour un angle de 180°. L'axe des X représente les énergies détectées, l'axe Y les énergies des rayonnements gamma incidents et l'axe des Z les coefficients de la matrice saturés à une valeur de 300 pour les besoins de la figure.

Rappelons que le nombre important d'évènements de basse énergie est dû à l'absence de seuil sur les fonctions de réponse. L'aspect triangulaire de la matrice est dû à ce que l'énergie

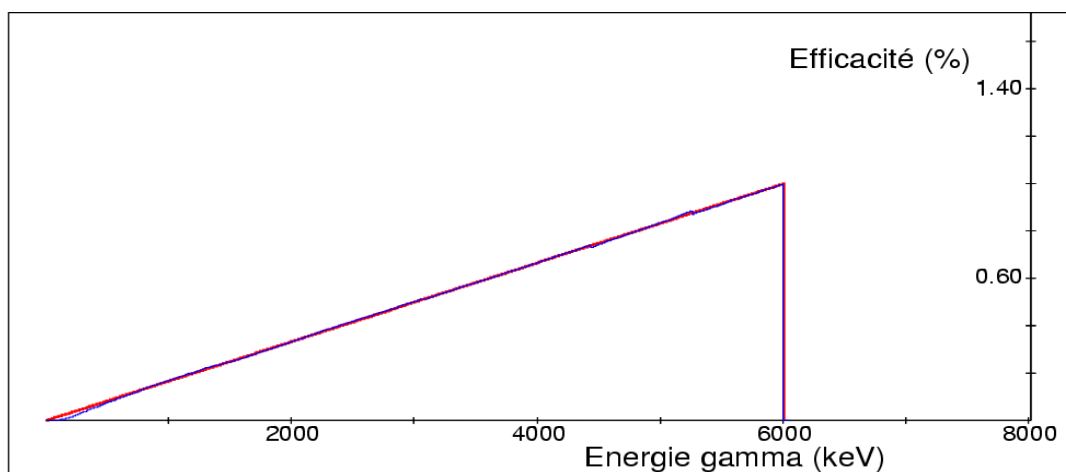
détectée dans les  $C_6D_6$  ne peut pas être supérieure à l'énergie incidente. A noter également qu'en vue de face (figure de droite), on retrouve la fonction de réponse du rayonnement gamma de 7 MeV.

A ce stade, on peut minimiser la matrice, dans le but de déterminer des fonctions de poids et ceci par rapport à n'importe quelle énergie d'excitation où l'on choisira de se placer. Ceci dépendra du nombre de plages énergétiques que l'on définira en fonction de la statistique expérimentale obtenue lors de l'analyse des réactions  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},X)$ .

### 3.5.2 La minimisation

Nous avons utilisé l'algorithme « AMOEBA » basé sur la méthode "Downhill Simplex" présenté au second chapitre. Nous avons déjà vu le protocole de minimisation et son fonctionnement. Dans le cas qui nous intéresse, ce dernier a été appliqué à tous les jeux d'énergie d'excitation choisis. La tolérance sur l'obtention du minimum de la fonction était de  $10^{-9}$  ce qui était une valeur suffisamment basse pour prétendre avoir une parfaite convergence entre deux passages successifs.

A chaque minimisation, une comparaison entre l'allure linéaire voulue et la courbe d'efficacité obtenue était effectuée. Rappelons que l'énergie d'excitation  $E_x$  détermine la gamme d'énergie des photons émis entre 0 et  $E_x$  (MeV). Ainsi à titre d'exemple, la figure (3.16) illustre une comparaison efficacité désirée/obtenue en fonction de l'énergie des rayonnements gamma pour une énergie d'excitation arbitraire de 6 MeV et met en relief le parfait fonctionnement de l'algorithme de minimisation sur notre matrice. Concernant le code des couleurs, la courbe rouge représente l'efficacité désirée et la bleue l'efficacité obtenue par projection suivant l'axe des énergies gamma ( $E_i$ ), de la nouvelle matrice des fonctions de réponse pondérée (partie droite de la figure 3.17).

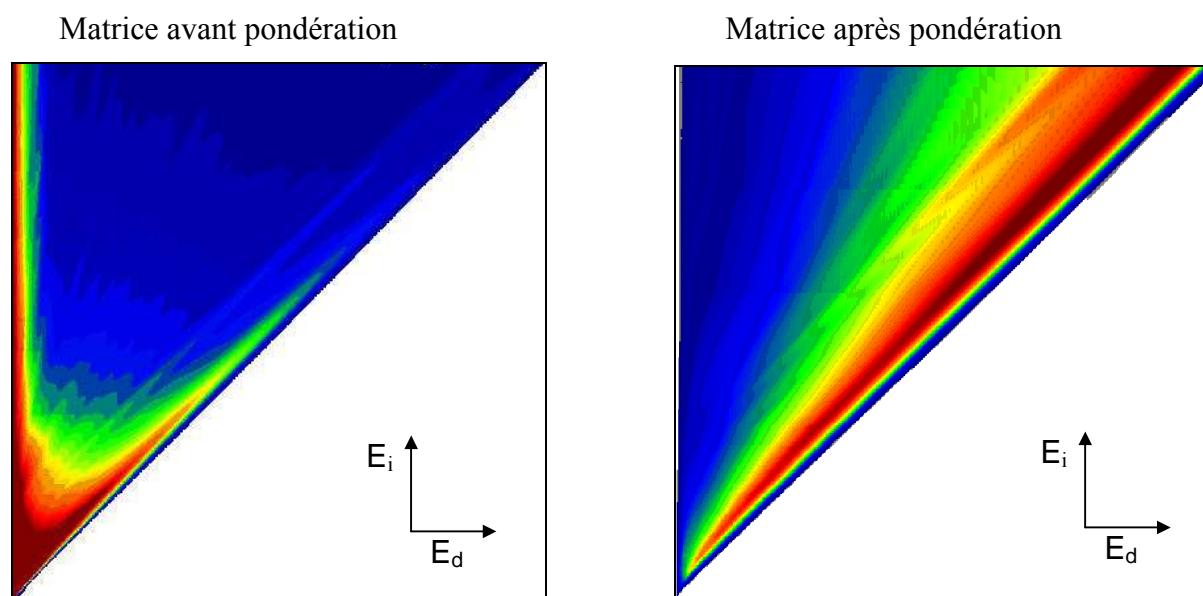


**Fig. 3.16:** Exemple de comparaison entre l'efficacité linéaire désirée et la projection de la matrice des fonctions de réponse sur l'axe des énergies gamma après pondération (nouvelle efficacité pour une énergie d'excitation de 6 MeV).

Les résultats obtenus concernant la linéarité de l'efficacité obtenue sont tous satisfaisants malgré une faible divergence aux basses énergies, principalement due à l'effet de seuil électronique qui complique la minimisation.

A chaque énergie d'excitation choisie, la multiplication de la matrice des fonctions de réponse par la fonction de poids donne, via des représentations en deux dimensions des matrices, dont un exemple est présenté sur la figure (3.17).

La variation du spectre de couleur (bleu pour les faibles coefficients, vermillon pour les coefficients importants) illustre la pondération des coefficients de la matrice de départ qui sont fortement rehaussés dans la région du front Compton par l'application de la fonction de poids. Ceci est vrai notamment pour des énergies gamma au-delà de 2 MeV.



**Fig. 3.17:** Illustration de l'effet d'une fonction de poids sur la matrice des fonctions de réponse pour une énergie d'excitation prise à 6 MeV.

## 3.6 Analyse de l'expérience $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}^*$

### 3.6.1 Expression de la probabilité de capture radiative

L'objectif de ce travail est dans un premier temps de déterminer les probabilités expérimentales de capture radiative. Nous allons à présent expliciter ces grandeurs ainsi que les paramètres qui entrent en jeu, afin de mieux comprendre par la suite les contraintes liées à l'analyse.

Les probabilités de capture radiative,  $P_{(n,\gamma)}$ , que nous avons mesurées au cours de l'expérience GEMINI s'expriment de façon générale par le rapport suivant:

$$P_{(n,\gamma)} = \frac{\text{Nombre de noyaux de } ^{234}\text{Pa} \text{ émettant un photon}}{\text{Nombre de noyaux formés}} \quad (3.6)$$

Le nombre de noyaux  $^{234}\text{Pa}$  formés est proportionnel au nombre d'événements "proton" enregistrés dans les détecteurs ( $\Delta E-E$ ). Le nombre de noyaux de  $^{234}\text{Pa}$  se désexcitant par rayonnements gamma est proportionnel au nombre d'événements "proton" enregistrés en coïncidence avec les scintillateurs  $\text{C}_6\text{D}_6$ . La probabilité de désexcitation gamma du noyau de  $^{234}\text{Pa}$  pour une énergie d'excitation donnée peut donc se déduire du rapport de ces deux quantités sans pour autant connaître les efficacités de détection des quatre télescopes ( $\Delta E-E$ ). Rappelons cependant que le nombre de cascades émis par le noyau  $^{234}\text{Pa}$  dépend de l'efficacité de détection des scintillateurs  $\text{C}_6\text{D}_6$ , et donc de la connaissance des fonctions de poids associées aux matrices de réponse.

Maintenant il est nécessaire de déterminer quelles sont les plages en énergie que l'on va étudier en fonction de la statistique souhaitée. En effet, c'est cette dernière qui a contraint la largeur des plages et les énergies d'excitation auxquelles nous nous sommes placés tant pour l'analyse que pour le calcul des fonctions de poids.

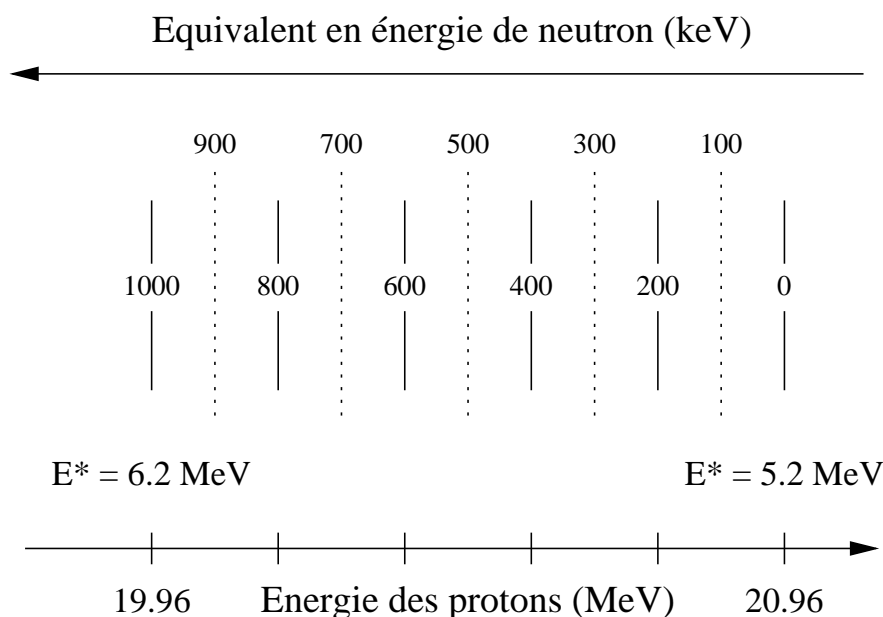
### 3.6.2 Plage d'analyse en énergie pour les protons

Notre plage en énergie d'excitation du noyau de  $^{234}\text{Pa}$  est relativement réduite. En effet si l'on se réfère aux caractéristiques des voies de réaction (voir Chapitre 2), elle ne s'étend que sur une plage d'énergie de 1 MeV, entre le seuil de séparation de neutron (5,2 MeV d'énergie d'excitation) et la barrière de fission (6,2 MeV d'énergie d'excitation). Au-dessus de cette dernière valeur, les photons émis par les fragments de fission auraient faussé les résultats de nos mesures.

Une discussion sur les erreurs relatives aux mesures sera engagée lors de la présentation des probabilités expérimentales. Néanmoins, nous pouvons dire à ce stade que, dans le but de

réduire les erreurs statistiques sur les points d'analyse, il a été choisi de décomposer la plage d'analyse en énergie d'excitation du  $^{234}\text{Pa}^*$  en cinq tranches identiques de 200 keV de large. Ce découpage correspond à des énergies neutrons moyennes pour la réaction  $^{233}\text{Pa}+n$  de 100, 300, 500, 700 et 900 keV.

La figure suivante illustre ce découpage.

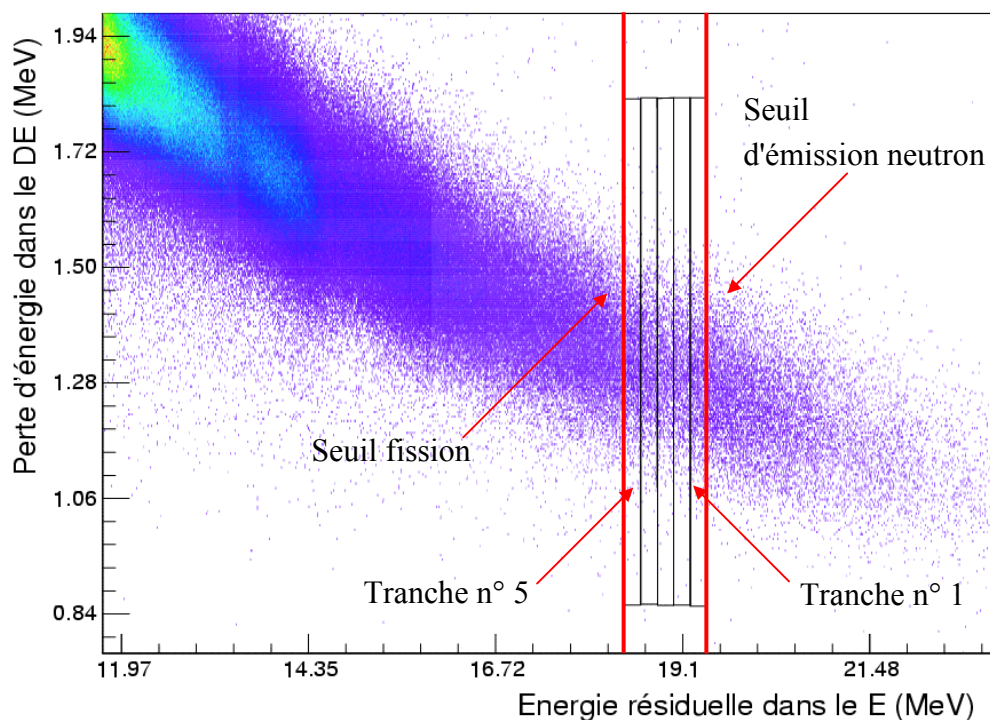


**Fig. 3.18 :** Illustration schématique du découpage de la plage en énergie étudiée. Exemple pris sur l'analyse de la voie proton.

Comme nous pouvons le voir, les tranches sont centrées sur des pas de 200 keV à partir du seuil neutron du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Il est à noter que, puisque l'on forme les noyaux de  $^{234}\text{Pa}$  par réaction de transfert, il est également possible de prolonger ce découpage sous l'énergie d'excitation de 5.2 MeV. Ceci sera repris dans les paragraphes à venir puisque nous pouvons tester notre protocole d'analyse étant donné que la probabilité de désexcitation gamma doit être 100 % pour des valeurs  $E^* < 5,2 \text{ MeV}$ .

Le découpage a été réalisé par contour graphique sur des représentations  $\Delta E$ - $E$  dont un exemple est présenté sur la figure (3.19). La partie haute de la "banane" proton est représentée avec un spectre couleur associé au nombre de coups détectés dans les télescopes allant du violet au bleu clair dans le sens croissant. On peut également remarquer sur la figure, dans une région située bien en dehors de la plage d'analyse, que certains états excités du noyau de  $^{14}\text{N}$  alimentés par la réaction  $^{12}\text{C}(^3\text{He,p})^{14}\text{N}^*$  sont nettement visibles (couleurs bleues, vertes et jaunes).





**Fig. 3.19:** Exemple de découpage en énergie réalisé lors de l'analyse de la voie proton sur une représentation  $\Delta E$ -E. Les découpages apparaissent en traits continus noirs et les seuils fission et neutron du noyau de  $^{234}\text{Pa}$  ont été placés en traits continus rouges.

Le même type de découpage a été appliqué, dans le cas de la voie triton, avec une plage en énergie de départ nettement plus réduite (220 keV) en raison de la proximité en énergie des seuils fission et de séparation de neutron. Seule une tranche a été mise en place dans la région de capture neutronique. Les collimateurs des détecteurs télescopes qui avaient été optimisés pour la voie proton n'étaient pas adaptés à la cinématique de la voie alpha. En conséquence, cette voie de réaction n'a pas été analysée par manque de résolution en énergie.

### 3.6.3 Traitement de la voie simple

Comme nous l'avons écrit dans les paragraphes précédents, cette analyse ne s'applique qu'à la détection des protons émis dans le but de déterminer le nombre total de noyaux de  $^{234}\text{Pa}$  formés. Nous avons utilisé les fichiers de données spécialement créés à cet effet et ne concernant que les évènements caractéristiques des quatre montages télescopes utiles dans ce cas (TAC  $\Delta E/E$ , énergie  $\Delta E$ , énergie E, label du télescope).

