COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

A.34

MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE CAPTURE RADIATIVE DE NEUTRONS PAR LA METHODE DU SPECTRE INTEGRE

par

Serge JOLY, Jean-Jacques VOIGNIER, Gérard GRENIER, Darrell DRAKE, Leif NILSSON

Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel

Rapport CEA-R-4884

PLAN DE CLASSIFICATION DES RAPPORTS ET BIBLIOGRAPHIES CEA

(Classification du système international de documentation nucléaire SIDON/INIS)

ΑI	II Physique théorique	C 30	Utilisation des traceurs dans les sciences de la vie
A 1	12 Physique atomique et moléculaire	C 40	Sciences de la vie : autres études
A 1	13 Physique de l'état condensé	C 50	Radioprotection et environnement
A 1	14 Physique des plasmas et réactions thermonucléaire	S	
A 1	15 Astrophysique, cosmologie et rayonnements cosmiq	ues D 10	Isotopes et sources de rayonnements
A 1	16 Conversion directe d'énergie	D 20	Applications des isotopes et des rayonnements
A 1	17 Physique des basses températures		
A 2	20 Physique des hautes énergies	E 11	Thermodynamique et mécaniq des fluides
A 30	Physique neutronique et physique nucléaire	E 12	Cryogénie
		E 13	Installations pilotes et laboratoires
B 1	I Analyse chimique et isotopique	E 14	Explosions nucléaires
B 13	2 Chimie minérale, chimie organique et physico-chimi	e E 15	Installations pour manipulation de matériaux
B 13	3 Radiochimie et chimie nucléaire		radioactifs
B 14	4 Chimie sous rayonnement	E 16	Accélérateurs
B 1:	5 Corrosion	E 17	Essais des matériaux
B 10	6 Traitement du combustible	E 20	Réacteurs nucléaires (en général)
B 2	21 Métaux et alliages (production et fabrication)	E 30	Réacteurs nucléaires (types)
B 2:	22 Métaux et alliages (structure et propriétés physique	es) E 40	Instrumentation
B 23	23 Céramiques et cermets	E 50	Effluents et déchets radioactifs
B 24	4 Matières plastiques et autres matériaux		
B 25		s F 10	Economie
	des matériaux	F 20	Législation nucléaire
B 3	O Sciences de la terre	F 30	Documentation nucléaire
		F 40	Sauvegarde et contrôle
C 10	O Action de l'irradiation externe en biologie	F 50	Méthodes mathématiques et codes de calcul
C 20	O Action des radioisotopes et leur cinétique	F 60	Divers

Rapport CEA-R-4884

Cote-matière de ce rapport : A,34

DESCRIPTION-MATIERE (mots clefs extraits du thesaurus SIDON/INIS)

en français - CAPTURE - SECTIONS EFFICACES TOTALES - DOMAINE 01 - 10 MeV - FLUX DE NEUTRONS - REACTIONS PAR NEUTRONS - SPECTROSCOPIE GAMMA - METHODE DU TEMPS DE VOL - CORRECTIONS - DECONVOLUTION DE SPECTRES - FONCTIONS DE REPONSE - CIBLE OR 197 - ISOTOPES D'IRIDIUM - CIBLE RHODIUM 103 - CIBLE THULIUM 169 - CIBLE TUNGSTENE 182 - CIBLE TUNGSTENE 183 - CIBLE TUNGSTENE 184 - CIBLE TUNGSTENE 186 - CIBLE THALLIUM 203 - CIBLE THALLIUM 205

en anglais - CAPTURE - TOTAL CROSS SECTIONS - MeV RANGE 01-10 - NEUTRON FLUX - NEUTRON REACTIONS - GAMMA SPECTROSCOPY - TIME-OF-FLIGHT METHOD - CORRECTIONS - SPECTRA UNFOLDING - RESPONSE FUNCTIONS - GOLD 197 TARGET - IRIDIUM ISOTOPES - RHODIUM 103 TARGET - THULIUM 169 TARGET - TUNGSTEN 182 TARGET - TUNGSTEN 183 TARGET - TUNGSTEN 184 TARGET - TUNGSTEN 186 TARGET - THALLIUM 203 TARGET - THALLIUM 205 TARGET -

CEA-R-4884 - JOLY Serge, VOIGNIER Jean-Jacques, GRENIER Gérard, DRAKE Darrell, NILSSON Leif

MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE CAPTURE RADIATIVE DE NEUTRONS PAR LA METHODE DU SPECTRE INTEGRE

Sommaire. La section efficace de capture est déterminée à partir du spectre des rayonnements y émis par l'échantillon. Le détecteur de rayonnements y est constitué d'un scintillateur NaI central associé à un cristal annulaire. Le spectromètre fonctionne simultanément en mode anti-Compton et en mode de paires. Les rayonnements y de capture sont discriminés des rayonnements parasites par la méthode du temps de vol. Le spectre d'amplitude obtenu est déconvolué par la fonction, de réponse du spectromètre puis corrigé de son efficacié. Le spectre y de capture est ensuite extrapolé en dessous du seuil de détection, ou de la partie du spectre contenant les rayonnements y de la réaction [nin'y], à partir d'un calcul théorique de la forme du spectre. La section efficace de capture radiative est déduite du spectre de capture, ainsi obtenu. La méthode est appliquée à la détermination de la section efficace de capture de l'or pour des neutrons de 0,5 à 3 MeV.

1977 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

72 p.

CEA-R-4884 - JOLY Serge, VOIGNIER Jean-Jacques, GRENIER Gérard, DRAKE Darrell, NILSSON Leif

RADIATIVE NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION MEASUREMENTS USING THE SPECTRUM METHOD

Summary. The capture cross section is determined through the y ray spectrum emitted by the sample. The y rays are detected with a central Nai scintillator surrounded by a NaI annulus. The spectrometer is used both in the anti-Compton and first escape modes at the same time. The time-of-flight technique is used to reduce the background. The pulse-height spectrum is unfolded and corrected for the spectrometer efficiency. A theoretical calculation is used to extrapolate the capture y-ray spectrum below the experimental threshold or in the region containing y-rays from the (n,n'y) reaction. The radiative capture cross section is then deduced from the capture spectrum. The method is applied to the capture cross section measurements of gold for 0.5 to 3.0 MeV neutrons.

1977

Commissariat à l'Energie Atomique - France

72.p.

- Rapport CEA-R-4884 -

Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel

MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE CAPTURE RADIATIVE DE NEUTRONS PAR LA METHODE DU SPECTRE INTEGRE

par

Serge JOLY, Jean-Jacques VOIGNIER, Gérard GRENIER, Darrell DRAKE*, Leif NILSSON**

^{*}Adresse permanente : Lus Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, USA

^{**} Adresse permanente : Tandem Accelerator Laboratory, Uppsala, SUEDE

TABLE DES MATIERES

I - INTRODUCTION - PRINCIPE DE LA METHODE -

II - CONDITIONS EXPERIMENTALES -

- 1 source de neutrons.
- 2 échantillons.
- 3 détection des rayonnements y.
- 4 dispositif expérimental.
- 5 électronique-acquisition des données.
- 6 moniteurs et mesure du flux.

III - TRAITEMENT DES DONNEES -

- 1 constitution des matrices.
- 2 correction de dérive.
- 3 traitement des spectres de rayonnements γ.

IV - MATRICE DE REPONSE DU SPECTROMETRE -

- 1 fonction de réponse d'une raie monoénergétique.
- 2 constitution des matrices de réponse,

V - EFFICACITE DU SPECTROMETRE -

- 1 mesures absolues avec sources calibrées.
- 2 mesures relatives avec réactions nucléaires.

VI - DECONVOLUTION DES SPECTRES D'AMPLITUDE -

- 1 principe de la déconvolution.
- 2 méthode des soustractions successives.
- 3 méthode itérative de Scofield.
- 4 méthode générale des moindres carrés.
- 5 comparaison entre les différentes méthodes.

VII -- CORRECTION DES RESULTATS -

- 1 absorption des neutrons dans l'échantillon et dans l'air.
- 2 diffusion multiple.
- 3 auto-absorption des neutrons dans l'échantillon.
- 4 anisotropie de la source de neutrons.
- 5 absorption des rayonnements y dans l'échantillon.

VIII - CALCUL DE LA FORME DU SPECTRE DE CAPTURE -

- 1 probabilité de transition électromagnétique.
- 2 distribution spectrale.
- 3 fonction d'intensité y.
- 4 densité de niveaux.
- 5 technique de calcul du spectre y total.
- 6 détermination de la fonction $f(E_{\chi})$.

IX - DETERMINATION DE LA SECTION EFFICACE DE CAPTURE -

- 1 détermination de la section efficace σ_{ny} .
- 2 calcul d'erreurs.
- 3 application à la réaction 197 Au (n,γ) .
- 4 comparaison avec les autres méthodes.

X - CONCLUSION -

I - INTRODUCTION - PRINCIPE DE LA METHODE

La connaissance des sections efficaces et des spectres de capture est importante à plus d'un titre. De point de vue des applications, ces grandeurs sont nécessaires pour les calculs de physique neutronique et de protection des réacteurs nucléaires, et plus récemment, pour les projets de réacteurs utilisant la fusion thermonucléaire contrôlée. Les sections efficaces sont également utilisées en astrophysique pour les calculs d'abondance isotopique des éléments formés par le processus "r", processus permettant la formation de noyaux plus lourds que le fer par réaction de capture de neutrons.

La mésure des sections efficaces pour différentes énergies de neutrons apporte également des renseignements sur le mécanisme de la réaction (n, y). Pour des énergies inférieures à 1 MeV et pour des noyaux lourds (A > 100), la réaction procède essentiellement par noyau composé. Pour des énergies plus élevées (de 5 à 15 MeV), le mécanisme de la réaction peut être interprété par un processus direct et semi-direct [1]. La région intermédiaire, pour laquelle les deux mécanismes semblent intervenir, est encore assez peu étudiée du fait des difficultés expérimentales.

A l'exception de quelques noyaux pour lesquels la méthode d'activation peut être employée, les mesures de sections efficaces sont limitées, en général, à des neutrons d'énergie inférieure à 600 keV. Cette limite correspond grossièrement au seuil de la réaction ⁷Li(p,n₁) ⁷Be. Quelle que soit la technique de mesure utilisée (gros scintillateur liquide ou détecteur de Maier-Leibnitz), les neutrons sont utilisés sous forme de spectre blanc et leur énergie est déterminée par temps de vol.

Il nous a semblé intéressant de développer une nouvelle méthode de mesure*permettant de mesurer les sections efficaces de capture pour des neutrons d'énergie E comprise entre 0,5 et 3,2 MeV. La borne inférieure a été choisie pour permettre des comparaisons avec les résultats antérieurs. Quant à la borne supérieure, elle nous est imposée avec la réaction T(p,n) utilisée par l'énergie maximale de 4,0 MeV donnée par l'accélérateur. Des énergies supérieures seraient possibles en utilisant d'autres réactions mais les mesures deviennent de plus en plus difficiles : faible section efficace de capture, difficulté de protéger le détecteur d'où un mauvais rapport signal/bruit. A ces difficultés s'ajoute une contrainte propre à notre méthode : la partie de spectre extrapolée par le calcul devient importante par rapport au spectre total.

*Cette méthode de mesure nous a été suggérée par A. MICHAUDON.

La méthode proposée consiste à déterminer le nombre de captures à partir du spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon et détectés dans un angle solide donné; la section efficace de capture est alors déterminée à partir du flux de neutrons ayant interagi avec les noyaux de l'échantillon en supposant que la distribution des rayonnements de capture est isotropique. Jusqu'à présent, cette méthode n'a été utilisée que pour la détermination de sections efficaces partielles [2].

Les rayonnements γ de capture sont discriminés des rayonnements γ parasites par la méthode du temps de vol. Le spectre d'amplitude obtenu est déconvolué par la ionction de réponse du spectromètre puis corrigé de son efficacité. Le spectre des rayonnements de capture est ensuite extrapolé entre l'énergie $E_{\gamma}=0$ et l'énergie $E_{\min} \stackrel{\sim}{n}$ à partir d'un calcul théorique de la forme du spectre. Fin effet, dans cette région la contribution des rayonnements γ des réactions $(n,n'\gamma)$ et $(n,\gamma n')$ est beaucoup plus importante que celle des rayonnements γ de capture.

La connaissance de la forme du spectre apporte également des informations sur la dépendance en énergie de la probabilité d'émission gamma. Cette fonction $f(E_{\gamma})$ est couramment utilisée dans les calculs statistiques en supposant des lois de variation simples (estimations de Weisskopf ou résonance dipolaire géante). Une fonction $f(E_{\gamma})$ peut donc être déduite de la forme du spectre de capture obtenue expérimentalement.

II - CONDITIONS EXPERIMENTALES - ·

1. Source de neutrons.

Les protons incidents sont délivrés par l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel. Le faisceau de protons est d'abord pulsé à une fréquence de 1 MHz puis comprimé à l'aide, d'un aimant du type Mobley. La largeur de la bouffée de protons varie de 1 à 1,5 ns suivant l'énergie des particules. Le courant moyen sur la cible est de 4 μ A.