Rappelons que les quatre TAC  $\Delta E/E$  ont été normalisés entre eux afin de n'appliquer qu'une seule et même fenêtre d'analyse. Au final, nous avons pris une fenêtre d'une largeur de 180 canaux, ce qui avec le gain utilisé (553 ps/canaux) correspond à une largeur temporelle de

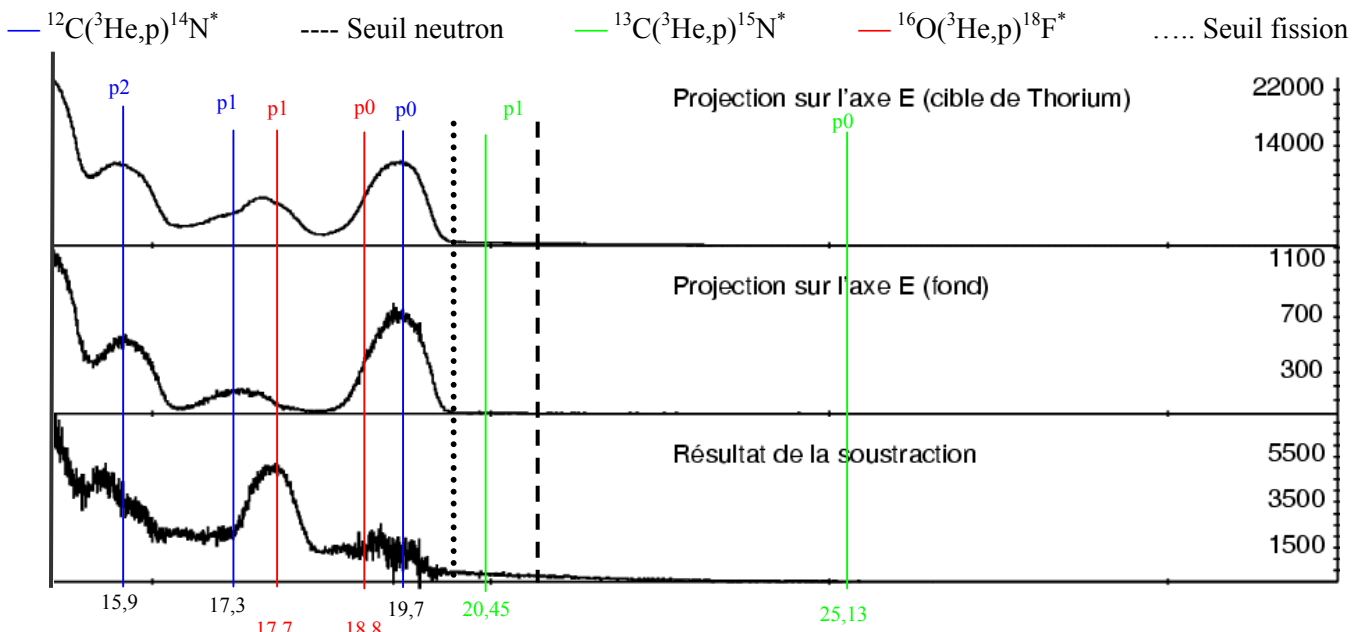
l'ordre de 100 ns. Les coïncidences fortuites dans cette fenêtre étaient de l'ordre de 1000 pour 6 millions de coïncidences vraies. Nous les avons négligées.

Les amplitudes des signaux énergie délivrés par les  $\Delta E$  et les E ayant été au préalable également renormalisées (cf 3.3), le traitement s'est effectué sur l'entière statistique des quatre montages. Ainsi, dans une représentation  $\Delta E$ -E et pour chacune de nos énergies d'excitation de référence, le nombre total d'événements protons est obtenu par projection de chaque tranche sur l'axe énergie E, dans des histogrammes. Cette projection est, bien entendu, régie par la fenêtre d'analyse temporelle citée plus haut qui n'autorise que le traitement des événements qui ont traversé le  $\Delta E$  pour s'arrêter dans le E.

A ce stade, nous ne pouvons pas encore prendre les résultats des projections comme étant le nombre total de noyaux de  $^{234}\text{Pa}$  formés par tranche d'énergie d'excitation. En effet la présence du support en carbone de  $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  induit également des réactions de transfert avec le faisceau de  ${}^3\text{He}$  (principalement  ${}^{12}\text{C}({}^3\text{He,p})^{14}\text{N}^*$ ,  ${}^{13}\text{C}({}^3\text{He,p})^{15}\text{N}^*$  et  ${}^{16}\text{O}({}^3\text{He,p})^{18}\text{F}^*$ ).

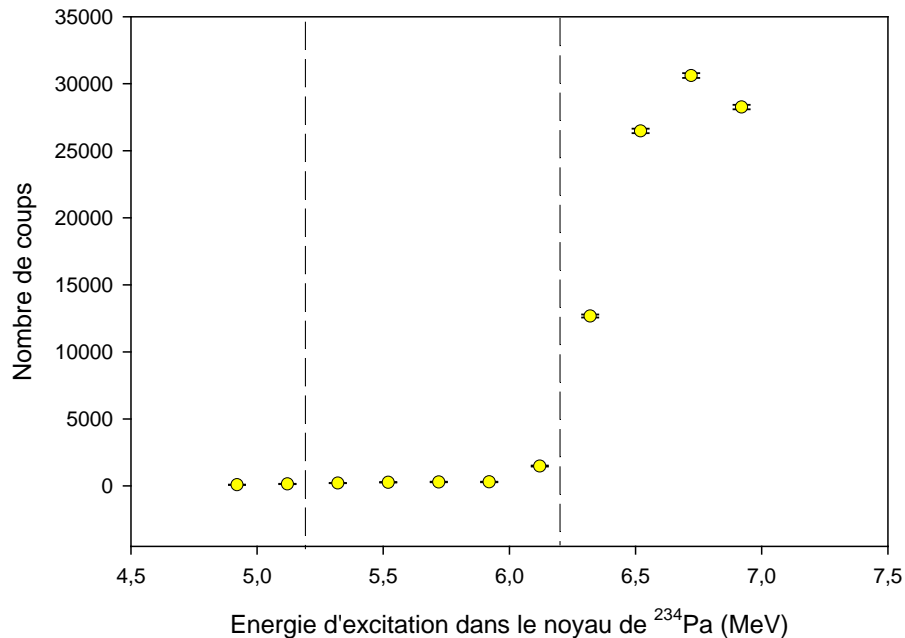
L'exposition sous faisceau de la cible de carbone ( $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) pour évaluer le fond produit par le support s'est donc avérée primordiale. Il lui a été appliqué le même protocole d'analyse que celui utilisé pour les données, provenant de la cible de  $^{232}\text{Th}$ . Nous avons donc obtenu des projections (toujours sur l'axe E) des protons issus de ces réactions pour chaque tranche d'énergie d'excitation.

Reste maintenant à soustraire ce fond des données du  $^{232}\text{Th}$ . Comme les temps de prise de données sont différents entre les mesures de fond et les mesures sur cible de  $^{232}\text{Th}$ , il a fallu normaliser les deux jeux de données. Pour ce faire nous avons utilisé l'alimentation de l'état fondamental (Proton p0) qui est le pic le plus important de la réaction  ${}^{12}\text{C}({}^3\text{He,p})^{14}\text{N}$ . Ce pic très intense a été choisi dans le but de minimiser les erreurs statistiques. Signalons qu'il est situé en dehors de la zone d'analyse délimitée sur la figure (3.20) par les bornes seuil fission et seuil neutron. Cette figure illustre un exemple de soustraction.



**Fig. 3.20:** Exemple de soustraction entre la projection sur l'axe E des protons issus de la cible de Thorium et ceux du fond provenant d'une cible de Carbone de même épaisseur que le support en Carbone utilisé avec le Thorium.

Sur la figure (3.21), nous montrons le spectre de ce fond proton dans la zone d'intérêt. Les tranches sont analysées comme dans le paragraphe précédent et s'étendent de 5 MeV à 7 MeV d'énergie équivalent  $^{234}\text{Pa}$ .



**Fig. 3.21:** Taux de comptage proton dû au fond carbone ramené à l'énergie d'excitation dans le noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Les seuils d'émission de neutron (5,2 MeV) et de fission (6,2 MeV) sont représentés en pointillé long sur la figure.

On note que le taux de comptage des protons est relativement constant jusqu'à une énergie d'excitation de l'ordre de 6.2 MeV. Puis, au-delà dans la zone de fission du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ , les réactions ( $^{12}\text{C}(^3\text{He,p})^{14}\text{N}^*$ ,  $^{16}\text{O}(^3\text{He,p})^{18}\text{F}^*$ ) perturbent notre analyse. Dans la région d'intérêt (entre les deux seuils), la majeure partie du fond provient de la réaction de transfert  $^{13}\text{C}(^3\text{He,p})^{15}\text{N}^*$  sur le noyau de  $^{13}\text{C}$  (1,1 % dans le carbone naturel).

### 3.6.4 Traitement de la voie coïncidence

L'analyse de cette voie est plus complexe, car elle fait intervenir un plus grand nombre de détecteurs (4  $\text{C}_6\text{D}_6$  et 4 télescopes) de nature très différente.

Nous avons utilisé ici deux fenêtres d'analyse gérées par les TAC  $\text{C}_6\text{D}_6/\Delta E$  et  $\Delta E/E$  dont nous avons déjà parlé, et qui valident à eux deux la détection simultanée d'un photon et d'un éjectile traversant un  $\Delta E$  pour s'arrêter dans un E (l'énergie incidente totale est parfaitement connue). Concernant la détection des particules, la largeur de la fenêtre et ses caractéristiques sont bien entendu conservées par rapport au traitement de la voie simple (100 ns, les fortuites sont négligées). Quant à la fenêtre d'analyse "gamma", une largeur de 70 canaux soit 40 ns a été prise pour les coïncidences dites vraies et deux zones, de part et d'autre du "pic" (voir § 3.2), de 70 canaux chacune, soit un total de 80 ns pour les coïncidences fortuites. Nous avons vu l'existence d'un fond de fortuites sous le pic de coïncidences vraies et en prenant une largeur fortuite deux fois plus grande que la largeur du pic et disposée de la sorte, on minimise les fluctuations statistiques lors de la soustraction entre spectres analysés de coïncidences vraies et ceux de coïncidences fortuites.

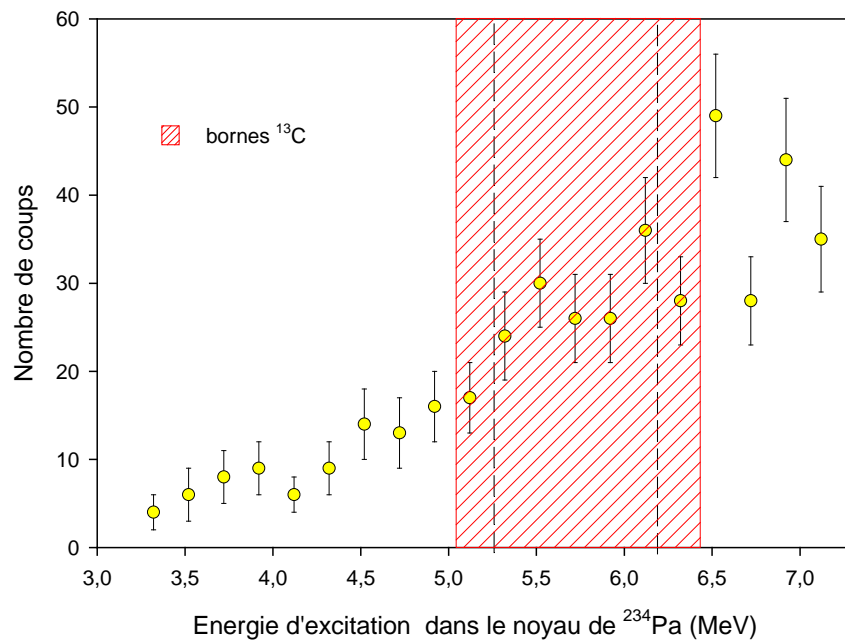
Rappelons que les différents détecteurs sont renormalisés par rapport à un détecteur de référence (le n°4 pour les scintillateurs, le n°1 pour les télescopes). Le précédent type de découpage en tranches d'énergie d'excitation a été utilisé cette fois-ci comme paramètre de projection pour l'énergie des  $\text{C}_6\text{D}_6$ . Les histogrammes accueillant les projections étaient composés de 8192 canaux. Pour chaque tranche, un spectre de "coïncidence vraie" et un spectre de "coïncidence fortuite" étaient construits via les fenêtres d'analyse explicitées plus haut. Une soustraction spectre à spectre était ensuite réalisée à l'aide du facteur temporel adéquat. A ce stade, l'analyse s'effectue désormais avec des spectres de 8192 canaux pour chaque tranche et ne comportant que les cascades photons intéressantes pour notre analyse.

Comme dans la partie précédente, une contribution du bruit de fond gamma produit par le support de carbone doit être soustraite avant de multiplier les spectres analysés par les différentes fonctions de poids associées aux énergies d'excitation auxquelles nous avons choisi de nous placer. Le même mode opératoire a été donc appliqué aux données triées en voie coïncidence concernant la mesure de fond avec la cible de carbone.

Dans un premier temps des soustractions spectre à spectre (pour chaque tranche), normalisées en temps grâce à l'alimentation de l'état fondamental du  $^{12}\text{C}$  (p0) ont été testées.

Le faible taux de comptage du fond "gamma", dû à un temps de mesure qui s'est avéré insuffisant, entraîne d'énormes fluctuations statistiques lors des différentes soustractions. Fluctuations statistiques qui seront amplifiées par la suite avec la multiplication de fonctions de poids. Cette manière d'opérer n'a donc pas été considérée comme concluante.

Une fois encore, nous avons élargi notre domaine d'analyse bien en dessous (10 tranches) et bien au-dessus (10 tranches) du seuil d'émission de neutron dans le  $^{234}\text{Pa}$  (5,2 MeV) pour suivre les fluctuations de ce fond "gamma" sur une large plage en énergie d'excitation du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ : (figure 3.22).



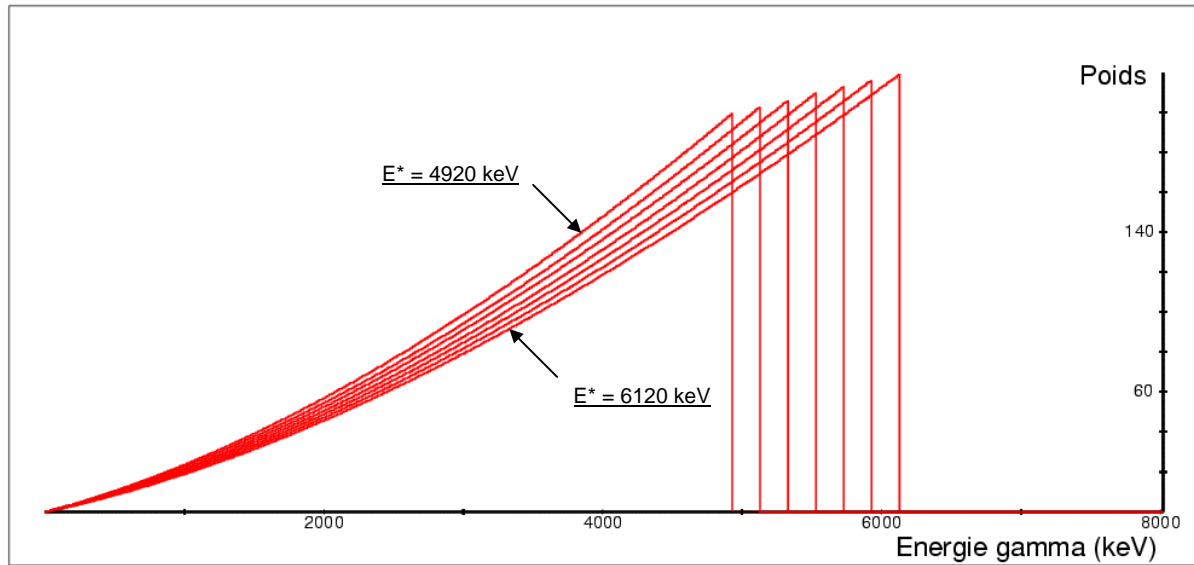
**Fig. 3.22:** Illustration des fluctuations du fond "gamma" obtenu avec une cible de Carbone d'épaisseur identique au support en Carbone de la cible de Thorium. Dix tranches de 200 keV de large ont été portées en dessous et au-dessus du seuil d'émission de neutron du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Le seuil d'émission neutron et le seuil de fission ont été reportés sur la figure ainsi que les bornes délimitant la région parasite provoquée par la présence de  $^{13}\text{C}$  dans la cible et le support.

Pour pallier le manque de statistique, nous avons additionné les spectres de fond gamma en distinguant deux zones, la zone 5,2-6,2 MeV et la zone sous le seuil 4-5 MeV. Les soustractions de fond pouvaient être ainsi différentes suivant les énergies d'excitation auxquelles nous voulions nous placer (avant ou après le seuil).