Les neutrons sont produits par les réactions $^7\mathrm{Li}(p_{*},...,p_{*})$ une énergie de 500 keV et $\mathrm{T}(p_*n)$ pour les neutrons d'énergie supé . . .

La réaction ⁷Li(p,n) permet d'obtenir un flux neutronique très important car l'énergie E pour obtenir des neutrons de 500 keV correspond à la résonance à 2,25 MeV.Pour avoir le meilleur rendement possible nous

avons utilisé des cibles de lithium métallique évaporé sur un support de tantale. Afin d'éviter l'oxydation du lithium, un dispositif permettant de transporter et d'installer la cible sous vide a été conçu. L'épaisseur de la cible est déterminée en mesurant le rendement de la réaction au voisinage du seuil. Pour prévenir l'évaporation du lithium au point d'impact du faisceau, le support de cible est refroidi par un jet d'air comprimé.

Les cibles de fritium sont constituées de tritium adsorbé dans du titane sur un support d'or ou de tantale. Les flux neutroniques obtenus avec la réaction T(p,n) sont moins importants que ceux donnés par la réaction Li(p,n) mais cette dernière ne peut être utilisée pour obtenir des neutrons d'énergie supérieure à 600 keV à cause des neutrons parasites de la réaction $Li(p,n,n)^{7}$ de .

2. Echar.cillons.

Les échantillons ont la forme de disque de 6 cm de diamètre et d'épaisseur variable de 1 à 6 mm. L'épaisseur doit être assez importante pour avoir un taux de comptage γ raisonnable mais suffisamment faible pour minimiser les diffusions multiples. Les échantillons sont suspendus par une petite tige de plexiglass à une distance de 7,3 cm de la source de neutrons.

3. Détection des rayonnements y.

Les rayonnements γ sont détectés par un cristal NaI de 7,6 cm de diamètre et 15,2 cm de longueur couplé à un photomultiplicateur 56 AVP. La résolution en énergie du scintillateur est de 10% pour la raie de 662 keV du 137 Cs. Pour réduire le bruit de fond et simplifier sa fonction de réponse, le scintillateur est entouré d'un cristal NaI annulaire de 30, h cm de longueur, 27,9 cm de diamètre extérieur avec un trou central de 8,9 cm de diamètre. Le scintillateur annulaire est constitué de 6 secteurs séparés optiquement et associés à des photomultiplicateurs RCA 8054. Le haute tension appliquée à chacun des 6 photomultiplicateurs est ajustée pour obtenir le même gain sur chaque voie. La résolution en énergie de la couronne est de 30% pour la raie de 511 keV du 22 Na. Le cristal central est placé au centre de la couronne.

Le spectromètre, constitué du cristal central associé au cristal annulaire peut être utilisé suivant plusieurs modes. Nous avons retenu le mode anti-Compton et le mode de paires (pic de premier échappement). Dans le mode anti-Compton, les évènements détectés par le cristal central ne sont pas retenus si des évènements sont détectés simultanément par la couronne. Si la couronne fonctionnait parfaitement (efficacité de détection de 100% et seuil en énergie nul), la fonction de réponse ne serait constituée que du seul pic d'absorption totale. En fait, par suite des dimensions finies du cristal annulaire (épaisseur, longueur) et du seuil de détection utilisé, la fonction de réponse du spectromètre à des photons y d'énergie E est plus compliquée comme nous le verrons plus loin (par la suite, ce mode de fonctionnement sera dénommé mode AT). L'effica. té de détection du système fonctionnant avec ce mode est assez élevée pour les faibles énergies (E < 5 MeV) et décroît lentement avec l'énergie.

Dans le mode de création de paires (pic de premier échappement), les rayonnements y détectés par le cristal central ne sont pris en compte que si l'un des deux rayons y d'annihilation est détecté simultanément ans la couronne. La fonction de réponse obtenue avec ce mode est moins satisfaisante que celle que l'on aurait avec le mode de paires conventionnel (pic de double échappement). Nous avons retenu ce mode (dénommé PE par la suite) car il présente une meilleure efficacité. Pour le détecteur 7,6 cm x 15,2 cm utilisé, les efficacités correspondant au pic pour les modes AT et PE sont à peu près égales pour une énergie E χ 8 MeV.

4. Dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental utilisé pour les mesures de sections efficaces de capture est représenté schématiquement sur la fig. 1.

Le spectromètre γ est placé à l'intérieur d'une importante protection dont le rôle est de réduire sensiblement les rayonnements parasites γ et neutrons pouvant être détectés par le spectromètre. La protection est constituée principalement de matériaux légers (paraffine, carbonate de lithium et acide borique) qui absorbent les neutrons en produisant peu de rayonnements γ (section efficace de capture très faible) ou des rayonnements γ de faible énergie (photons de 478 keV produits par la réaction $^{10}{\rm B}({\rm n},\dot{\alpha})^7{\rm Li}^{\clubsuit}$).

Une épaisseur minimale de JQ cm de plomb entoure le spectromètre et le protège contre les rayonnements y produits dans la protection et contre les rayonnements ambiants. L'arrière du spectromètre est également protégé par 20 cm d'acide borique. Le détecteur annulaire se comporte également comme une protection supplémentaire vis à vis du détecteur central.

Le détecteur central voit l'échantillon à travers un collimateur d'acide borique (20 cm) et de plomb (25 cm), de 5 cm de diamètre. Une barre d'ombre de tungstène est placée entre la cible et le collimateur afin de protéger le spectromètre, et si possible la protection elle-même, des neutrons et des rayonnements γ produits par la cible. Le positionnement de la barre d'ombre est très critique.

Un bouchon d'hydrure de lithium de 20 cm a été introduit dans le collimateur pour atténuer sensiblement les neutrons diffusés par l'échantillon. Les neutrons interagissent avec le cristal pour donner principalement des rayonnements γ parasites de 6,83 MeV provenant de la réaction $^{127}I(n,\gamma)$. Le bouchon de LiH atténue également le flux des rayonnements de capture produits dans l'échantillon ; l'atténuation est prise en compte lors de la détermination de l'efficacité du spectromètre.

L'axe du spectromètre fait un angle de 100° avec la direction du faisceau de protons. Le centre du cristal se trouve à 80 cm du centre de l'échantillon. Cette distance résulte d'un compromis entre les exigences suivantes :

- distance suffisante pour discriminer, par la méthode du temps de vol, les rayonnements γ de capture des neutrons diffusés par l'échantillon.
- efficacité suffisante de la barre d'ombre et du collimateur.
- angle solide de détection assez important pour réduire la durée des mesures : pour d = 80 cm, l'angle solide sous-tendu par le détecteur d'un point de l'échantillon est de l'ordre de 7.10⁻³ sr.

De nombreux essais ont été nécessaires avant d'aboutir à la meilleure protection possible. De multiples combinaisons des matériaux de protection cités ont été essayées pour diverses configurations. La configuration retenue donne le meilleur rapport pic/fond pour des neutrons de 1 MeV; nous l'avons conservée pour les autres énergies de neutrons.

5. Electronique - acquisition des donnéss.

La technique du temps de vol permet de discriminer les rayonnements γ de capture des neutrons diffusés par l'échantillon et de soustraire la contribution du bruit de fond (évènements non corrélés).

Le spectromètre est utilisé simultanément dans les oux modes et l'analyse des données est faite séparément pour chaque de le Le dépouillement d'une mesure est donc plus long mais cette duplise ion présente copendant plusieurs avantages. Un bon accord entre les résultats obtenus indépendamment confirme une analyse correcte deu données. De plus, les résultats peuvent être considérés comme indépendants et le résultat final peut être pris comme la moyenne pondérée des deux valeurs obtenues, ce qui amélione la précision de la mesure pour une même durée de l'expérience.

Le schéma électronique est présenté sur la fig. 2.

Deux signaux sont prélevés sur le détecteur central : l'ur sur l'anode pour la voie rapide, l'autre sur la 10 ême dynode pour la voie linéaire. Le signal rapide amplifié est envoyé : un double discriminateur qui délivre une impulsion représentant l'instant de détection des rayonnements γ par le cristal centra; cette impulsion déclenche un convertisseur temps-amplitude (CTA). Le signal "stop" est fourni par une prise de temps placée sur le trajet de la bouffée de protons et qui sert de référence en temps.

La voie linéaire du détecteur central est dédoublée : l'une des voies sert à définir le seuil en énergie (de l'ordre de 1 MeV). Cette disposition permet de changer le gain sur la voie l'inéaire sans changer le seuil.

Les sorties des 6 photomultiplicateurs associés au cristal annulaire sont additionnées à l'entrée d'un préamplificateur ORTEC 113. Le signal de sortie alimente deux voies :

- un sélecteur monocanal placé sur l'une des voies sélectionne les évènements correspondant à une énergie de 511 keV (pratiquement entre 200 et 800 keV).
- la seconde voie est utilisée pour définir le seuil de détection des rayonnements γ dans la couronne.

Fonctionnement dans le mode AT - E (AT) :

Les impulsions provenant du détecteur central et de la couronne et dont les amplitudes sont supérieures aux seuils sont envoyées dans un circuit de coïncidence. Le signal de coïncidence ferme une porte à l'entrée de laquelle est envoyée l'information linéaire du détecteur central. Il n'y a donc pas d'information E(AT) s'il y a eu détection simultanée dans la couronne et le cristal central.

Fonctionnement dans le mode PE - E (PE) :

Le signal linéaire du détecteur central est envoyé sur une porte qui s'ouvre lorsque le sélecteur monocanal délivre un signal en coïncidence (il y a donc eu détection d'un photon de 511 keV dans la couronne).

Spectre de temps de vol - TdV :

La sortie du CTA est envoyée sur une porte linéaire dont l'ouverture est commandée par le seuil en énergie du détecteur central. Parmi les informations délivrées par le CTA, ne sont prises en compte que celles qui correspondent à un rayonnement y d'énergie supérieure au seuil.

Les signaux correspondent aux informations E(AT), E(FE) et TdV sont envoyés sur des codeurs. Pour réduire le taux d'acquisition, les codeurs des informations E(AT) et E(PE) sont bloqués s'il n'y a pas de signal TdV simultanément. Les codeurs sont couplés à un calculateur CII Mitra 15/30 par l'intermédiaire d'une interface CAMAC. Les blocs d'information sont constitués dans la mémoire du calculateur puis envoyés sur bande magnétique. Un traitement en ligne permet également de constituer des spectres conditionnés par un ou plusieurs paramètres ; par exemple, les spectres d'amplitude E(AT) conditionnés par le pic γ et la partie bruit de fond du spectre de temps de vol. Les spectres constitués peuvent être visualisés, ce qui permet de suivre le déroulement de l'expérience et également stockés sur le disque du système. Un certain nombre d'échelles sont également lues périodiquement par le calculateur :

- le temps,
- la charge donnée par l'intégrateur,
- les neutrons détectés par le long compteur directionnel,
- les neutrons détectés par le scintillateur plastique,

- le nombre d'éyènements détectés par le cristal central.
- le nombre d'évènements détectés par la couronne,

Les mesures étant très longues (en moyenne 24 heures par énergie), la stabili é de l'élect-onique est vérifiée périodiquement à l'aide de scurces γ.

6. Moniteurs et mesure du flux de neutrons.

La variation relative du flux deneutrons au cours de la mesure est su vie par plusieurs moniteurs : scintillateur plustique et long compteur directionnel. Quant à la mesure absolue du flux neutronique, elle est faite avec le long compteur et pour certaines énergies avec un télescope à protons de recul. Un intégrateur de courant donne la charge reque par la cible de lithium ou de tritium. Le rapport entre le nombre de neutrons détectés par le long compteur et la charge Q renseigne sur l'évolution de l'état de la cible.

Les neutrons produits par la cible sont détectés par la méthode du temps de vol par un petit scintillateur plastique placé à 80 cm environ de la source, au dessus du plan de la réaction. Le scintillateur est placé à l'intérieur d'une protection de paraffine. Une fenêtre analogique est placée sur le pic correspondant aux neutrons et les signaux de sortie sont envoyés sur une échelle. Le spectre de temps de vol est également pris en compte par le calculateur.

Le flux de neutrons est essentiellement mesuré par un long compteur directionnel [3]. Ce détecteur est constitué d'un cylindre de modérateur dans lequel sont placés deux compteurs à EF3. Le modérateur est traversé par un canal oû est placé un radiateur. L'ensemble est entouré d'une protection d'eau de 1,20 cm de diamètre. Un canal d'entrée calibré collimate le faisceau de neutrons. La face avant de la protection se trouve à environ 2m de la source de neutrons et l'axe de l'appareil coïncide avec la direction des protons incidents. L'efficacité de ce type de détecteur est pratiquement indépendante de l'énergie des neutrons entre 10 keV et 1 MeV (elle est de l'ordre de 8,5% et déterminée avec une précision relative de 2%) puis décroît lentement avec l'énergie. La stabilité du seuil placé sur le spectre d'amplitude est vérifiée périodiquement avec une source calibrée de Am-Be.