Dans l'optique de la multiplication par les fonctions de poids, les spectres maintenant soustraits des différents fonds, ont été comprimés à 10 keV/canal et réajustés au gain utilisé pour les fonctions de réponses simulées ( $E_c = 1.006 \times \text{canaux}$ ) qui ont permis la construction de la matrice continue (800×800 canaux). Le nombre de coups pondéré a été divisé par quatre puisque nous avons sommé les informations énergie correspondant aux quatre scintillateurs.

### 3.6.5 Exemple de fonction de poids : cas du noyau $^{234}\text{Pa}$ .

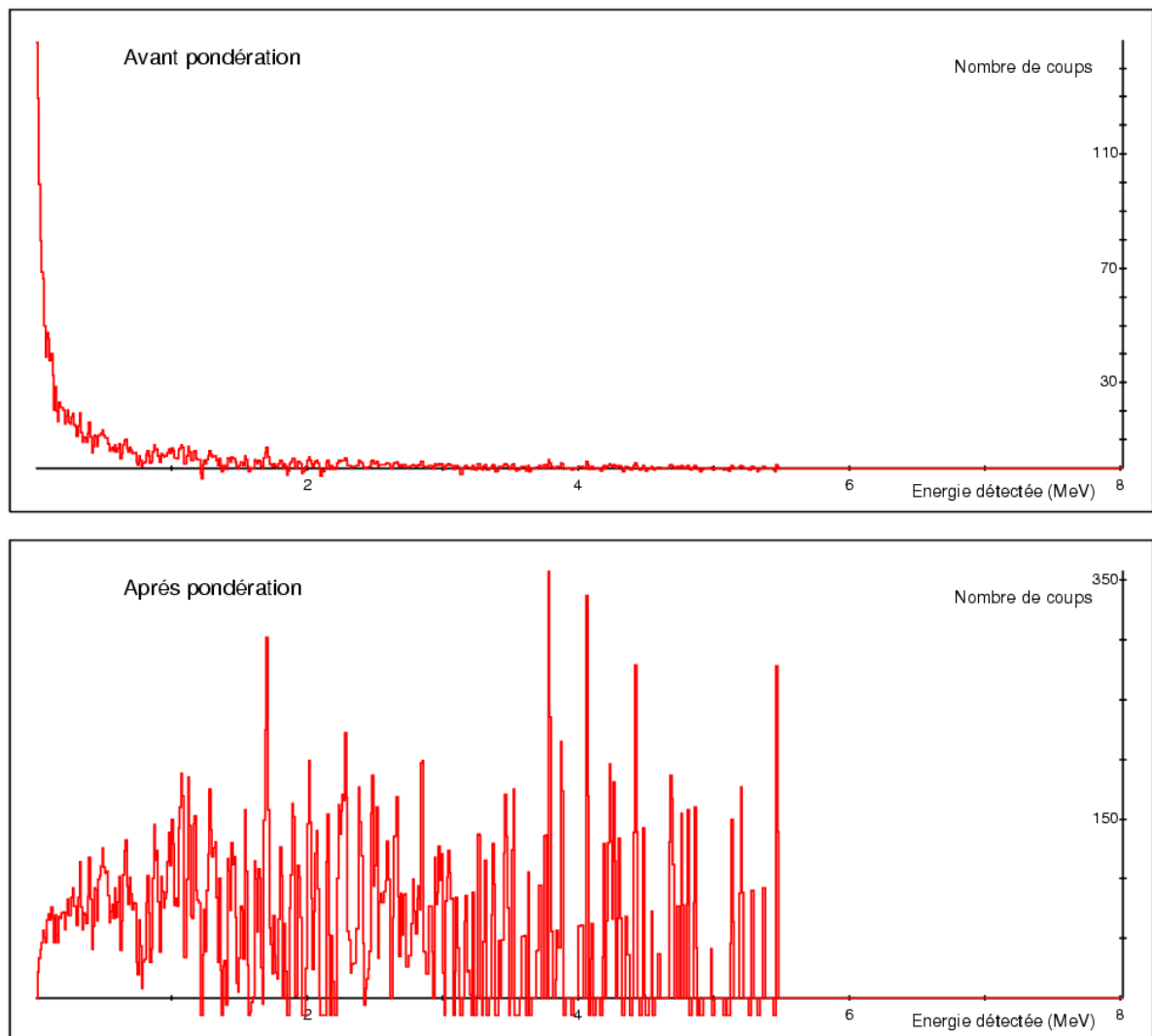
Nous nous focaliserons ici sur les fonctions de poids, déterminées à partir des niveaux d'énergie du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ , suivant le découpage en plage d'analyse explicité précédemment. A chaque énergie d'excitation correspond une fonction de poids. Ainsi à chaque plage d'analyse est associée une fonction de poids:



**Fig. 3.23:** Exemple de fonctions de poids déterminées pour plusieurs énergies d'excitation dans le cadre de l'analyse du noyau de  $^{234}\text{Pa}$  (voir les plages en énergies sélectionnées plus haut). Les graphes représentent les poids calculés en fonction de l'énergie des rayonnements gamma incidents.

Sur la figure précédente, on remarque clairement que plus l'énergie d'excitation est grande moins les poids sont importants. Ce comportement est dû au fait que l'on normalise les calculs à des énergies d'excitation (donc des énergies gamma maximales) de plus en plus grandes et au fait que la courbe d'efficacité expérimentale est relativement constante pour ces énergies.

La multiplication par les fonctions de poids des spectres finals est la dernière opération vers la connaissance du nombre total de cascades photon pour une énergie d'excitation donnée. La figure suivante présente un exemple de multiplication pour un spectre analysé final:



**Fig. 3.24:** Exemple de pondération effectuée pour une énergie d'excitation de 5.6 MeV dans le noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Le spectre de départ a une aire de 2108 coups tandis que le spectre pondéré a une aire réelle de 6874 coups.

Ce protocole a été adapté à chaque tranche d'énergie d'excitation à laquelle nous voulions associer un point de mesure. En ce qui concerne la voie triton, le protocole a été légèrement modifié en raison de la quasi-absence de fond "gamma" pour cette voie de réaction. Seule une soustraction des coïncidences fortuites a été effectuée. La largeur des tranches a également été réduite à 140 keV afin de remédier aux effets de bords dus à la cinématique de réaction.

A présent, nous connaissons les données essentielles nécessaires à la détermination des probabilités d'émission de photons, premiers pas vers la détermination des sections efficaces de capture radiative.

## 3.7 Présentation des probabilités expérimentales d'émission gamma

### 3.7.1 Discussion sur les erreurs mises en jeu

Nous avons vu au paragraphe (3.6.1) que la probabilité d'émission de rayonnement gamma est le quotient du nombre de cascades de photons émises par un isotope au nombre total de noyaux de cet isotope formés. Nous allons présenter ici les résultats obtenus pour ce rapport lors des diverses analyses explicitées au paragraphe précédent.

En ce qui concerne la principale réaction sur laquelle porte ce travail, nous avons choisi de présenter sept points de mesure, dont deux sous le seuil d'émission neutron, avec le découpage en énergie explicité plus haut, à savoir des tranches d'énergie d'une largeur de 200 keV.

Par définition, la somme des probabilités d'émission de rayonnements gamma pour les noyaux considérés est normalisée à 1. Sous le seuil neutron  $B_n$ , la seule possibilité de désexcitation pour le noyau est l'émission de photons et donc les probabilités dans cette région doivent être égales à 1. Au-delà, les réactions  $(n,\gamma)$  et  $(n,n)$  puis  $(n,n'\gamma)$ , entrent en compétition et de ce fait les probabilités d'émission de photons vont chuter.

L'estimation des erreurs expérimentales, appliquées aux différents points de mesure, comprend les erreurs déjà présentées au second chapitre, auxquelles nous avons ajouté les erreurs propres à ce nouveau dispositif:

- Erreurs sur les efficacités de détection mesurée ou simulée (erreur systématique)
- Une erreur statistique proprement dite, qui concerne les fluctuations statistiques sur le nombre de cascades détectées et leurs énergies relatives.
- Une pondération incorrecte des énergies gamma, due à une détection simultanée de plusieurs rayonnements gamma d'une même cascade (erreur systématique).
- Les déviations de linéarité dans le calcul de la nouvelle efficacité corrélées à la précision de la fonction de poids (erreur systématique).
- Erreurs sur l'interpolation des fonctions de réponse lors de la construction de la matrice de réponse (erreur systématique).
- Une erreur statistique qui concerne les fluctuations statistiques sur le nombre de particules détectées par les quatre télescopes.
- Une erreur systématique sur l'énergie d'excitation propre à la résolution des détecteurs télescopes.
- Erreur lors de la soustraction de fond gamma et du fond particule sur chaque plage d'énergie

Rappelons ici que les simulations réalisées ayant reproduit les efficacités expérimentales avec un bon accord figure (3.11), les efficacités simulées ont été prises pour construire la



matrice continue de fonctions de réponse. Conformément aux résultats obtenus lors de notre étude préliminaire au CENBG concernant le comportement de la fonction de poids avec une variation de l'efficacité, l'erreur de 5 % sur les efficacités simulées des points de haute énergie discutée au paragraphe 3.4.3 a été répercutée sur les probabilités gamma.

Des simulations de réactions de capture ( $n,\gamma$ ), suivant le modèle statistique énoncé au second chapitre, ont été effectuées afin de vérifier le comportement des différentes fonctions de poids calculées aux énergies d'excitation considérées. Nous trouvons une erreur statistique sur le nombre de cascades générées de l'ordre de 4 % et une erreur systématique de 0,4 %.

Concernant la détermination du nombre total de particules détectées (lié au nombre total de noyaux à étudier) par les quatre télescopes, l'erreur statistique a été déterminée pour chaque plage d'énergie sélectionnée. L'erreur systématique a été déterminée en tenant compte des résolutions expérimentales des différents détecteurs pour des particules alpha de 5,5 MeV (cf. Tab 2.5) et en incluant une distribution angulaire de 2 %, liée à la cinématique et déterminée pour des protons de 19,3 MeV. Au final, une erreur systématique de 5,2 % sur la détermination des énergies d'excitation a été estimée sur nos mesures.

L'erreur lors des soustractions de fond provient du support en carbone. On constate que si l'erreur provenant de la soustraction du fond particule est négligeable, pour la soustraction du fond gamma, et pour le cas du noyau de  $^{233}\text{Pa}$ , elle varie entre 1,8 % et 2,5 % suivant l'énergie d'excitation considérée. En revanche, lors de l'analyse de la voie triton, la soustraction de fond gamma n'étant pas nécessaire, cette erreur n'apparaît pas sur les mesures.

Au final, les points expérimentaux issus de l'analyse des deux voies sont entachés d'une erreur systématique de l'ordre de 7 % et une erreur statistique de l'ordre de 4 % et ce pour chaque plage d'énergie dans lesquelles nous avons choisi de nous placer. La principale contribution vient de l'erreur appliquée aux valeurs finales prises pour nos efficacités.

Le tableau suivant illustre la statistique obtenue en fonction de l'énergie d'excitation du  $^{234}\text{Pa}$  :

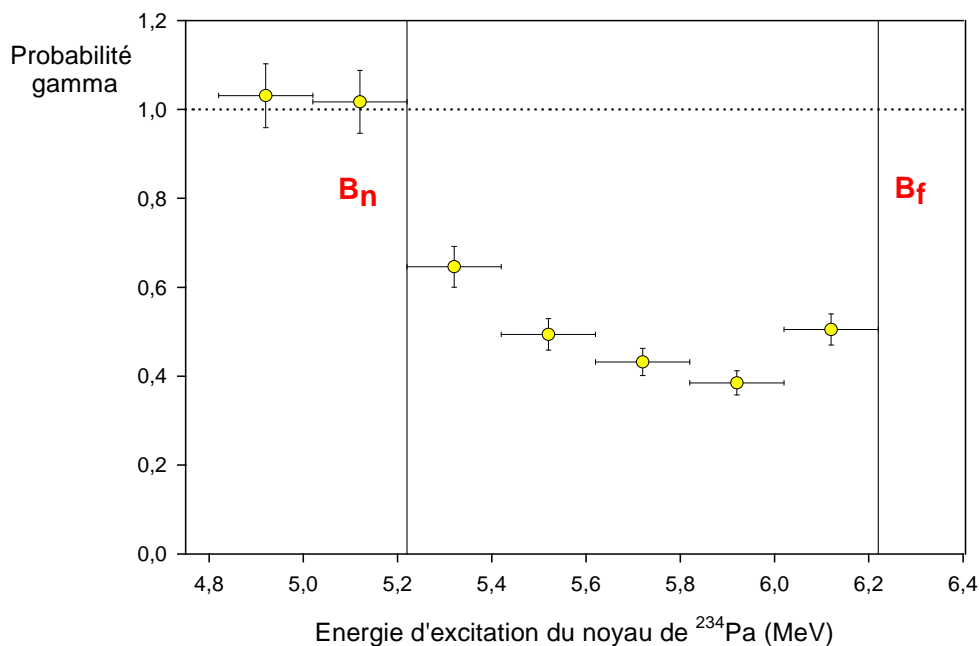
E* (MeV)	$^{234}\text{Pa}$ formés	Aire des spectres analysés	Spectres pondérés	Statistique pour 1 $\text{C}_6\text{D}_6$	Probabilité d'émission $\gamma$	
4.92	11562	3061	47700	11925	1.03	$\pm 0,07$
5.12	12162	3279	49470	12368	1.02	$\pm 0,07$
5.22		SEUIL		NEUTRON		
5.32	12757	2538	32945	8236	0.65	$\pm 0,05$
5.52	13921	2108	27494	6874	0.49	$\pm 0,04$
5.72	15593	2264	26935	6734	0.43	$\pm 0,03$
5.92	16834	2695	25954	6489	0.39	$\pm 0,03$
6.12	18079	3999	36489	9122	0.51	$\pm 0,03$

**Tab 3.3:** Tableau présentant les résultats obtenus pour le noyau de  $^{234}\text{Pa}$  dans les tranches d'énergie d'excitation choisie.

E* (MeV)	$^{232}\text{Pa}$ formés	Aire des spectres analysés	Spectres pondérés	Statistique pour 1 $\text{C}_6\text{D}_6$	Probabilité d'émission $\gamma$	
5.44	7718	2187	30316	7579	0.98	$\pm 0,07$
5.55		SEUIL		NEUTRON		
5.66	8153	1951	23729	5932	0.73	$\pm 0,05$

**Tab 3.4:** Tableau présentant les résultats obtenus pour le noyau de  $^{232}\text{Pa}$  dans les tranches d'énergie d'excitation choisie.

La figure suivante illustre nos résultats pour la voie de réaction proton. Nous obtenons bien des probabilités proches de la valeur 1 sous le seuil d'émission neutron comme il était attendu. Au-dessus du seuil, le comportement de la courbe est également cohérent avec l'apparition des réactions  $(n,n)(n,n'\gamma)$ , et la chute des probabilités.

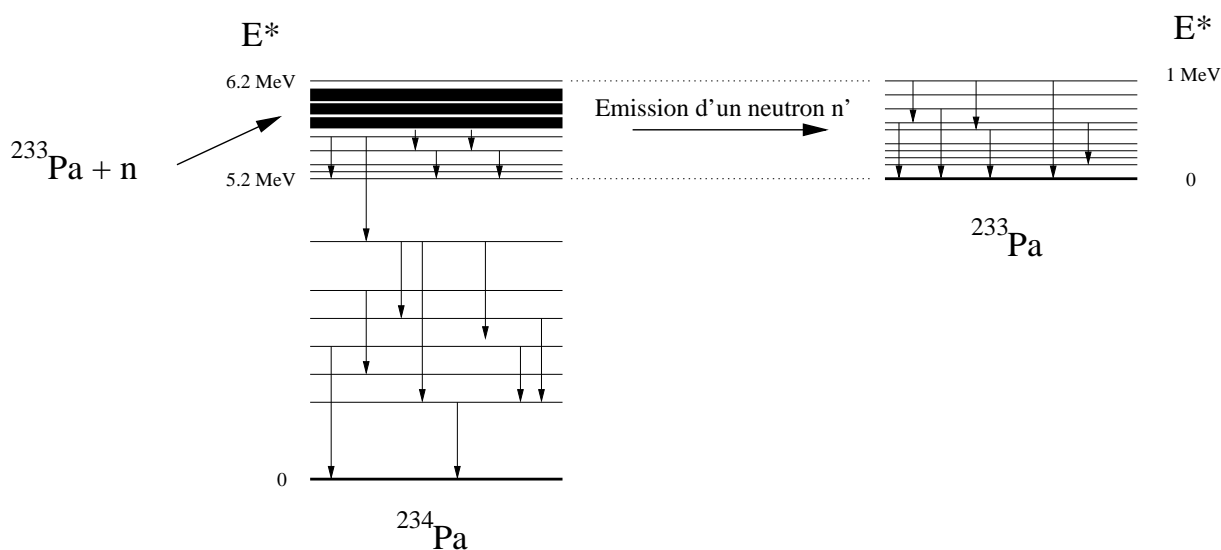


**Fig. 3.25:** Probabilités expérimentales "brutes" en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Les seuils neutron et fission sont portés en trait continu.