Pour des énergies E > 1 MeV, nous avons également mesuré le flux neutronique à l'aide d'un télescope à protons de recul. La face avant du détecteur était placée à 8,30 cm du support de la cible. Le radiateur était constitué d'une mince feuille de CH2 (de l'ordre de 1 mg/cm²). Les protons de resul étaient détectés par une diode Si placée à 6 cm du radiateur. Les angles solides étaient définis par des collimateurs placés derrière le radiateur et devant la diode. Les mesures de flux étaient faites avec puis sans radiateur.

Les flux déterminés avec le télescope sont en bon accord avec ceux donnés par le long compteur mais cependant moins précis. Les mesures avec le télescope sont relativement longues et le positionnement du détecteur est délicat (angle et distance par rapport à la cible). Les mesures ne sont faites qu'une seule fois par énergie alors que le flux peut changer régèrement au par s'une mesure. Cet inconvénient est évité avec le long compteur puisque celui-ci est utilisé au cours de la mesure.

III - TRAITEMENT DES DONNEES -

1. Les données expérimentales sont transférées sur bande magnétique de l'ordinateur CIJ Mitra 15. Chaque mot d'information contient trois paramètres à savoir, le temps de vol (TdV), l'énergie γ dans le mode d'abscrption totale (AT) et l'énergie γ pour le mode de paires (PE).

Les données sont ensuite traitées par l'ordinateur CII 10020. Un programme d'intégration [4,5] très performant permet de constituer les matrices TdV * AT et TdV * PE sur le disque RAD du système ; ce traitement consiste à compter les informations ayant la même adresse multiparamétrique. La constitution de ces matrices est relativement rapide et évite la relecture des bandes magnétiques lors de la projection partielle ou totale de l'un des deux paramètres.

2. Correction de dérive.

La figure 3a représente la matrice TdV # AT pour la réaction de capture $^{197}{\rm Au}(n,\gamma)$ à E $_{\rm n}$ = 0,5 MeV. Le seuil en énergie est de l'ordre de 1 MeV. Il apparaît une dérive du temps de vol pour les faibles énergies γ . Cet effet est dû aux instants de détection très différents des rayonnements

de faible énergie, l'effet est d'autant plus marqué que le seuil le détection E_{vS} est plus bas. La correction est faite de la manière suivante.

Le temps de vol est supposé constant pour des énergies $E_{\gamma} > E_{\gamma 1}$. Dans le plan (E_{γ}, TdV) , le déplacement Δt du temps de vol par rapport à sa valeur asymptotique TdV_{lim} est défini pour différentes énergies E_{γ} choisies dans l'intervalle $\left[E_{\gamma S}, E_{\gamma 1}\right]$. Quelques points sont définis en prenant le maximum du pic de temps de vol correspondant à des fenêtres de largeur ΔE_{γ} prises sur le spectre d'énergie E_{γ} . La matrice est corrigée dans la mémoire de l'ordinateur puis écrite sur le disque à la place de l'ancienne matrice. Nous avons représenté sur la fi. 3b la matrice ainsi corrigée. La figure $^{\downarrow}$ représente le spectre de temps de vol correspondant à toutes les énergies E_{γ} au des us du seuil de détection avant et après la correction de dérive. L'effet sur le pic de temps de vol est mis en évidence par l'amélicration de la résolution en temps.

3. Traitement des spectres de rayonnements y.

A partir de la matrice corrigée, le spectre γ de capture est défini en prenant une fenêtre de largeur Λ sur le pic de temps de vol. Du fait de la forme assez particulière du pic (fond quasiment constant à droite et lentement décroissant à gauche), nous avons pris une largeur Λ telle que la quasi-totalité des évènements dans le pic soit prise en considération tout en conservant un rapport pic/fond aussi grand que possible. De l'étude de plusieurs pics de temps de vol, nous avons retenu Λ = 3 w où w est la largeur à mi-hauteur du pic. Quant à la fenêtre de fond, nous l'avons prise à droite du pic. Pour améliorer à nouveau la précision sur le spectre de capture, nous avons pris une fenêtre de largeur k. Λ . En effet, si T est le nombre d'évènements contenus dans la fenêtre de largeur Λ (pic de temps de vol) et F' le nombre d'évènements pour la fenêtre de largeur k. Λ (fond), alors le nombre de captures est donné par :

$$S = T - F$$
 avec $F = F'/k$

dont la variance sera :

$$\sigma_{\rm S}^2 = \sigma_{\rm T}^2 + \sigma_{\rm F}^2 = {\rm T} + \frac{1}{{\rm k}^2}$$
, k F = T + $\frac{1}{\rm k}$ F.

la contribution de F à la variance est donc diminuée à'un facteur k ce qui est très intéressant quand le rapport T/F est petit.

Le spectre différence $S(E_{\gamma})$ et le spectre de variance qui lui est associé sont ainsi construits pour les mesures faites avec et sans échantillon. Le spectre de capture réel est alors obtenu en soustrayant le spectre obtenu sans échantillon du spectre de capture donné par l'échantillon après normalisation des flux de neutrons. Nous avons représenté sur les figures 5 et 6 les spectres d'amplitude obtenus avec et sans échantillon d'or pour les énergies de neutrons de 0.72 et 2.5 MeV, respectivement.

Le spectre résultant est défini sur 512 canaux avec une largeur d'environ 20 keV par canal. Cette largeur conduirait à des matrices de réponse beaucoup trop importantes pour être déconvoluées dans un temps raisonnable, aussi avons nous choisi une largeur beaucoup plus grande de 250 keV par canal. La valeur retenue correspond à la résolution du spectromètre pour un rayonnement γ de l'ordre de 2,5 MeV . Une plus grande valeur réduirait l'information contenue dans la forme du spectre de capture.

La fig. 7 représente l'organigramme des différentes opérations permettant d'obtenir la section efficace de capture à partir des données expérimentales.

IV - MATRICE DE REPONSE DU SPECTROMETRE -

1. Fonction de réponse d'une raie monoénergétique.

La distribution N(E) des rayonnements γ reçus par le détecteur NaI donne lieu à une distribution d'amplitude C(V) par l'intermédiaire de la fonction de réponse R(V,E) du spectromètre :

$$C(V) = \int_{0}^{E_{\text{max}}} R(V, E) \cdot N(E) dE.$$
 (1)

Les rayonnements γ d'énergie E interagissent avec le cristal, principalement, par effet photo-électrique, effet Compton et effet de création de paires. La distribution théorique correspondante T(E,V') doit être convoluée par une fonction g(E,V,V') qui tient compte de la résolution du cristal et de

l'électronique associée. La fonction de réponse du détecteur est alors délinie par la relation :

$$R(V,E) = \int_{0}^{\infty} g(E,V,V') \cdot T(E,V') dV'$$
 (2)

L'équation (1) peut s'écrire sous forme matricielle :

$$C_{i} = \sum_{j} R_{ij} N_{j}$$
 (3)

les éléments R_{ij} de la matrice de réponse R peuvent être considérés comme la probabilité d'observer une impulsion d'amplitude comprise entre V_i - ΔV et V_i pour un responnement γ d'énergie E_j reçu par le cristal. N_j représente le nombre de photons incidents sur le détecteur avec une énergie comprise entre E_j - ΔE et E_j . C_i représente le nombre d'évènements observés expérimentalement pour une impulsion d'amplitude comprise entre V_i - ΔV et V_i .

Pour un cristal nu la fonction de réponse peut être calculée à partir de l'éq. 2 (calcul analytique ou méthode de Monte-Carlo). Par contre pour les deux modes de fonctionnement utilisés, les conditions imposées au spectre d'amplitude donné par le cristal central dépendent de la géométrie de la couronne et des réglages électroniques associés (seuil en énergie et fenêtre correspondant au rayonnement de 511 keV). Les fonctions de réponse du spectromètre pour des rayonnements γ de différentes énergies sont donc déterminées expérimentalement.

La fig. 8 représente le spectre d'amplitude des rayonnements γ de 6,13 MeV de la réaction $^{19}F(p,\alpha\gamma)^{16}O$ pour les deux modes de fonctionnement du spectromètre.

Du fait des dimensions finies du cristal annulaire, de sa géométrie 4π incomplète et de son seuil de détection, il subsiste dans le mode anti-Compton une composante Compton de faible amplitude ainsi qu'un résidu du pic de premier échappement, de faible intensité, situé à l'énergie E_{γ} - 0,511 MeV. Dans ce mode, les extrêmités de la couronne affectent la forme de la fonction de réponse : remontée vers les faibles et les grandes énergies Compton.

Dans le mode de premier échappement, il reste un pic de deuxième échappement de faible intensité et d'énergie E - 1,62 MeV ainsi qu'une composante Compton plus faible que dans le mode précédent. Les extrêmités du

cristal annulaire ne jouent aucun rôle dans ce mode puisqu'il doit y avoir coïncidence entre les évènements détectés dans le cristal central et dans la couronne. La forme de la fonction de réponse est plus simple. Par contre la résolution en énergie est moins bonne ainsi qu'il est mentionné sur la fig. 8. Cette détérioration de la résolution est que à la condition que l'on impose aux impulsions données par le cristal central.

2. Constitution de la matrice de réporce.

Pour chaque mode de fonctionnement du spectromètre, les fonctions de réponse expérimentales sont obtenues à partir de raies γ mono-énergétiques fonnées par des sources et des réactions nucléaires. Nous avons utilisé les 9 raies suivantes :

~ réactions nucléaires :

A partir des 9 fonctions de réponse données par les raies précédentes nous avons construit, par interpolation, la matrice de réponse du spectromètre, pour des rayonnements γ de 1 à 12 MeV par pas de 0,25 MeV. Les fonctions de réponse sont également définies par une pente de 250 keV par canal. Nous avons donc une matrice de dimensions 48×48 . L'énergie maximale de 12 MeV est suffisante pour nos mesures car l'énergie de séparation des neutrons, dans la région de masse qui nous intéresse, est de $B_n \sim 5-8$ MeV et l'énergie maximale des neutrons est de 3 MeV.

Toutes les fonctions de réponse sont normalisées à la même intensité :

$$\sum_{i} R_{ij} = c^{te} \qquad \forall_{j}$$

Les figs. 9 et 10 représentent une partie des matrices de réponse du spectromètre pour les modes AT et PE, respectivement.

V - EFFICACITE DU SPECTROMETRE -

Four obtenir la section efficace de capture absolue, il est nécessaire de connaître l'efficacité du spectromètre dans les conditions normales d'utilisation : géométrie, collimation, seuil de détection, mode de fonctionnement pour chaque énergie E comprise entre 1 et 12 MeV.

L'efficacité est mesurée pour les deux modes de fonctionnement AT et PE à partir de sources calibrées (mesures absolues) et de réactions nucléaires (mesures relatives).

1. Mesures à l'aide de sources calibrées.

 $\mbox{L'efficacit\'e absolue du spectromètre pour un rayonnement d'énergie } E_{\mbox{v}} \mbox{ \'emis par une source est définie par le rapport : }$

$$\varepsilon \left(\mathbb{E}_{\gamma} \right) = \frac{\mathbb{N}}{\mathbb{N}_{0}}$$
 (4)

où N représente le nombre d'impulsions détectées par seconde et correspondant à une énergie supérieure au seuil :

$$E_{seuil}$$
 = 1 MeV pour le mode AT et E_{seuil} = 1,5 MeV pour le mode PE.

 $N_{_{_{\mathrm{C}}}}$ est le nombre de rayonnements γ émis par seconde par la source calibrée placée à l'endroit de l'échantillon. L'efficacité ainsi obtenue tient compte de l'angle solide de détection.

Four le mode d'absorption totale (AT), l'efficacité a pu être déterminée à partir des sources suivantes :

$$^{22}\text{Na}$$
 $\text{E}_{\gamma} \approx 1,275 \text{ MeV}$ ^{60}Co $\text{E}_{\gamma} \gtrsim 1,25 \text{ MeV} \text{ (moyenne des 2 raies de 1,17 et}$ $^{1}\text{,33 MeV}$) ^{89}Y $\text{E}_{\gamma} \approx 1,836 \text{ MeV}.$

Par contre pour le mode PE, dont le seuil est défini par le phénomène physique de création de paires, l'efficacité est calculée pour un seuil de 1,5 MeV et seule la source de 89 Y (E $_{\gamma}$ = 1,836 MeV) a pu être utilisée pour la mesure absolue.

La précision sur l'intensité des sources calibrées est de 2,5%.

Pour pouvoir comparer l'efficacité du spectromètre suivant le mode utilisé sans tenir compte du seuil de la distribution Compton, nous avons également déterminé l'efficacité absolue pour le pic d'absorption totale $\epsilon_{\rm pic}$ (AT) à l'aide des sources suivantes :

$$^{137}\text{Cs}$$
 ^{137}Cs ^{137}Cs

Quant à l'efficacité pour le mode de premier échappement $\varepsilon_{\rm pic}$ (PE), seules les deux dernières sources ont été utilisées ($^{24}{
m Na}$ et $^{88}{
m Y}$).