### 3.7.2 Contribution des réactions (n,n' $\gamma$ ) et présentation des probabilités expérimentales corrigées

Il reste maintenant à traiter la compétition entre les réactions (n, $\gamma$ ) et (n,n') à des énergies d'excitation au-dessus du seuil d'émission de neutron  $B_n$ . Pour une énergie d'excitation  $E^* = B_n + E$  dans le noyau  $^{234}\text{Pa}$ , l'énergie d'excitation maximale dans le noyau  $^{233}\text{Pa}$  est  $E$  et donc l'énergie des transitions gamma individuelles est au maximum  $E$ . La figure (3.26) illustre la diffusion inélastique (n,n' $\gamma$ ) dans le cas de la réaction  $^{233}\text{Pa} + n$ . Les photons émis lors de la désexcitation du noyau  $^{233}\text{Pa}$  vont également être enregistrés dans nos détecteurs et vont perturber nos conclusions concernant la probabilité de capture radiative.

Une des solutions eut été d'augmenter le seuil électronique de détection des scintillateurs à une énergie correspondant à l'énergie maximale gamma  $E$ . Par exemple pour  $E^* = 6,2 \text{ MeV}$  la valeur de  $E$  est égale à  $1 \text{ MeV}$ . Nous n'avons pas choisi cette solution, car l'efficacité de détection gamma aurait été grandement diminuée et nous aurions donc rencontré des problèmes liés à la statistique. Mais surtout, augmenter le seuil en énergie correspond à une perte d'information car certaines cascades constituées de photons de faible énergie ne seront plus comptabilisées et la fonction de poids sera faussée. Cette procédure conduirait donc à des résultats erronés.



**Fig. 3.26:** Vue schématique de la compétition entre les réactions de capture radiative et l'émission de neutron

Il a été choisi de déterminer la proportion des photons émis après diffusion inélastique, à l'aide de simulations dans l'intervalle d'énergie neutron qui nous intéresse (0-1 MeV). L'idée est d'étudier la désexcitation du noyau  $^{233}\text{Pa}$  après diffusion à une énergie d'excitation donnée. Le modèle statistique choisi pour décrire la décroissance du noyau est composé de vingt niveaux discrets d'énergie fixe entre 0 et 1 MeV, espacés de 50 keV. Ainsi, pour chaque valeur d'énergie neutron sur laquelle sont centrés nos intervalles d'analyse (cf fig. 3.18), 100 000 cascades de type dipolaire électrique E1 ( $P_\gamma \propto E_\gamma^3$ ) ont été générées de façon aléatoire suivant ce modèle, puis stockées dans un fichier pour une utilisation ultérieure.

Les fichiers de sortie ont été ensuite introduits dans le programme de simulation de la réponse d'un détecteur  $\text{C}_6\text{D}_6$  présenté au cours des paragraphes précédents. Pour chaque fichier, 1000 boucles de 100 000 cascades ont été tour à tour simulées, afin de déterminer avec une statistique suffisante le nombre total de photons détectés après pondération par les fonctions de poids (les photons ont été considérés comme émis de façon isotropique dans l'espace).

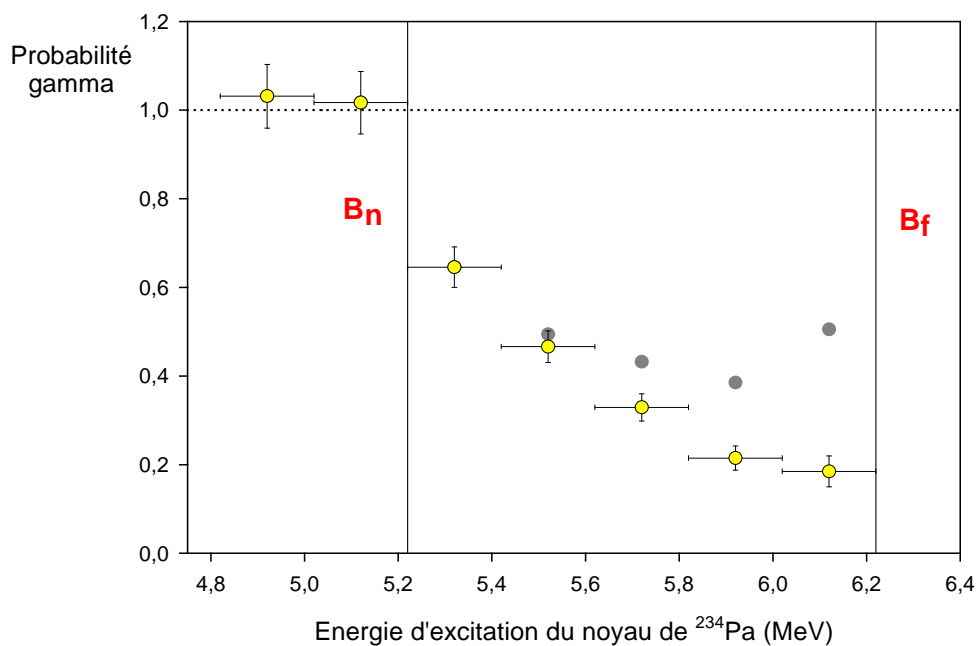
A présent, en se reportant aux calculs de modèle statistique qui nous ont permis de proposer des sections efficaces pour les voies  $(n,\gamma)$  et  $(n,n'\gamma)$  [PET04], les résultats finals sont obtenus par la multiplication du nombre de cascades gamma obtenues par simulation par le rapport entre les sections efficaces calculées de diffusion inélastique  $\sigma_{(n,n')}$  et de capture radiative  $\sigma_{(n,\gamma)}$  pour le noyau  $^{234}\text{Pa}$ , étant donné que les deux processus ne sont pas équiprobables ( $\sigma_{(n,n')} \neq \sigma_{(n,\gamma)}$ ).

Il a été alors possible, pour chaque tranche d'analyse, d'évaluer la proportion des photons détectés provenant du processus de diffusion de neutron dans le noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau (3.5) en page suivante.

Energie des neutrons (keV)	Energie d'excitation dans le noyau de $^{234}\text{Pa}$ (MeV)	Proportion évaluée des photons issus du processus de diffusion inélastique de neutron (%)
100	5,32	négligeable
300	5,52	6
500	5,72	24
700	5,92	44
900	6,12	63

**Tab 3.5:** Proportions (%) évaluées des photons issus du processus de diffusion de neutron inélastique et comptés dans le dispositif de détection de rayonnements gamma en fonction de l'énergie des neutrons diffusés.

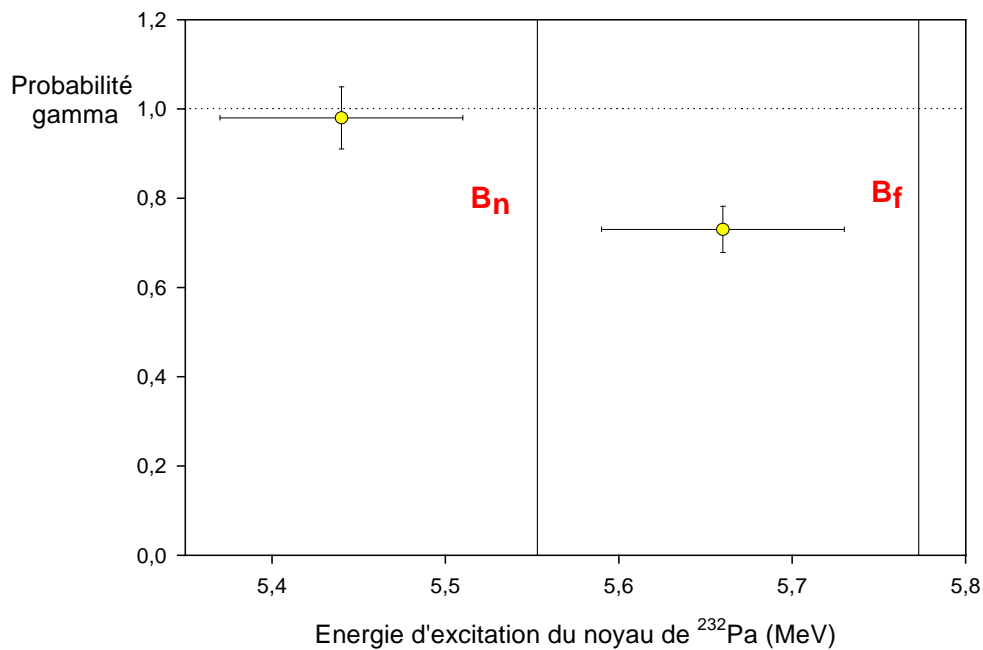
Il est à présent possible de corriger les résultats expérimentaux présentés plus haut pour chaque plage en énergie. Ainsi la figure (3.27) met en relief cette correction à travers la comparaison entre les probabilités gamma "brutes" (grisées) et les nouvelles probabilités après prise en compte des réactions (n,n' $\gamma$ ).



**Fig. 3.27:** Probabilités gamma expérimentales en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ , après correction des rayonnements gamma issus des réactions (n,n' $\gamma$ ). Les seuils neutron et fission sont portés en trait continu.

L'analyse de la voie triton n'a pas fait l'objet de correction, en raison de la petite fenêtre d'analyse disponible (220 keV). Le point déterminé au-dessus du seuil d'émission neutron se situe dans une gamme d'énergie où la proportion des photons issus des réactions (n,n' $\gamma$ ) est négligeable.

Néanmoins sur la figure (3.28), nous pouvons observer un comportement général en accord avec les résultats précédents à savoir une probabilité gamma proche de 1 sous le seuil neutron et une chute de la probabilité au-delà du seuil, due à l'apparition du processus (n,n') qui entre de ce fait, en compétition avec le processus (n, $\gamma$ ).



**Fig. 3.28:** Probabilités expérimentales en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de  $^{232}\text{Pa}$ . Les seuils neutron et fission sont portés en trait continu.



## Chapitre 4.

# Interprétation & discussion des résultats.

### Sommaire

---

<b>4.1 Introduction</b> .....	<b>122</b>
<b>4.2 La section efficace de formation du noyau composé <math>\sigma_{NC}</math></b> .....	<b>123</b>
<b>4.3 Mode de désexcitation du noyau composé sous la barrière de fission</b> .....	<b>126</b>
4.3.1 Désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron.....	126
4.3.2 Désexcitation du noyau composé par émission gamma.....	128
<b>4.4 Présentation des sections efficaces expérimentales de capture radiative</b> .....	<b>130</b>
<b>4.5 Comparaison avec les bases de données et discussion</b> .....	<b>131</b>
4.5.1 Les bases de données à notre disposition.....	131
4.5.2 Comparaison et discussion .....	133

---



## 4.1 Introduction

Notre objectif est la détermination de la section efficace de capture radiative de la réaction induite par neutron  $^{233}\text{Pa} + n$ , dans une plage d'énergie neutron comprise entre 0 et 1 MeV. Après avoir présenté, au chapitre précédent, les résultats expérimentaux obtenus pour les probabilités d'émission de rayonnement gamma du noyau excité  $^{234}\text{Pa}$ , il faut maintenant parler de sections efficaces. Pour cela, nous allons discuter dans un premier temps la section efficace de formation du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$  en voie directe, induite par neutron, puis les différents modes de désexcitation du noyau. Nous avons repris le formalisme déjà exposé lors du calcul de la section efficace de fission de ce même noyau dans le cadre des travaux antérieurs du groupe [PET02]. Cette approche est basée sur l'hypothèse d'un processus en deux étapes: formation d'un noyau composé, puis désexcitation.

Comme nous l'avons vu au deuxième chapitre, le noyau composé  $^{234}\text{Pa}$ , va principalement se désexciter par photons, ou émettre un neutron ou fissionner.

D'un point de vue théorique, la section efficace de capture radiative d'une réaction  $A + n \rightarrow (A + 1)$  s'écrit:

$$\sigma_{(n,\gamma)} = \sigma_{\text{NC}}(E_n) \cdot \left[ \sum_{J,\pi} \alpha(E_n, J, \pi) \cdot \frac{\Gamma_{\gamma}^{J,\pi}(E_n)}{\Gamma_f^{J,\pi}(E_n) + \Gamma_{\gamma}^{J,\pi}(E_n) + \Gamma_n^{J,\pi}(E_n)} \right] \quad (4.1)$$

où  $\sigma_{\text{NC}}(E_n)$  est la section efficace de formation du noyau composé à l'énergie de neutron  $E_n$ . Les coefficients  $\alpha(E_n, J, \pi)$  expriment la probabilité moyenne de population des états  $(J, \pi)$  du noyau composé à une énergie d'excitation  $E^* = B_n + \frac{A}{A+1} E_n$ .  $\Gamma_f^{J,\pi}$ ,  $\Gamma_{\gamma}^{J,\pi}$ ,  $\Gamma_n^{J,\pi}$ , sont les largeurs moyennes de désexcitation associées respectivement aux voies de sortie fission, rayonnements gamma (capture radiative) et neutron (diffusion inélastique).

Dans ce travail, nous nous sommes restreints à travailler sous le seuil fission (cf. 2.3.1.2.), afin que les photons émis par les fragments de fission ne perturbent pas nos résultats. De ce fait, l'expression (4.1) devient dans notre plage en énergie neutron (0-1 MeV):

$$\sigma_{(n,\gamma)} = \sigma_{\text{NC}}(E_n) \cdot \left[ \sum_{J,\pi} \alpha(E_n, J, \pi) \cdot \frac{\Gamma_{\gamma}^{J,\pi}(E_n)}{\Gamma_{\gamma}^{J,\pi}(E_n) + \Gamma_n^{J,\pi}(E_n)} \right] \quad (4.2)$$

L'expression entre crochets correspond à la probabilité de décroissance gamma totale du noyau  $(A + 1)$  formé en voie directe, induite par neutron; comme dans le cas de la voie fission, nous allons supposer que cette probabilité est la même pour le noyau  $(A + 1)$  formé par réaction de transfert à la même énergie d'excitation. Rappelons que, pour la voie fission, nous avons pu tester expérimentalement cette hypothèse en comparant les sections efficaces

de fission mesurées directement dans les réactions  $^{231}\text{Pa} + n$  et  $^{230}\text{Th} + n$  avec les résultats obtenus à partir des réactions  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},t)$  et  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\alpha)$  et en faisant l'hypothèse, qu'en moyenne, les états peuplés étaient les mêmes que ceux alimentés par réactions induites par neutrons [PET04].

Nous expliciterons dans un premier temps le formalisme utilisé pour calculer la section efficace de formation du noyau composé. Puis, nous présenterons les sections efficaces de capture radiative obtenues pour les noyaux de  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{231}\text{Pa}$ ; ceci nous permettra une comparaison avec les différentes bases de données calculées et évaluées actuellement à notre disposition.

## 4.2 La section efficace de formation du noyau composé

### $\sigma_{NC}$

Rappelons que la connaissance de la section efficace de formation du noyau composé  $\sigma_{NC}$  est essentielle pour le travail que nous voulons réaliser puisqu'on va multiplier  $\sigma_{NC}$  par les probabilités expérimentales d'émission de photons du  $^{234}\text{Pa}$  pour obtenir les sections efficaces finales de capture radiative pour ce noyau.

L'hypothèse de la formation d'un noyau composé a été énoncée pour la première fois par N. Bohr à la fin des années trente (1936-1937) [BOH36]. Alors que pour de faibles énergies incidentes de particules chargées, les forces coulombiennes entre noyaux cible et projectile sont prépondérantes (l'introduction du potentiel Coulombien suffit à expliquer les résultats expérimentaux), ce n'est plus le cas lorsque l'on considère des réactions nucléaires faisant intervenir des neutrons ou des particules chargées suffisamment énergétiques pour passer la barrière Coulombienne. Il est alors nécessaire de faire certaines hypothèses sur les interactions spécifiquement nucléaires. La première, établie par N. Bohr partisan d'un couplage fort au sein du noyau (modèle de la goutte liquide), est de dire que le projectile aussitôt entré dans le noyau et soumis à des forces internes très fortes, partage son énergie avec les autres nucléons. C'est la formation d'un noyau composé dont le principal trait dominant est une longue vie moyenne. En raison de sa relativement longue vie moyenne, le mode de désexcitation ne dépend pas du mode de formation. Le noyau "oublie" son origine, ceci est l'hypothèse de base de la formation du noyau composé.

Le formalisme de la mécanique quantique permet de définir les états nucléaires qui entrent en jeu.

Soit  $|s_n, m_n, \pi_n\rangle$  le ket décrivant l'état du neutron. Dans un premier temps, considérons le moment angulaire  $\vec{j}$  total transféré par le neutron comme  $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}_n$  avec  $m_j = m_n$ . En introduisant la relation de fermeture on obtient le couplage entre les états  $(l; m_l)$  et  $(s_n; m_n)$  donnant les états  $(j; m_j)$ :

$$|jm_j\rangle = \sum_{m_n, m_l} |s_n m_n l m_l\rangle \langle l m_l m_n s_n | jm_j\rangle \quad (4.3)$$

où les  $\langle l m_l m_n s_n | jm_j\rangle$  sont les coefficients de Clebsch-Gordan.