2. Mesures à l'aide de réactions nucléaires.

L'énergie des rayonnements émis par les sources calibrées ne dépassant pas 1,836 MeV (la période du ²⁴Na étant trop courte pour pouvoir utiliser couramment cette source), nous avons utilisé les réactions nucléaires suivantes :

et
$${}^{1,1}B(p,\gamma){}^{12}C$$
 à $E_p = 800 \text{ keV}$ et ${}^{27}Al(p,\gamma){}^{28}Si$ à la résonance $E_p = 992 \text{ keV}$.

Les transitions γ issues de ces réactions couvrent une gamme d'énergie s'étendant de 1,78 à 12,25 MeV.

La première réaction permet d'obtenir l'efficacité relative des raies à 4,44 et 12,25 MeV. La seconde réaction donne principalement 6 raies qui ont pour énergie :

Nous avons utilisé les intensités relatives mesurées par AZUMA et al. [6], SCOTT et al. [7] et par MEYER et al. [8]. Quant aux intensités déduites de nos mesures, elles ont été obtenues en déconvoluant les spectres γ provenant des deux réactions par les matrices de réponse PE et AT. Les efficacités relatives ainsi obtenues sont alors normalisées sur les valeurs absolues déterminées à basse énergie. La précision sur l'efficacité dépend de l'énergie ; environ 3% pour E γ 2 MeV et croît jusqu'à 10% pour E γ 2 MeV. Nous avons donc estimé la précision moyenne sur toutes les énergies à 6%.

La figure 11 représente les efficacités correspondant au pic (d'absorption totale ou de premier échappement) pour les deux modes. Les efficacités totales sont présentées sur la fig. 12. L'influence du bouchon de LiH placé dans le collimateur est particulièrement visible pour le mode AT pour les énergies $\mathbb{E}_{\sqrt{n}} < 3$ MeV.

VI - DECONVOLUTION DES SPECTRES D'AMPLITUDE -

1. Principe de la méthode.

La distribution N(E) des rayonnements γ reçus par le spectromètre et la distribution d'amplitude C(V) qu'il en résulte, sont liées par la relation 1 du paragraphe précédent.

La déconvolution consiste à déduire la distribution N(E) des rayonnements γ émis par l'échantillon à partir du spectre d'amplitude observé C(V) et de la matrice de réponse R(V,E) déterminée expérimentalement. Les éléments de la distribution N(E) doivent être positifs.

La matrice de réponse est construite à partir de raies mono-énergétiques observées expérimentalement et présentant des fluctuations statistiques et de fonctions de réponse interpolées dont l'erreur est plus grande encore. Ces fluctuations sont très nettement amplifiées par la déconvolution, quelque soit la méthode employée et le spectre déconvolué devra donc être lissé pour réduire ces oscillations—sans toutefois modifier la forme du spectre.

2. Méthode des soustractions successives.

Cette méthode est essentiellement utilisée pour la déconvolution de spectres présentant des raies discrètes bien distinctes. Chaque composante est obtenue par soustractions successives en partant de la raie de plus grande énergie. La méthode est plus délicate à employer pour des spectres continus comme le sont généralement les spectres de capture résultant des réactions de neutrons rapides avec des noyaux lourds. Dans ce cas l'énergie E_{γ} maximale est calculée à partir de la cinématique de la réaction et les soustractions successives se font à partir de cette énergie maximale (canal m du spectre d'amplitude).

Pour une matrice R; triangulaire, c'est à dire telle que :

$$R_{ij} \approx 0 \text{ pour } j > i$$

la composante N du spectre γ est définie par :

Ē

$$N_{m} = C_{m}/R_{mm}. (5)$$

Les composantes suivantes, pour $j = m -1, \ldots, 1$ sont obtenues à partir des spectres résiduels :

$$C'_{i} = C_{i} - N_{m} R_{im} \text{ pour } i = 1,, m$$
 (6)

d'où :

$$N_{m-1} = C'_{m-1}/R_{m-1,m-1}$$
 (7)

et ainsi de suite.

En fait la matrice R_{ij} n'est pas triangulaire car la résolution du spectromètre change avec l'énergie E_y. Une transformation peut être utilisée pour obtenir des fonctions de réponse de forme identique (largeur constante) quelque soit l'énergie. La transformation inverse est beaucoup plus délicate à appliquer de sorte que nous avons utilisé l'approximation suivante.

Nous supposons que le spectre γ a la même intensité pour deux canaux adjacents (soit une différence en énergie de 250 keV), c'est à dire que le spectre ne présente pas de variations brusques (pics), approximation justifiée dans notre cas. Le contenu du canal m correspondant à l'énergie maximale E_{γ} est alors donné par la relation suivante :

$$N_{j} = C_{j} (R_{jj} - R_{j} j_{-1}) / R_{jj}^{2} \text{ pour } j = m$$
 (8)

les autres composantes sont alors définies par les relations 6 et 8.

3. Mithode itérative de Scofield.

L'équation matricielle :

$$C = R \cdot N \tag{9}$$

peut être résolue par itération.

Si toutes les composantes du vecteur RN et du vecteur C sont positives, ces vecteurs sont reliés par une matrice diagonale D.

La première itération est définie par :

$$N^{(0)} = D^{(0)} C$$
 avec $D^{(0)} = I$ (30)

d'où l'on déduit :

$$C^{(0)} = R N^{(0)}$$

A la première itération, on considère donc que le spectre déconvolué est le spectre d'amplitude lui-même. A chaque itération le spectre calculé $C^{(n)}$ est comparé au spectre de départ C et non pas au résultat de l'itération précédente $C^{(n-1)}$; ceci a pour effet d'accélérer la convergence du processus itératif.

Pour les itérations suivantes, on aura :

$$N^{(n+1)} = D^{(n+1)} C$$
 (12)

les éléments D; de la matrice diagonale D étant donnés par :

$$D_{j,j}^{(n+1)} = R_{j}^{(n)} / C_{j}^{(n)} \quad \text{pour } j = 1, \dots, m$$
 (13)

avec :

$$C^{(n)} = R \cdot N^{(n)}$$
 (14)

Le calcul itératif est arrêté lorsque le meilleur accord est obtenu entre le spectre d'amplitude calculé C $^{(n)}$ et le spectre expérimental C. Avec cette méthode les solutions sont nécessairement positives donc physiquement satisfaisantes. Par contre les erreurs associées aux composantes du spectre γ ne peuvent être obtenues comme dans la méthode des moindres carrés puisque la matrice R n'est pas inversée. On pourrait cependant considérer les éléments D, définis par l'équation (13) comme les variances des composantes N,

d. Méthode générale des moindres carrés.