La probabilité d'avoir le neutron dans les états  $|jm_j\rangle$  ( $|\langle m_j j | jm_j\rangle|^2$ ) est donc donnée par le carré du coefficient de Clebsch-Gordan  $\{\langle l m_l m_n s_n | jm_j\rangle\}^2$ . Cette probabilité est pondérée par des coefficients de transmission  $T_1^j(E_n)$ , qui affectent un poids au couplage entre les différents moments cinétiques en fonction de la barrière de potentiel considérée et de l'énergie du neutron.

La section efficace de formation du noyau composé dans les états  $|jm_j\rangle$  peut être définie simplement par:

$$\sigma_{\text{NC}}(s_n m_n \pi_n j) = \sigma_{\text{interaction}} \times (\text{Probabilité d'avoir le neutron dans les états } |jm_j\rangle)$$

Où  $\sigma_{\text{interaction}}$  est la section efficace classique d'interaction.

Sous un aspect un peu plus quantique cette dernière expression s'écrit:

$$\sigma_{\text{NC}}(s_n m_n \pi_n j) = \sum_1 \pi \tilde{\lambda}^2 (2l+1) \times T_1^j \langle l m_l m_n s_n | j m_j \rangle \quad (4.4)$$

Où  $\tilde{\lambda}$  est la longueur d'onde réduite du neutron.

Soit  $|s_c, m_c, \pi_c\rangle$  le ket décrivant l'état du noyau cible. Considérons maintenant la probabilité de former le noyau composé dans l'état  $|JM\rangle$  par couplage des états  $|j_n, m_n, \pi_n\rangle$  du neutron et des états  $|s_c, m_c, \pi_c\rangle$  de la cible. De la même manière cette probabilité est donnée par  $\{\langle j m_n s_c m_c | JM\rangle\}^2$  avec  $M = m_n + m_c$  et  $|j - s_c| < J < |j + s_c|$ .

$$\sigma_{\text{NC}}(JM\pi) = \frac{\pi \tilde{\lambda}^2}{(2s_n + 1)(2s_c + 1)} \sum_1 \left[ (2l+1) \cdot \delta(\pi_n, \pi_c, (-1)^l, \pi) \cdot \sum_j T_1^j \sum_{m_n} \langle l m_l m_n s_n | j m_n \rangle^2 \sum_{m_c} \langle j m_n s_c m_c | JM \rangle^2 \right] \quad (4.5)$$

Les fonctions  $\delta$  sont introduites dans un souci de conservation du spin et de la parité.

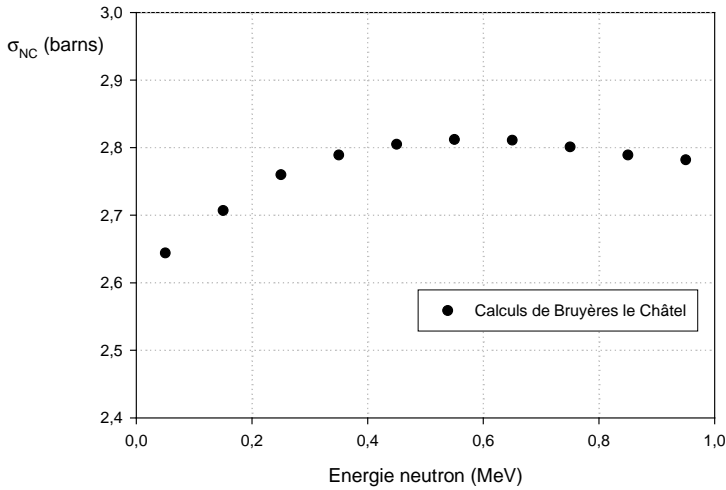
En l'absence de polarisation des neutrons incidents et de la cible, les deux sous-états magnétiques du neutron ( $m_n = \pm 1/2$ ) sont équiprobables. Il en est de même pour les états magnétiques  $m_c$ . De ce fait, nous pouvons effectuer une moyenne sur ces différentes possibilités.

Les coefficients de transmission entrant dans l'expression de la section efficace de formation du noyau composé, ont été calculés par le groupe de physique théorique du laboratoire de Bruyères le Châtel (CEA) et ont déjà été détaillés par ailleurs [PET04], [PET02]. Ainsi la section efficace totale de formation du noyau composé est donnée par l'expression:

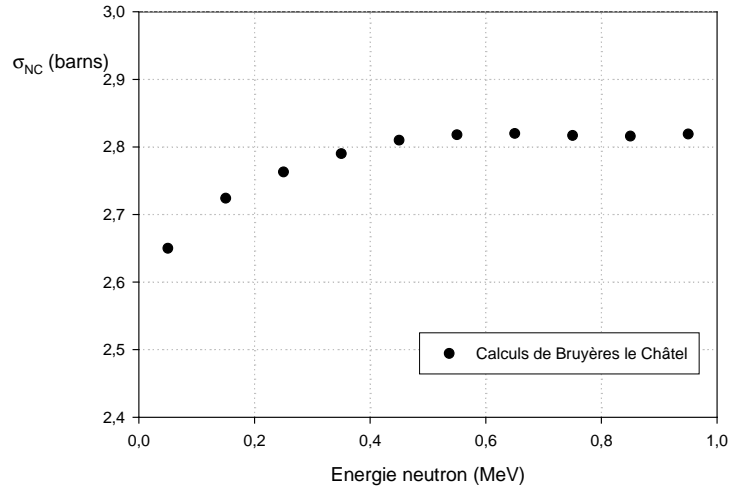
$$\langle \sigma_{NC}(En) \rangle = \sum_J \sum_{M=-J}^{+J} \langle \sigma_{NC}(En, J, M, \pi) \rangle \quad (4.6)$$

La figure suivante illustre les variations de cette section efficace calculée pour les noyaux composés  $^{234}\text{Pa}$  ( $^{233}\text{Pa} + n \rightarrow ^{234}\text{Pa}$ ) et  $^{232}\text{Pa}$  ( $^{231}\text{Pa} + n \rightarrow ^{232}\text{Pa}$ ) dans la plage d'énergie qui nous intéresse.

Section efficace de formation du noyau composé de  $^{234}\text{Pa}$  en fonction de l'énergie neutron



Section efficace de formation du noyau composé de  $^{232}\text{Pa}$  en fonction de l'énergie neutron



**Fig. 4.1:** Variation de la section efficace calculée de formation du noyau composé de  $^{234}\text{Pa}$  et de  $^{232}\text{Pa}$  dans un intervalle d'énergie des neutrons compris entre 0 et 1 MeV.

Comme nous pouvons le voir, les variations pour ces deux grandeurs sont très faibles dans l'intervalle énergétique porté. Pour ce travail, il a été considéré une section efficace de formation du noyau composé moyenne dans chaque tranche d'énergie.

### 4.3 Mode de désexcitation du noyau composé sous la barrière de fission

D'une façon générale, concernant la désexcitation d'un noyau composé se trouvant dans un état quelconque, la probabilité de désexcitation pour une voie donnée est simplement représentée par le rapport entre le coefficient de transmission associé à cette dernière et la somme de tous les coefficients de transmission associés à toutes les voies possibles de désexcitation [PRE62]. Ainsi par exemple dans le cas d'une désexcitation par émission d'un neutron, on peut écrire:

$$P_n = \frac{T_n}{\sum_k T_k} \quad (4.7)$$

où  $P_n$  représente la probabilité d'émission d'un neutron,  $T_n$  le coefficient associé à la désexcitation du noyau composé par émission de neutron et  $T_k$  les coefficients associés aux autres voies de désexcitation pour ce même noyau. Il convient de noter que l'expression (4.7) est très générale et aucune considération de spin et de parité n'a été envisagée.

#### 4.3.1 Désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron

On se place dans l'hypothèse du noyau composé, c'est-à-dire que son mode de formation est indépendant de la voie d'entrée. Dans ce cas, la largeur partielle moyenne  $\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle$  pour la désexcitation du noyau composé par émission de neutron dans l'état  $(J,\pi,E^*)$  caractérisé par un spin nucléaire  $J$ , une parité  $\pi$ , et une énergie d'excitation  $E^*$ , s'exprime par la relation:

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_i T_{i,n}^{J,\pi}(E^* - E_i) \quad (4.8)$$

où  $\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle$  est l'espacement moyen entre les niveaux  $(J,\pi)$  du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$  situés à une énergie d'excitation  $E^*$  par rapport au niveau fondamental de  $^{234}\text{Pa}$ .

Dans ces conditions, les coefficients de transmission  $T_{i,n}^{J,\pi}(E^* - E_i')$  expriment une transition vers le noyau résiduel A alimenté dans des niveaux d'énergie  $E_i'$  caractérisés par un spin  $J'$  et une parité  $\pi'$ .

En sommant sur tous les états  $(J',\pi',E_i')$  accessibles du noyau résiduel on obtient:

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_{E',J',\pi'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E^* - E_i') \cdot \delta(\pi,\pi',(-1)^l) \quad (4.9)$$

où dans ce cas  $T_1^j(E^* - E_i')$  est le coefficient de transmission d'un neutron d'énergie  $(E^* - E_i')$  émis avec le moment angulaire  $l$  et emportant le moment angulaire  $j$  de telle sorte que  $j = l + s$  avec  $s = 1/2$  pour un neutron. On notera l'introduction de la fonction  $\delta(\pi,\pi',(-1)^l)$  pour la conservation de la parité.

Comme le laissait entendre le modèle nucléaire choisi pour simuler les cascades gamma au sein du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$  dans le second chapitre, à partir d'une énergie de l'ordre de quelques centaines de keV, les niveaux discrets sont suffisamment nombreux pour considérer que leur densité peut être prise comme une densité continue  $\rho(J', \pi', E')$ . Ainsi le calcul exprimé par la relation (4.9) peut être décomposé en deux termes distincts; l'un traitant de la sommation sur les niveaux discrets de basses énergies (pour une énergie discrète  $E_d < 800$  keV) et l'autre de l'intégration sur les niveaux continus de plus haute énergie.

La relation (4.9) devient:

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_{E',J',\pi'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E^* - E_i') \cdot \delta(\pi,\pi',(-1)^l) + \int_{E_d}^{E^* - B_n} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E_n) \cdot \delta(\pi,\pi',(-1)^l) \rho(J_f, \pi_f, E_f) dE_f \quad (4.10)$$

Il est donc présenté ici l'expression finale de la largeur partielle de désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron. Voyons maintenant le cas d'une désexcitation par émission de rayonnements gamma.

### 4.3.2 Désexcitation du noyau composé par émission gamma

De même que pour l'émission de neutron, nous allons nous placer dans l'hypothèse que l'émission de rayonnements gamma ne modifie pas la déformation du noyau composé. Par analogie avec la relation (4.8), on peut exprimer la largeur partielle  $\langle \Gamma_{\gamma}^{J,\pi}(E^*) \rangle$  associée à la désexcitation du noyau composé par émission de rayonnements gamma comme la sommation sur les différentes transitions possibles. Ces transitions étant elles-mêmes décrites par les coefficients de transmission associés.

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_{\gamma}^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_i T_{i,\gamma}^{J,\pi}(E^* - E_i) \quad (4.11)$$

D'après la théorie de l'émission de rayonnements gamma établie par Blatt et Weisskopf [BLA52], la transition gamma entre un état de particule et un autre de plus faible énergie est régi par sa multipolarité ( $l = 1, 2, \dots$ ). Dans ce modèle, plus la multipolarité est élevée moins l'intensité de la transition est importante. De plus, les transitions dipolaires électriques sont favorisées par rapport aux transitions dipolaires magnétiques en raison de l'expression même du terme quantique magnétique.

En utilisant l'approche statistique de Weisskopf considérant que pour les énergies d'excitation mises en jeu ( $E^* > 5$  MeV), on se place dans une distribution continue des niveaux, la relation (4.11) peut être approchée par :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_{\gamma, E_1}^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle} \approx 2\pi \cdot (A+1)^{2/3} \cdot E_{\gamma}^3 \quad (4.12)$$

où  $(A+1)$  est le nombre de masse du noyau composé et  $E_{\gamma} = E^* - E'$  l'énergie de la transition préférentiellement de type dipolaire électrique d'ordre le plus bas ( $l = 1$ ).

Au final, dans le cas de la formation d'un noyau composé dont l'énergie d'excitation atteint plusieurs MeV, la largeur partielle d'un état  $(J, \pi, E)$  est donnée par la somme des largeurs partielles associées aux différents états finals possibles lors de la transition gamma:

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_{\gamma, E_1}^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D^{J,\pi}(E^*) \rangle} = C \cdot \sum_{J_f=1}^{J+1} \int_0^{E^*} \rho(E', -\pi, J_f) (E^* - E')^3 \cdot dE' \quad (4.13)$$

Plusieurs choses sont à noter ici. D'une part l'absence de sommation sur les états discrets de basses énergies dont les contributions dans les transitions sont faibles et peuvent être négligées. D'autre part le fait de se placer dans le cadre de transitions dipolaires électriques E1

implique automatiquement un changement de parité d'où l'absence également de fonction  $\delta$  en comparaison avec l'expression (4.10). La constante de normalisation C est ajusté de façon à reproduire la largeur moyenne gamma mesurée dans le domaine des neutrons de résonance ( $\langle \Gamma_\gamma \rangle \sim 40$  meV) [HUS81].

On peut maintenant exprimer les probabilités de désexcitation par émission de neutron  $P_n$  et par émission de rayonnements gamma  $P_\gamma$  lorsque que l'on se place sous le seuil de fission.

$$P_n = \sum_{J,\pi} \left[ \frac{\left\{ \sum_{E' J' p'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E^* - E'_i) \cdot \delta(\pi, \pi', (-1)^l) \right.}{\left. \sum_{E' J' p'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E^* - E'_i) \cdot \delta(\pi, \pi', (-1)^l) \right.} + \int_{E_d}^{E^* - B_n} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E_n) \cdot \delta(\pi, \pi', (-1)^l) \rho(J_f, \pi_f, E_f) dE_f \right] + \left\{ C \cdot \sum_{J-1}^{J+1} \int_0^{E^*} \rho(E', -\pi, J_f) (E^* - E')^3 \cdot dE' \right\} \quad (4.14)$$

et de la même manière

$$P_\gamma = \sum_{J,\pi} \left[ \frac{\left\{ C \cdot \sum_{J-1}^{J+1} \int_0^{E^*} \rho(E', -\pi, J_f) (E^* - E')^3 \cdot dE' \right\}}{\left\{ \sum_{E' J' p'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E^* - E'_i) \cdot \delta(\pi, \pi', (-1)^l) \right.} + \int_{E_d}^{E^* - B_n} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{l=|j-1/2|}^{j+1/2} T_1^j(E_n) \cdot \delta(\pi, \pi', (-1)^l) \rho(J_f, \pi_f, E_f) dE_f \right] + \left\{ C \cdot \sum_{J-1}^{J+1} \int_0^{E^*} \rho(E', -\pi, J_f) (E^* - E')^3 \cdot dE' \right\} \quad (4.15)$$



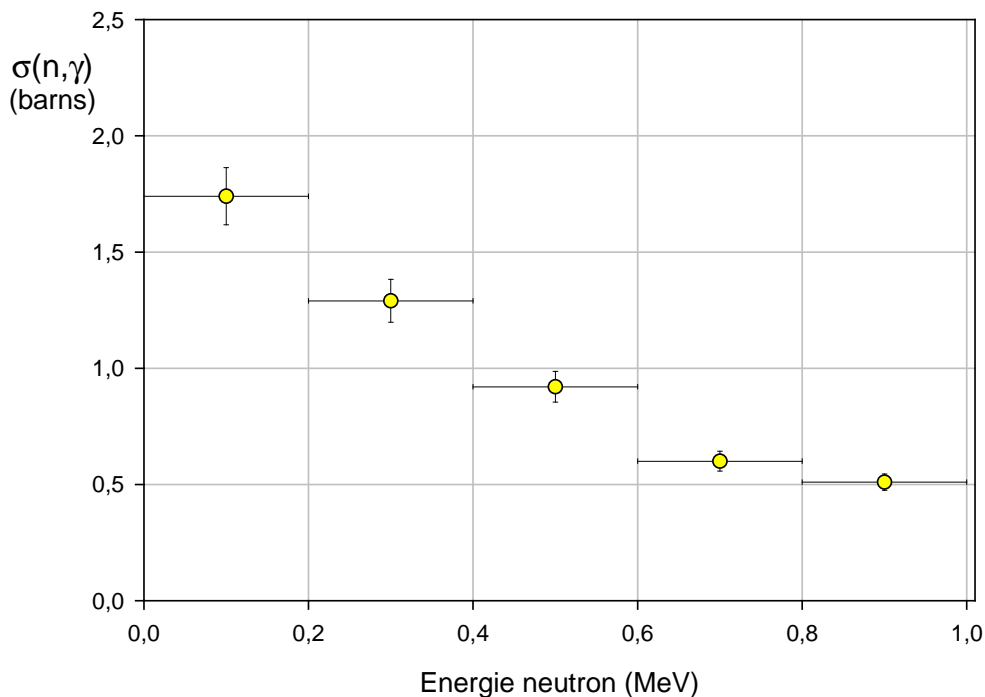
## 4.4 Présentation des sections efficaces expérimentales de capture radiative

Nous avons désormais toutes les données pour déterminer les sections efficaces de capture radiative. Elles ont été obtenues pour chaque tranche d'énergie en multipliant la probabilité d'émission de rayonnements gamma expérimentale par la section efficace de formation du noyau composé (voir Fig. 4.1). Cette dernière quantité ayant été calculée dans le cadre d'un modèle théorique, nous avons préféré ne pas introduire d'erreur systématique due à  $\sigma_{NC}$  dans les sections efficaces de capture radiative reportées ci-dessous. Il faut cependant noter que, d'après les auteurs du calcul de  $\sigma_{NC}$ , l'erreur "théorique" estimée est de l'ordre de 5-10 %.

En raison de la faible plage en énergie séparant les seuils neutron et de fission dans le noyau de  $^{232}\text{Pa}$ , une seule valeur de la section efficace de capture radiative du noyau de  $^{231}\text{Pa}$  a pu être déterminée. Le résultat obtenu pour une énergie neutron de 110 keV est de :

$$\left\{ \sigma_{(n,\gamma)} \right\}_{^{231}\text{Pa}} = 2,00 \pm 0,14 \text{ barns} \quad (4.16)$$

Les résultats relatifs à la section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$  sont quant à eux portés sur la figure ci-dessous.



**Fig. 4.2:** Section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$  en fonction de l'énergie des neutrons dans l'intervalle d'énergie 0 – 1 MeV.

## 4.5 Comparaison avec les bases de données existantes et discussion

### 4.5.1 Les bases de données à notre disposition

Comme nous l'avons déjà mentionné dans le premier chapitre, aucune donnée expérimentale n'était connue à ce jour. C'est donc par rapport aux données évaluées (calculées) des deux principales bibliothèques de données nucléaires que nous allons nous positionner, à savoir ENDF-6.8 (US) et JENDL-3.2 (Jap.). Dans les deux cas les valeurs de section efficace de capture radiative répertoriées ne sont pas des résultats expérimentaux mais des valeurs, soit extrapolées à partir des données concernant certains noyaux voisins ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ;  $^{238}\text{U}$ ), c'est le cas de la base ENDF, soit des valeurs calculées à partir d'un modèle statistique (JENDL).

Concernant le noyau de  $^{233}\text{Pa}$ , dans la gamme d'énergie 0,01-0,08 MeV les données évaluées ont été lissées par rapport aux données expérimentales disponibles sur le noyau de  $^{238}\text{U}$  entre 0,08 et 15 MeV (Stehn et al. [STE65]). Le lissage a été réalisé suivant la relation  $\sigma_{^{233}\text{Pa}} = 2 \times \sigma_{^{238}\text{U}}$ . Le facteur de normalisation (2) a été choisi de telle sorte que  $\sigma_{^{233}\text{Pa}} = \sigma_{^{236}\text{U}}$  à 0,9 MeV toujours d'après Stehn et al. [STE65]. Le noyau de  $^{231}\text{Pa}$  a fait quant à lui l'objet de calculs suivant un modèle statistique par F. M. Mann et R. E. Schenter [MAN77].

La base japonaise, bien plus récente, est quant à elle, exclusivement basée sur les résultats de calculs à partir d'un modèle statistique. Les calculs ont été réalisés avec le code CASTHY [IGA75] avec des paramètres d'entrée de normalisation faisant référence à la largeur radiative et à l'espacement des niveaux [HUS81].

Rappelons que nous avons également à notre disposition pour les noyaux  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{231}\text{Pa}$  un jeu de données non évaluées pour les sections efficaces  $\sigma_{(n,\gamma)}$  et  $\sigma_{(n,n')}$ , calculées dans le cadre d'un modèle statistique tenant compte de nos résultats antérieurs sur les sections efficaces de fission. Ces données sont disponibles dans l'intervalle 0-5,5 MeV d'énergie neutron pour le noyau de  $^{233}\text{Pa}$  [PET04] [PET02] et dans l'intervalle 0,25-5,5 MeV pour le noyau de  $^{231}\text{Pa}$  [PET02]. La différence majeure par rapport aux calculs de modèle statistique effectués par la base de données japonaise réside dans le traitement des densités de niveaux. Dans ce dernier cas, les expressions de Gilbert et Cameron [GIL65] ont été utilisées alors que Petit et al. [PET04] ont utilisé l'approche de Ignatuk [IGN75] qui semble mieux à même de reproduire les densités de niveaux déterminées expérimentalement pour plusieurs noyaux composés allant du Thorium au Curium.

Il existe des différences importantes quant aux résultats obtenus avec JENDL ou avec ENDF pour la section efficace  $\sigma_{(n,\gamma)}$ . Une approche statistique différente au niveau des paramètres d'entrée des modèles, peut probablement expliquer les désaccords existants entre

les jeux de données. Les deux figures qui suivent présentent ces bibliothèques dans la gamme d'énergie qui nous intéresse.

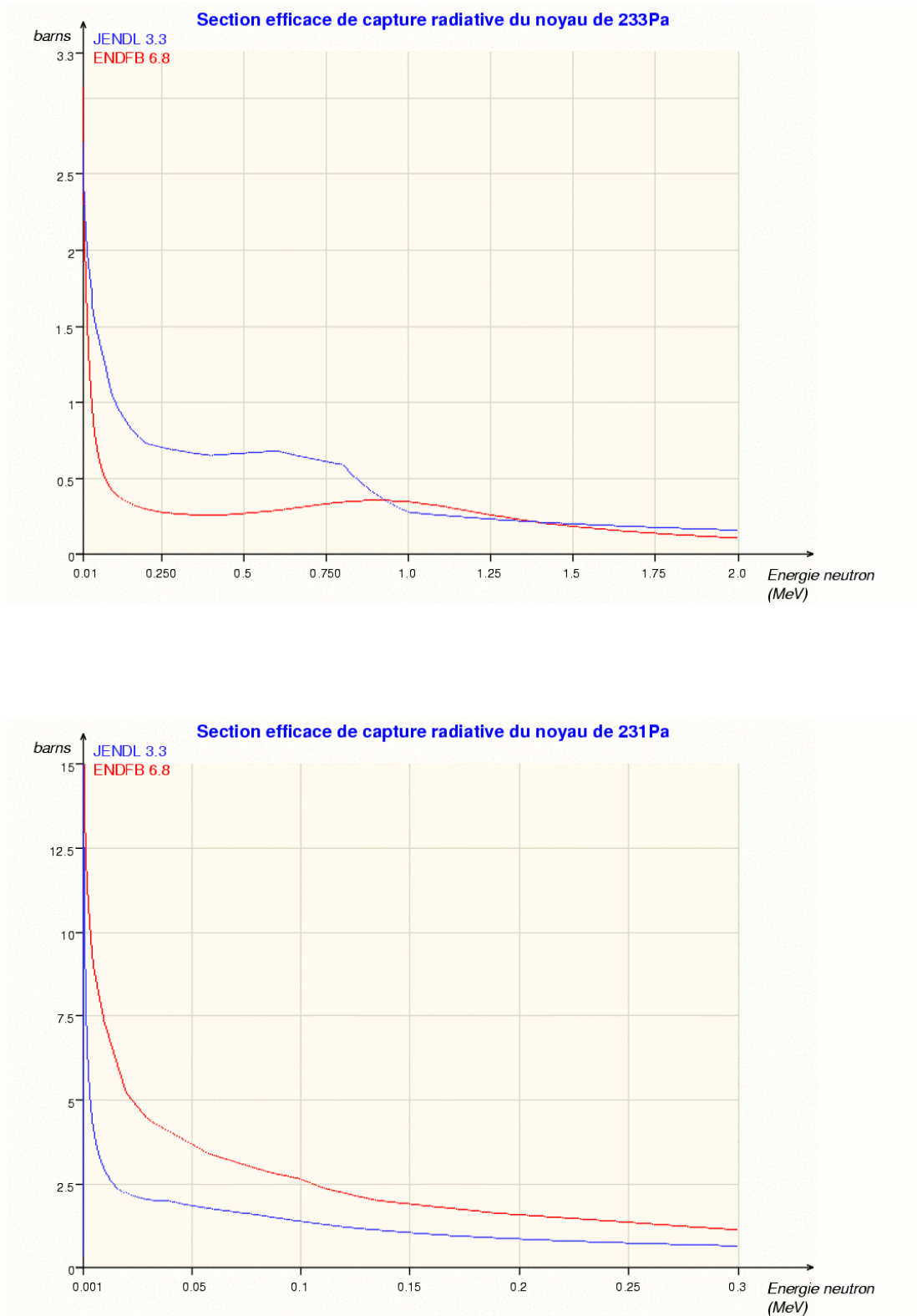
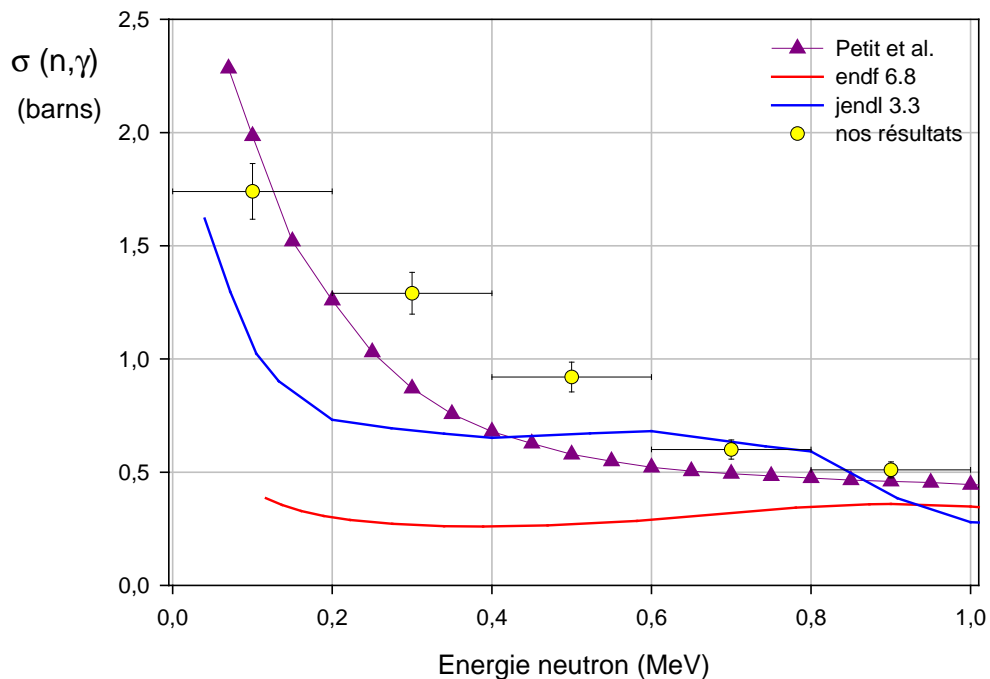


Fig. 4.3: Sections efficaces de capture radiative des noyaux de  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{231}\text{Pa}$  [JAN03].

### 4.5.2 Comparaison et discussion

Cette comparaison s'effectuera principalement avec les résultats obtenus sur le noyau de  $^{233}\text{Pa}$ . Sur la figure (4.4) sont représentés sur une même plage en énergie, les résultats des bases de données américaine et japonaise, les prédictions de Petit et al. [PET04] et nos résultats expérimentaux.



**Fig. 4.4:** Comparaison entre nos résultats et les données existantes pour la section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$  en fonction de l'énergie des neutrons.

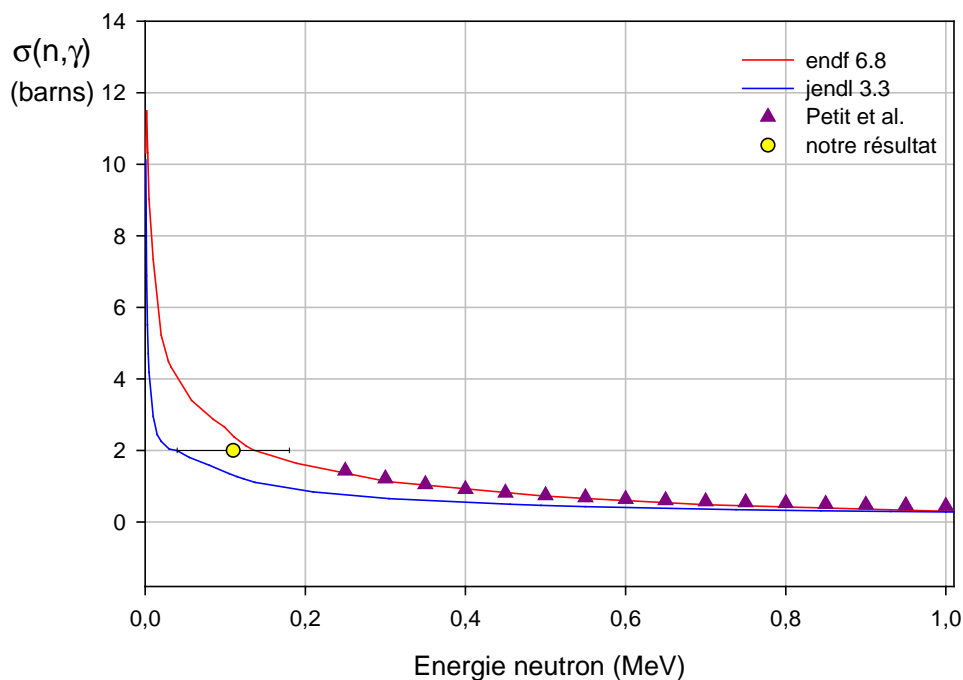
Rappelons que la section efficace de création du noyau composé est relativement constante dans l'intervalle 0,1-1 MeV. Ainsi l'allure générale de nos résultats expérimentaux est principalement déterminée par le comportement des probabilités de désexcitation gamma dans cette plage en énergie.

Nos valeurs de section efficace sont clairement en désaccord avec les données ENDF sur la majorité de l'intervalle (0,1-1 MeV). Les résultats expérimentaux sont en tous points supérieurs aux données évaluées, la plus grande différence se situant pour les basses énergies de neutron. Ceci peut paraître logique dans le sens où cette base est en définitive, construite sur l'hypothèse d'un comportement identique entre le noyau de  $^{233}\text{Pa}$  et ses proches voisins comme nous l'avons dit précédemment. Nous montrons donc ici les limites de cette hypothèse dans le cas qui nous intéresse.

Si l'on effectue maintenant une comparaison avec les deux modèles statistiques, l'accord est préférentiellement en faveur des calculs de Petit et al. [PET04] dans une gamme comprise

entre 0 et 0,4 MeV. Les paramètres d'entrée qui contraignent la courbe dans cette région semblent plus à même de décrire nos résultats expérimentaux par rapport à ceux de la base japonaise. En revanche à partir d'une énergie neutron de l'ordre de 0,5 MeV, nos résultats ne permettent pas réellement de trancher quant à une discussion sur la validité de tel ou tel modèle statistique dans cette gamme. Néanmoins il apparaît clairement qu'une mesure expérimentale de la section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$  dans la gamme d'énergie neutron comprise entre 0 et 1 MeV était nécessaire. Celle-ci a permis d'exclure l'évaluation proposée par la bibliothèque nord américaine ENDF 6.8. On peut penser que des mesures avec une résolution en énergie plus fine et une statistique plus importante permettraient de contraindre avec plus de précision les paramètres du modèle statistique qui décrit le mieux les mécanismes de désexcitation au sein du noyau.

Maintenant concernant le noyau de  $^{231}\text{Pa}$ , notre unique point de mesure (110 keV neutron) a tendance à valider la base ENDF tout comme les calculs à partir de nos points expérimentaux de la fission. Mais les deux bases, nord américaine et japonaise prédisent des comportements d'aspect similaire. Celles-ci sont évaluées toutes les deux à partir de calculs réalisés avec modèles statistiques que seuls les paramètres d'entrée semblent différencier.



**Fig 4.5:** Comparaison entre les bases de données évaluées pour la section efficace de capture radiative du noyau de  $^{231}\text{Pa}$  et notre résultat situé à une énergie neutron de 110 keV. Les calculs réalisés par Bruyères Le Châtel avec les résultats de Petit et al. sont également portés sur la figure.

# Conclusion.

Le but de ce travail était de déterminer expérimentalement la section efficace de capture radiative  $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$  dans la gamme d'énergie de neutron comprise entre 0 et 1 MeV. Cette mesure s'est effectuée dans le cadre de l'étude du nouveau cycle de combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  où le noyau fertile est le  $^{232}\text{Th}$  et le noyau fissile le  $^{233}\text{U}$ . Le noyau de  $^{233}\text{Pa}$  joue un rôle particulier dans cette filière en raison de sa durée de vie relativement longue (27 jours) à l'échelle du fonctionnement d'un réacteur. Il est également le maillon essentiel dans la production de l'isotope fissile  $^{233}\text{U}$  dont la fission est source d'énergie à caractère électrique. Pourtant les données disponibles sur ce noyau étaient insuffisantes pour effectuer des simulations réalistes de cette filière. Si on compare les deux principales bases de données évaluées, la base japonaise JENDL 3.3 et la base nord américaine ENDF 6.8, des disparités allant jusqu'à un facteur quatre sont constatées. La particularité de ces évaluations c'est qu'elles ne sont pas générées à partir de données expérimentales sur le noyau de  $^{233}\text{Pa}$ . Une série de mesures était donc nécessaire afin de trancher entre telle ou telle base de donnée pour éventuellement contraindre les modèles en vigueur. Notre groupe a dans un premier temps étudié la voie fission [PET04] puis dans ce mémoire la capture radiative.

Ce travail a débuté par une étude qui concernait en tout premier lieu la compréhension du comportement d'un détecteur scintillateur à base de benzène deutéré plus communément appelé  $\text{C}_6\text{D}_6$ . Ce type de détecteur était le parfait candidat pour les comptages de cascades de rayonnements gamma en environnement neutronique que nous voulions réaliser dans le but de déterminer la section efficace de capture radiative du noyau de  $^{233}\text{Pa}$ . Cette étude préliminaire a été effectuée auprès de l'accélérateur du CENBG. Elle nous a permis de développer une méthodologie originale faisant intervenir la notion de pondération des spectres issus du scintillateur par des fonctions calculées dites "fonctions de poids". Cette méthode, principalement basée sur la détermination de l'efficacité du scintillateur et de ses fonctions de réponse dans sa géométrie expérimentale sur une large plage en énergie de rayonnements gamma, est couplée à des simulations de transport de particules à l'aide du code MCNP sur cette même plage afin de valider le dispositif. Au final l'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie du photon incident est artificiellement rendue linéaire par l'utilisation des fonctions de poids, dans le but d'obtenir un comptage des cascades indépendant du chemin emprunté. Les différentes mesures nécessaires à la détermination de l'efficacité expérimentale sont réalisées à l'aide de réactions de référence (capture, diffusion, réactions de transfert) et de sources scellées calibrées.

Après avoir mis au point cette méthode nous permettant d'extraire le nombre de cascades de désexcitation gamma émises par un noyau excité à plusieurs MeV, nous l'avons appliquée à un dispositif plus complexe qui concernait la détermination de la section efficace de capture radiative du noyau  $^{233}\text{Pa}$ . En raison de sa trop forte activité ( $\sim\text{GBq}$ ), une mesure en voie dite directe par capture de neutron  $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)^{234}\text{Pa}^*$  est quasiment impossible. A ce stade l'originalité de notre démarche a été de se tourner vers la réaction de transfert  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$  pour produire le noyau excité  $^{234}\text{Pa}$ . Cette procédure proposée initialement par Cramer et Britt [CRA70] a déjà été utilisée avec succès par notre groupe de recherche lors de l'étude de la fission du  $^{234}\text{Pa}$ . L'expérience proprement dite s'est déroulée auprès de l'accélérateur tandem de l'IPN d'Orsay en 2003. Elle a nécessité le concours de plusieurs types de détecteurs (quatre scintillateurs  $\text{C}_6\text{D}_6$ , quatre montages télescopes  $\Delta E/E$ ) et d'une électronique associée permettant des mesures en coïncidence et de discriminer les éventuels neutrons des rayonnements gamma. La détermination de fonctions de poids du dispositif de détection de rayonnements gamma dans la géométrie choisie a été une partie importante tant au niveau de l'expérience que de l'analyse des données. Les simulations effectuées au niveau de la détermination des efficacités et des fonctions de réponses des scintillateurs ont été en très bon accord avec les résultats expérimentaux et ont notamment validé les choix technologiques lors de l'élaboration du dispositif de mesure. Afin d'avoir une statistique raisonnable, la région en énergie d'excitation qui nous intéressait ( $E^* = 5,2 \text{ MeV}-6,2 \text{ MeV}$  ce qui correspond à une plage de 0-1 MeV d'énergie neutron dans la réaction induite par neutron) a été découpée en cinq tranches de 200 keV de large. L'utilisation de la réaction de transfert a également permis de prolonger ce découpage sous le seuil d'émission de neutron. L'analyse de cette région a constitué une validation de notre méthode expérimentale avec la détermination d'une probabilité de décroissance gamma proche de l'unité, ce qui doit être le cas puisque seule la désexcitation par émission gamma est possible.

Les résultats bruts obtenus ayant trait aux probabilités expérimentales d'émission de rayonnements gamma pour le noyau de  $^{233}\text{Pa}$  dans la région 0–1 MeV, ont été corrigés vis à vis de la compétition entre capture radiative et diffusion inélastique de neutron. Une étude des sources d'erreurs mises en jeu a permis d'estimer une erreur de l'ordre de 10 % sur la validité de nos mesures. Par la suite, le produit entre les probabilités d'émission gamma et la section efficace de formation du noyau composé (calculée en collaboration avec le groupe théorique du laboratoire de Bruyères Le Châtel) a autorisé la détermination de la section efficace de capture radiative  $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$  dans la gamme d'énergie citée plus haut. Nos résultats expérimentaux comparés aux données évaluées (bases ENDF 6.8 (US.) et JENDL 3.3 (jap.)) et aux résultats récents obtenus à partir d'un calcul de modèle statistique traitant les densités de niveaux de façon plus réaliste sont en bon accord avec les prédictions de ce dernier modèle.







# Annexe.

## *Efficacités expérimentales des scintillateurs*

La moyenne des efficacités expérimentales des quatre scintillateurs et les résultats des simulations réalisées avec le code MCNP sont également présentés.

<b><i>E<sub>γ</sub> (keV)</i></b>	<b><i>C<sub>6</sub>D<sub>61</sub></i></b>	<b><i>C<sub>6</sub>D<sub>62</sub></i></b>	<b><i>C<sub>6</sub>D<sub>63</sub></i></b>	<b><i>C<sub>6</sub>D<sub>64</sub></i></b>	<b><i>Moy. Exp.</i></b>	<b><i>MCNP 4C2</i></b>
121	0,0135	0,0101	0,0088	0,0044	0,0092	0,0133
244	0,0280	0,0251	0,0247	0,0212	0,0247	0,0270
344	0,0296	0,0264	0,0279	0,0257	0,0274	0,0305
514	0,0294	0,0284	0,0292	0,0269	0,0285	0,0295
661	0,0265	0,0256	0,0265	0,0245	0,0258	0,0266
834	0,0273	0,0267	0,0273	0,0260	0,0268	0,0254
898	0,0254	0,0243	0,0250	0,0236	0,0246	0,0248
1173	0,0229	0,0213	0,0218	0,0220	0,0220	0,0225
1333	0,0224	0,0205	0,0216	0,0216	0,0215	0,0215
1836	0,0200	0,0190	0,0198	0,0189	0,0194	0,0193
2313	0,0201	0,0188	0,0201	0,0187	0,0194	0,0178
3089	0,0147	0,0139	0,0156	0,0137	0,0145	0,0165
4440	0,0135	0,0139	0,0144	0,0134	0,0138	0,0153
5270	0,0149	0,0161	0,0167	0,0145	0,0155	0,0150
7000	0,0150	0,0161	0,0162	0,0154	0,0157	0,0145



# Bibliographie.

- [AND77] H. H. Anderson and J. F. Ziegler, *HYDROGEN Stopping Powers and Ranges in All Elements* **Vol. III** (1977).
- [AUD93] G. Audi and A.H. Wapstra, *Nucl. Phys.* **A565**, 1 (1993) Private communication to Richard B. Firestone, *Table of Isotopes 8<sup>th</sup> Edition* (1996).
- [BAR04] B. Barré, Ecole Energie & Recherche 2004 (<http://eer.in2p3.fr>), *Nucléaire: Situation actuelle & perspectives*.
- [BAR04b] B. Barré, Tout sur l'énergie nucléaire d'Atome à Zirconium 2004 *CD-Rom* ([www.areva.com](http://www.areva.com)),.
- [BAU04] P-R. Bauquis, Ecole Energie & Recherche 2004 (<http://eer.in2p3.fr>), *Scénarios énergétiques mondiaux, potentialités de l'hydrogène*.
- [BAU02] G. S. Bauer et al, *MEGAPIE A 1 MW Pilot Experiment for a Liquid Metal Spallation Target*, <http://megapie.web.psi.ch/documents/megapie.pdf>.
- [BLA52] J. M. Blatt and V. F. Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics*, (1952) 588
- [BQS02] P-R. Bauquis, *Un point de vue sur les besoins et les approvisionnements en énergie à l'horizon 2050*, **Versioin 2002**, Première publication: Revue de l'Energie numéro spécial 50<sup>e</sup> anniversaire N° 509 Septembre 1999.
- [BIL04] A. Billebaud et al, *Reactivity Measurements and Neutron Spectroscopy in MUSE-4 Experiment*, PHYSOR 2004, The Physics of Fuel Cycles and Advanced Nuclear Systems, Chicago Illinois April (2004).
- [BOH36] N. Bohr, *Neutron capture and nuclear constitution*, Nature 137 (1936) 344
- [BOU04] B. Boulis, Ecole Energie & Recherche 2004 (<http://eer.in2p3.fr>), *Gestion des déchets radioactifs : état des recherches*.
- [BRI00] J F. Briesmeister, Editor, *MCNP<sup>TM</sup> A General Monte Carlo N-Particle Transport Code* **Versioin 4C** (2000).

- [CAR03] B. Carlucci, *European project PDS-XADS*, International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, Cordoba, Spain, May (2003)
- [CHA97] G. Charpak, R. L. Garwin, *Feux follets et champignons nucléaires*, ed. O. Jacob (1997).
- [CEA86] Commissariat à l'énergie atomique, série synthèses, *Les déchets nucléaires*, ed. Eyrolles (1986).
- [CEA80] Commissariat à l'énergie atomique, série synthèses, *Pourquoi l'énergie nucléaire*, ed. Eyrolles (1980).
- [CEA02] Commissariat à l'énergie atomique, La collection : Du noyau atomique à l'énergie chap .5, *L'énergie nucléaire : fusion et fission*, DCAP (2002).
- [COR88] F. Corvi, et al., *Nucl. Instr. and Meth. A* **265** (1988) 475 .
- [COR91] F. Corvi, et al., *Nucl. Sci. Eng.* **107** (1991) 272 .
- [CRA70] J.D Cramer et H.C. Britt, *Nucl. Sci. and Eng.* **41** (1970) 177 .
- [DAV03] S. David, *Le Thorium une solution pour un déploiement rapide du nucléaire*, séminaire CENBG 2003
- [DUF04] J-L. Dufresne, Ecole Energie & Recherche 2004 (<http://eer.in2p3.fr>), *L'effet de serre*.
- [EDF83] Groupe de travail CEA-EDF "Coeur". *Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier "cœur"*, rapport interne EF HT/12/75/83 (1983).
- [ELM94] Y. El Masri, Th. Keutgen, I. Tilquin, *Ecole Joliot-Curie de Physique Nucléaire* (1994) 124 .
- [EUR97] Eurisys Mesures, *Notice technique, Détecteurs Silicium* (1997) 7 .
- [FIR99] Richard B. Firestone, *Table of Isotopes eighth Edition Vol. I* (1999).
- [GAI01] E. Gailliez et F. Barbry, *Les recherches de l' Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire en criticité*, Novembre (2001).
- [GEN04] What is Gen IV ? : <http://gen-iv.ne.doe.gov/>
- [GF300] GF3: <http://radware.phy.ornl.gov/> .
- [GIL65] A. Gilbert et A. G. W. Cameron, *Canadian Journal of Physics*, **Vol. 43** (1965) 1446.
- [HUS81] Hussein, Z. et al, *Nucl. Sci. and Eng.* **78** (1981) 370 .
- [IEA03] International Energy Agency, *key world energy statistics*, <http://www.iea.org> (2003).

- 
- [IGA75] S. Igarasi, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 12, 67 (1975).
- [IGN75] A. V. Ignatyuk, G. N. Smirenkin et A. S. Tishin, *Yad. Fiz.* **21** (1975) 485.  
*Sov. J. Nucl. Phys* **21** (1975) 255.
- [JAN03] J. .M. Jancovici, *Changements climatiques et quelques babioles annexe*  
<http://www.manicore.com>
- [JAN04] Janis: *Java-based nuclear information software*, **Version 2.0** (2004)  
Contact Dr. Ali Nouri, E-mail: [nouri@nea.fr](mailto:nouri@nea.fr) .
- [KNO79] G. F. Knoll, *Radiation detection and measurement* (1979) 646.
- [LEO87] W R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments* (1987)  
55.
- [MAN77] F. M. Mann and R. E. Schenter, *HEDL –TME-*, 77-54 (1977) Hanford.
- [MUL03] A. C. Muller, *Incinération de déchets nucléaires dans un ADS\* : le cahier des charges de l'accélérateur et le programme R&D associé*,  
séminaire CENBG Nov. 2003.
- [NEL65] J. A. Nelder and R. Mead, *Computer Journal* **Vol 7** pp 308-313 (1965).
- [NUT02] A. Nuttin, *Thèse de doctorat Université Joseph Fourier Grenoble 1* (2002).
- [PET02] M. Petit, *Thèse de doctorat Université Bordeaux 1* (2002).
- [PET04] M. Petit et al., *Nucl. Phys.* **A 735** (2004) 345-371 .
- [PRE02] W.H. Press, et al, *Numerical Recipes in C++: the Art of Scientific Computing*,  
*2<sup>nd</sup> Edition*, Cambridge University Press, Cambridge, (2002).
- [PRE62] M. A. Preston, *Physics of the nucleus* (1962) 510
- [RAD95] D.C. Radford, *Nucl. Instr. and Meth.* **A 361** (1995) 297-305 .
- [RUB95] C. Rubbia et al, *Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier*. Report CERN/AT/95-44 (ET), CERN, Geneva, September (1995).
- [ROO95] Root System home page, <http://root.cern.ch/> (1995).
- [SCH96] J.P. Schapira, *Les différents aspects du cycle actuel, de l'extraction de l'Uranium au stockage des déchets*, Ecole Joliot-Curie (1996).
- [STE65] Stehn et al, BNL-325, 2<sup>nd</sup> ED, Suppl 2 **Vol. III** (1965).
- [WIL03] J. N. Wilson, et al., *Nucl. Instr. and Meth.* **A 511** (2003) 388-399 .

- [ZIE77] J. F. Ziegler, *HELIUM Stopping powers and Ranges in All Elements* **Vol. IV** (1977)

# Légende des figures.

<b>Fig. 1.1:</b> Chaîne des noyaux formés par la filière Uranium.....	10
<b>Fig 1.2:</b> Décroissance dans le temps de l'activité des principaux radionucléides dans un combustible de réacteur à eau ordinaire irradié.[CEA86].....	13
<b>Fig. 1.3:</b> Taux de croissance de la population mondiale en % / an depuis 1700.[BAU04].....	17
<b>Fig 1.4:</b> Tendances dans les fluctuations de la température terrestre entre 1901 et 2000 [DUF04]. .....	19
<b>Fig. 1.5:</b> Anomalie de la température de la surface de la Terre observée et calculée à l'aide d'un modèle en prenant en compte uniquement les perturbations naturelles (éruptions volcaniques, activité solaire... ).....	20
<b>Fig 1.6:</b> Anomalie de la température de la surface de la Terre observée et calculée prenant en compte les même perturbations naturelles et l'accroissement observé de la quantité de gaz à effet de serre et des aérosols responsables des perturbations anthropiques (liées aux activités humaines) [DUF04].....	20
<b>Fig. 1.7:</b> Schéma d'un réacteur à neutrons rapides surgénérateur et du groupe turbo alternateur associé. On remarque la présence de deux circuits de Sodium afin de transférer la chaleur au générateur de vapeur. Pour fixer un ordre d'idée dans Superphénix 3000 t de Sodium circulaient dans le circuit primaire.[CEA80] .....	23
<b>Fig. 1.8:</b> Schéma du concept RHT à caloporteur gaz .....	24
<b>Fig. 1.9:</b> Vue en coupe du réacteur en version intégrée du projet MSBR. ....	27



<b>Fig. 1.10:</b> Chaîne des noyaux formés par la filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .....	28
<b>Fig. 1.11:</b> Filiation radioactive issue de la désintégration $\alpha$ du noyau de $^{232}\text{Th}$ .....	29
<b>Fig. 1.12:</b> Section efficace de capture radiative du noyau de $^{233}\text{Pa}$ évaluée pour les bases JENDL (Jap.) et ENDF (US) en fonction de l'énergie des neutrons comprise entre 10 keV et 1 MeV [JAN03].....	30
<b>Fig. 2.1:</b> Le $^{233}\text{Pa}$ : noyau charnière du cycle du Thorium .....	34
<b>Fig. 2.2:</b> Photo, composition et dimensions d'un $\text{C}_6\text{D}_6$ .....	36
<b>Fig. 2.3:</b> Schématisation des temps de relaxation dans un $\text{C}_6\text{D}_6$ pour un neutron et un rayonnement gamma d'énergies différentes mais de même temps de montée. ....	38
<b>Fig. 2.4:</b> Exemple de contours pour discriminer les neutrons des rayonnements gamma par méthode graphique en portant le signal énergie d'un PSD en fonction du signal énergie du $\text{C}_6\text{D}_6$ associé. ....	38
<b>Fig. 2.5:</b> Schémas simplifiés de décroissance pour les noyaux de $^{35}\text{Cl}$ et $^{28}\text{Si}$ .....	40
<b>Fig. 2.6:</b> Dispositif utilisé auprès du Van de Graaff.....	41
<b>Fig. 2.7:</b> Efficacité mesurée en fonction de l'énergie des photons incidents. ....	42
<b>Fig. 2.8:</b> Fonctions de réponse expérimentales du détecteur $\text{C}_6\text{D}_6$ utilisé.....	43
<b>Fig. 2.9:</b> Illustration des différentes contributions à l'efficacité et à la forme de la fonction de réponse pour un photon d'énergie 4386 keV créé au point cible. ....	45
<b>Fig. 2.10:</b> Comparaison des efficacités expérimentales et simulées normalisées pour $E_\gamma = 661$ keV. ....	46
<b>Fig. 2.11:</b> Comparaison entre fonctions de réponses simulées (trait continu) et expérimentales (histogramme) pour quatre énergies de photons. ....	48
<b>Fig. 2.12:</b> Exemples de cascades possibles pour une énergie d'excitation donnée ( $E_c$ ) dans le noyau composé $A+1$ .....	49

---

<b>Fig. 2.13:</b> Comparaison entre fonction de réponse simulée et interpolée d'un gamma de 3164 keV .....	52
<b>Fig. 2.14:</b> Représentation en deux dimensions de la matrice des fonctions de réponse obtenue.	53
<b>Fig. 2.15:</b> Représentation schématique du fonctionnement de la minimisation.....	55
<b>Fig. 2.16 :</b> Graphe montrant la fonction de poids déterminée à partir de la matrice de réponse et l'efficacité du détecteur après pondération. La dernière fenêtre montre la déviation de la nouvelle efficacité par rapport à la linéarité.....	56
<b>Fig. 2.17 :</b> Résultat de la simulation des cascades.....	57
<b>Fig. 2.18:</b> Multiplication par la fonction de poids .....	59
<b>Fig. 2.19:</b> Comportement de la méthode en fonction de l'efficacité moyenne de détection .....	60
<b>Fig. 2.20:</b> Comparaison de la réponse suite à un comptage multiple ( $E_\gamma = 2 \times 750$ keV) et d'une détection simple ( $E_\gamma = 1500$ keV).....	61
<b>Fig. 2.21:</b> Principe schématique des réactions de transfert.....	63
<b>Fig. 2.22 :</b> Les données cinématiques d'une réaction de transfert.....	66
<b>Fig. 2.23:</b> Boîtier et détecteur en coupe [EUR97] .....	67
<b>Fig. 2.24:</b> Exemple de représentation $\Delta E$ - $E$ réalisée sur une partie de la statistique pour la réaction $^{232}\text{Th} + ^3\text{He}$ . L'identification des particules est visible sous forme de "bananes" distinctes.....	69
<b>Fig. 2.25 :</b> Schéma représentant un de nos montages télescopes.....	70
<b>Fig. 2.26:</b> Spectres $\Delta E$ réalisés en source $3\alpha$ sans collimateur dans une géométrie où le dispositif de détection de particules était complet (quatre montages $\Delta E/E$ ).....	71
<b>Fig. 2.27:</b> Coupe montrant une vue de dessus de la géométrie du dispositif de détection de rayonnements gamma formé de quatre scintillateurs $\text{C}_6\text{D}_6$ et de deux détecteurs Germanium. Dans un souci de clarté les scintillateurs ont été ramenés dans le plan de la page. Lors de	

l'expérience de mesure de section efficace (n,γ) les détecteurs Germanium sont dépolarisés et démontés..... 72

**Fig. 2.28:** Schéma simplifié du dispositif électronique et de traitement du signal utilisé pour GEMINI. La partie concernant les détecteurs Germanium n'est utilisée que lors de mesures en sources calibrées en vues de la détermination des fonctions de réponse et de mesures des efficacités aux énergies correspondantes des 4 C<sub>6</sub>D<sub>6</sub>..... 75

**Fig. 2.29:** Photo d'une des cibles de <sup>232</sup>Th après irradiation d'une dizaine d'heures. On notera l'impact du faisceau relativement bien centré et la forme originale du support de la feuille de <sup>232</sup>Th. .... 77

**Fig. 2.30:** Vision en perspective du dispositif de GEMINI utilisé dans le cadre des mesures de section efficace de capture radiative du noyau de <sup>233</sup>Pa. Dans ce dispositif les détecteurs Germanium ne sont pas en services. On remarquera également sur le dessin en coupe le caractère très compact de la géométrie proche du support de cible..... 78

**Fig. 2.31:** Photo du dispositif expérimental de GEMINI en configuration mesure de fonction de réponse et efficacité. On remarque l'utilisation en grande quantité d'aluminium (matériau léger) pour la chambre et le châssis supportant les scintillateurs ..... 79

**Fig. 3.1:** Représentation schématique des deux zones temporelles sur un spectre provenant d'un signal délivré par un TAC. La zone 1 représente les coïncidences fortuites et la zone 2 les coïncidences vraies. Il est à noter la présence d'un fond fortuit sous le pic..... 83

**Fig. 3.2:** Exemple de spectres TAC ΔE-C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> avant et après normalisation. Le spectre en rouge est le spectre pris comme référence ..... 84

**Fig. 3.3:** Exemple de représentation graphique ΔE = f(E) pour les réactions <sup>208</sup>Pb(<sup>3</sup>He,X) à une énergie de 24 MeV pour un montage télescopes disposé à 120°. .... 86

**Fig. 3.4:** Etalonnage linéaire (Energie = a×Canaux + b) du montage télescope numéro 1 réalisé à l'aide de la réaction de référence <sup>207</sup>Pb(<sup>3</sup>He,d)<sup>209</sup>Bi\*. Les trois autres montages ont été calibrés de manière similaire à l'aide de contours graphiques sur les états excités du <sup>209</sup>Bi..... 87

**Fig. 3.5:** Courbes des efficacités expérimentales en fonction de l'énergie des rayonnements gamma incidents pour les 4 détecteurs C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> du dispositif de GEMINI ..... 89

---

<b>Fig. 3.6:</b> Fonction de réponse d'un rayonnement gamma de 6129 keV obtenue par la réaction $^{19}\text{F}(p,\alpha)^{16}\text{O}^*$ . La statistique des 4 scintillateurs a été sommée puis comprimée par un facteur 10 pour les besoins de la figure. Cette figure montre la contribution de la détection des électrons de conversion interne sur la forme générale de la fonction de réponse.....	90
<b>Fig. 3.7:</b> Fonctions de réponse expérimentales obtenues avec le dispositif GEMINI. Les réponses des quatre scintillateurs sont ici sommées et normalisées. ....	91
<b>Fig. 3.8:</b> Comparaison entre une régression linéaire et quadratique dans le cadre de l'étalonnage des quatre scintillateurs. Les erreurs sur la détermination des canaux ne sont pas apparentes car elles sont plus petites que les dimensions des points .....	92
<b>Fig. 3.9:</b> Section suivant un axe perpendiculaire à l'axe du faisceau représentant une partie de la géométrie entrée dans le code MCNP. Les déformations des $\text{C}_6\text{D}_6$ sont dues à l'intersection entre le plan et la géométrie. N'apparaissent pas sur la figure les montages télescopes sur leur couronne et la plaque supportrice des quatre scintillateurs.....	96
<b>Fig. 3.10:</b> Fonction de réponse simulée brute (en rouge) et lissée (en bleu) d'un rayonnement gamma de 4440 keV. On remarque que lors des simulation le front Compton est clairement définit tandis qu'une fois lissée pour tenir compte de la résolution de la photocathode la fonction de réponse simulée est plus en rapport avec la forme de la fonction de réponse expérimentale considérée. ....	97
<b>Fig. 3.11:</b> Comparaison entre les efficacités moyennes expérimentales et les résultats des simulations pour des énergies gamma entre 121 keV et 7000 keV. Les énergies inférieures à 514 keV ont été ajustées post-simulation à partir du comportement expérimental commun aux 4 scintillateurs .....	98
<b>Fig. 3.12:</b> Comparaisons entre fonctions de réponses expérimentales (rouges) et simulées (bleues) pour des énergies gamma incidentes allant de 514 keV à 7000 keV .....	98
<b>Fig. 3.13:</b> Représentation en deux dimensions de la matrice continue calculée pour l'expérience GEMINI, $E_i$ est l'énergie gamma du photon initialement émis et $E_d$ est l'énergie déposée dans le détecteur. L'intervalle en énergie a été limité à 7 MeV sur les deux axes .....	100
<b>Fig. 3.14:</b> Comparaison entre l'ajustement des efficacités moyennes et la projection de la matrice des fonctions de réponse suivant l'axe des énergies gamma. Ceci valide la construction de la matrice de réponse .....	101

- Fig. 3.15:** Représentations 3D de la matrice de réponse sous différents angles. La Figure de gauche est réalisé à angle nul, et celle de droite pour un angle de 180°. L'axe des X représente les énergies détectées, l'axe Y les énergies des rayonnements gamma incidents et l'axe des Z les coefficients de la matrice saturés à une valeur de 300 pour les besoins de la figure..... 101
- Fig. 3.16:** Exemple de comparaison entre l'efficacité linéaire désirée et la projection de la matrice des fonctions de réponse sur l'axe des énergies gamma après pondération (nouvelle efficacité pour une énergie d'excitation de 6 MeV) ..... 102
- Fig. 3.17:** Illustration de l'effet d'une fonction de poids sur la matrice des fonctions de réponse pour une énergie d'excitation prise à 6 MeV ..... 103
- Fig. 3.18 :** Illustration schématique du découpage de la plage en énergie étudiée. Exemple pris sur l'analyse de la voie proton. .... 105
- Fig. 3.19:** Exemple de découpage en énergie réalisé lors de l'analyse de la voie proton sur une représentation  $\Delta E$ -E. Les découpages apparaissent en traits continus noirs et les seuils fission et neutron du noyau de  $^{234}\text{Pa}$  ont été placés en traits continus rouges ..... 106
- Fig. 3.20:** Exemple de soustraction entre la projection sur l'axe E des protons issus de la cible de Thorium et ceux du fond provenant d'une cible de Carbone de même épaisseur que le support en Carbone utilisé avec le Thorium. .... 108
- Fig. 3.21:** Taux de comptage proton dû au fond carbone ramené à l'énergie d'excitation dans le noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Les seuils d'émission de neutron (5,2 MeV) et de fission (6,2 MeV) sont représentés en pointillé long sur la figure. .... 108
- Fig. 3.22:** Illustration des fluctuations du fond "gamma" obtenu avec une cible de Carbone d'épaisseur identique au support en Carbone de la cible de Thorium. Dix tranches de 200 keV de large ont été portées en dessous et au-dessus du seuil d'émission de neutron du noyau de  $^{234}\text{Pa}$ . Le seuil d'émission neutron et le seuil de fission ont été reportés sur la figure ainsi que les bornes délimitant la région parasite provoquée par la présence de  $^{13}\text{C}$  dans la cible et le support ..... 110
- Fig. 3.23:** Exemple de fonctions de poids déterminées pour plusieurs énergies d'excitation dans le cadre de l'analyse du noyau de  $^{234}\text{Pa}$  (voir les plages en énergies sélectionnées plus haut). Les graphes représentent les poids calculés en fonction de l'énergie des rayonnements gamma incidents..... 111

---

<b>Fig. 3.24:</b> Exemple de pondération effectuée pour une énergie d'excitation de 5,6 MeV dans le noyau de $^{234}\text{Pa}$ . Le spectre de départ a une aire de 2108 coups tandis que le spectre pondéré a une aire réelle de 6874 coups. ....	112
<b>Fig. 3.25:</b> Probabilités expérimentales "brutes" en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de $^{234}\text{Pa}$ . Les seuils neutron et fission sont portés en trait continu.....	116
<b>Fig. 3.26:</b> Vue schématique de la compétition entre les réactions de capture radiative et l'émission de neutron.....	117
<b>Fig. 3.27:</b> Probabilités gamma expérimentales en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de $^{234}\text{Pa}$ , après correction des rayonnements gamma issus des réactions (n,n' $\gamma$ ). Les seuils neutron et fission sont portés en trait continu. ....	118
<b>Fig. 3.28:</b> Probabilités expérimentales en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de $^{232}\text{Pa}$ . Les seuils neutron et fission sont portés en trait continu. ....	119
<b>Fig. 4.1:</b> Variation de la section efficace calculée de formation du noyau composé de $^{234}\text{Pa}$ et de $^{232}\text{Pa}$ dans un intervalle d'énergie des neutrons compris entre 0 et 1 MeV. ....	125
<b>Fig. 4.2:</b> Section efficace de capture radiative du noyau de $^{233}\text{Pa}$ en fonction de l'énergie des neutrons dans l'intervalle d'énergie 0 – 1 MeV. ....	130
<b>Fig. 4.3:</b> Sections efficaces de capture radiative des noyaux de $^{233}\text{Pa}$ et $^{231}\text{Pa}$ [JAN03]. ....	132
<b>Fig. 4.4:</b> Comparaison entre nos résultats et les données existantes pour la section efficace de capture radiative du noyau de $^{233}\text{Pa}$ en fonction de l'énergie des neutrons.....	133
<b>Fig. 4.5:</b> Comparaison entre les bases de données évaluées pour la section efficace de capture radiative du noyau de $^{231}\text{Pa}$ et notre résultat situé à une énergie neutron de 110 keV. Les calculs réalisés par Bruyères Le Châtel avec les résultats de Petit et al. sont également portés sur la figure.....	134



# Liste des tableaux.

<b>Tab 1.1:</b> Bilan en masse au déchargement d'un tiers d'un REP (900 MWe) tous les ans après trois ans d'irradiation [SHA96]. Il est supposé un facteur de charge de 70 %, soit une production de 5,52 TWhé/an.....	10
<b>Tab 1.2:</b> Classification des déchets radioactifs et type de stockage utilisé ou à l'étude [BOU04]. Les déchets radifères sont des résidus issus des différents traitements chimiques. <b>TFA:</b> très faible activité, <b>FA:</b> faible activité, <b>MA:</b> moyenne activité, <b>HA:</b> haute activité <b>CSA:</b> Centre de Stockage de surface de l'Aube (ANDRA) .....	12
<b>Tab 1.3:</b> Evolution de la production annuelle totale mondiale des énergies primaires par sources d'énergie [IEA03] en Gtep ( $10^9$ tonnes équivalent pétrole) et en pourcentage. ....	15
<b>Tab 1.4:</b> Ressources énergétiques en Gtep, et en année d'exploitation au taux actuel de consommation [NUT02].....	16
<b>Tab 1.5:</b> Evolution de la production d'énergie primaire mondiale par régions du globe. Le cas de la Chine et des pays asiatiques (Japon, Coré etc..) sont mis en relief [IEA03].....	18
<b>Tab 2.1:</b> Correspondance pour une même réponse en lumière entre les énergies $T_p$ proton et $T_e$ électron dans un détecteur NE213 ( $C_6H_4(CH_3)_2$ ) [ELM94].....	37
<b>Tab 2.2 :</b> Cibles et énergies de résonance employées. ....	40
<b>Tab 2.3:</b> Efficacités mesurées du scintillateur C6D6 dans la géométrie montrée en figure (2.6), en fonction de l'énergie des photons émis au point source. <sup>a</sup> noyaux produits par réaction (p, $\gamma$ ) <sup>b</sup> efficacités corrigées des branches contaminantes et des pertes d'intensité .....	41



<b>Tab 2.4:</b> Réactions de transfert possibles à partir du couple $^{232}\text{Th} - ^3\text{He}$ .....	64
<b>Tab 2.5:</b> Résolution (%) des quatre détecteurs $\Delta E$ et $E$ en source $3\alpha$ . Les mesures ont été réalisées dans la géométrie du dispositif final de détection de particules et sans collimateur.....	70
<b>Tab 3.1:</b> Niveaux d'énergie des noyaux de $^{209}\text{Bi}$ et $^{207}\text{Pb}$ utilisés pour l'étalonnage des montages télescopes et chaleur des réactions de transfert correspondantes. ....	85
<b>Tab 3.2:</b> Tableau récapitulatif des énergies des rayonnements gamma utilisés lors des mesures des efficacités et fonctions de réponse des quatre détecteurs $\text{C}_6\text{D}_6$ de GEMINI.....	88
<b>Tab 3.3:</b> Tableau présentant les résultats obtenus pour le noyau de $^{234}\text{Pa}$ dans les tranches d'énergie d'excitation choisie.....	115
<b>Tab 3.4:</b> Tableau présentant les résultats obtenus pour le noyau de $^{232}\text{Pa}$ dans les tranches d'énergie d'excitation choisie.....	115
<b>Tab 3.5:</b> Proportions (%) évaluées des photons issus du processus de diffusion inélastique de neutron et comptés dans le dispositif de détection de rayonnements gamma en fonction de l'énergie des neutrons diffusés. ....	118