On peut également chercher un vecteur N de l'équation matricielle C = RN qui minimise la norme ||RN - C||. La solution correspondante est une solution de moindres carrés. On peut montrer [9] que les équations normales qui minimisent la norme précédente s'écrivent :

$$R^{t} C = R^{t} R N \tag{15}$$

Comme la variance des éléments de C est différente, on introduit une matrice poids W, diagonale, telle que ;

$$R^{t}WC = R^{t}WRN$$
 (16)

d'où l'on tire la solution :

$$N = (R^{t} W R)^{-1} R^{t} W C$$
 (17)

La matrice R^t W R est inversée en utilisant la méthole de Cholesky.

Si les erreurs sur le spectre d'amplitude C sont purement statistiques et que l'on néglige les erreurs sur les éléments r_{ij} de la matrice de réponse, on peut alors montrer [10] que la variance des composantes $N_{\vec{k}}$ est donnée par les éléments diagonaux de la matrice :

$$s = (R^t w R)^{-1}$$

soit :

$$\sigma^2 (N_k) = S_{kk}$$

Le calcul des composantes $\stackrel{r}{k}$ est très rapide et la méthode présente l'avantage de donner les erreurs associées à partir des erreurs statistiques sur le spectre d'amplitude. Par contre, les solutions obtenues sont les solutions exactes de l'équation (16) et peuvent être négatives c'est à dire non physiques. Les solutions négatives pourraient être évitées en traitant le problème des moindres carrés en imposant la contrainte $N_k \geqslant 0$ pour toutes les composantes.

Généralement la résolution de l'équation C = R N par inversion de la matrice R (ou de la matrice R^t W R) conduit à des oscillations autour de la solution. Lors de la déconvolution d'un spectre continu ces oscillations successives tendent à se compenser pour deux intervalles adjacents de sorte que le spectre déconvolué comprend très peu de valeurs négatives.

e. Comparaison entre les différentes méthodes.

La méthode des soustractions successives est assez délicate à employer dans le cas de spectres continus car l'énergie maximale est assez mal définie et soumise à une grosse imprécision et doit donc être calculée.

La méthode itérative donne des solutions positives donc physiques par contre les erreurs ne peuvent être rigoureusement calculées. Le temps de calcul peut être assez important.

Quant à la méthode générale des moindres carrés elle permet le calcul des variances associées aux composantes du spectre déconvolué. Le calcul est assez rapide mais peut donner des solutions négatives à l'extérieur des barres d'erreurs qui sont physiquement inacceptables.

On peut montrer [11] que la méthode itérative de Scofield converge vers la solution exacte donnée par la méthode des moindres carrés si la solution exacte satisfait la condition :

$$N_{k} > 0$$
 pour $i = 1, 2, ..., m$

La figure 13 représente le spectre d'amplitude obtenu avec l'or pour une énergie de neutrons de 0,52 MeV et le spectre déconvolué en utilisant la méthode générale des moindres carrés.

VII - CORRECTION DES RESULTATS -

Le flux de neutrons utilisé pour calculer la section efficace de capture doit être corrigé des effets suivants :

- absorption des neutrons dans l'échantillon et dans l'air,
- auto-absorption des neutrons dans l'échantillon,
- anisotropie de la source de neutrons.

On doit également tenir compte des diffusions multiples des neutrons dans l'échantillon qui ont pour effet d'augmenter le nombre de rayons γ de capture mais pour des énergies de neutrons inférieures à l'énergie initiale.

Les rayonnements de capture peuvent être absorbés dans l'échantillon, d'où une correction supplémentaire.

1. Absorption des neutrons dans l'échantillon et dans l'air.

Les neutrons sont détectés à travers l'échantillon, par un long compteur directionnel placé dans l'axe du faisceau de protons incidents. Le taux de comptage du détecteur de neutrons doit être corrigé pour tenir compte de l'absorption des neutrons dans l'échantillon. Cette correction est faite expérimentalement en mesurant le flux de neutrons avec et sans échantillon, pour une même cible et à chaque énergie. L'atténuation ainsi déterminée est en très bon accord avec la valeur calculée :

$$A = \exp(-n\sigma x) = \exp(-S)$$
 (18)

où n nombre de noyaux par cm3.

- σ section efficace totale
- x épaisseur de l'échantillon.

Le détecteur de neutrons étant placé à 2,30 m de la source de neutrons,il est également tenu compte de l'absorption des neutrons dans l'air.

2. Correction de diffusion multiple.

Lors de leur interaction avec les noyaux de l'échantillon, les neutrons subissent des collisions élastiques et inélastiques et peuvent induirent des réactions (n,xn'). Les neutrons résultant peuvent donc provoquer des captures pour des énergies \mathbf{E}_n différentes de l'énergie initiale E. Or la section efficace de capture croît quand l'énergie diminue. Pour obtenir la section de capture correspondant à l'énergie E des neutrons pénétrant dans l'échantillon il faut corriger les données expérimentales pour tenir compte des captures induites par les neutrons d'énergie \mathbf{E}_n < E.

Généralement les corrections de diffusion multiple sont estimées en utilisant la méthode de Monte-Carlo. Les calculs sont très longs et peuvent souvent être remplacés, pour des échantillons plans et avec une bonne approximation, par un calcul analytique. Les résultats expérimentaux sont à corriger par un facteur multiplicatif :

$$C = \frac{\text{Probabilité de capture au 1er choc}}{\text{Probabilité totale de capture}} = \frac{1}{1 + C'}$$

avec C' = Probabilité de capture à partir du 2ème choc Probabilité de capture au 1er choc

Pour le calcul du facteur C' nous utilisons la méthode indiquée par Taste [12].

L'épaisseur de l'échantillon, assimilé à une feuille mince plane de grande dimension, est exprimée en unités de libre parcours S, précédemment défini. La probabilité de capture au 1er choc à l'épaisseur S' est donnée par :

$$y_0 = P_{\gamma} \int_0^S e^{-S'} dS' = P_{\gamma} (E) [1 - \exp(-S(E))]$$
 (19)

où P_{γ} (E) = $\frac{\sigma_{\gamma}(E)}{\sigma(E)}$ est la probabilité de donner une capture au cours d'un choc.

Après diffusion sur un noyau de masse A, les neutrons auront une énergie comprise entre l'énergie initiale E et l'énergie :

$$E' = E \left(1 - \frac{\frac{1}{4} A}{\left(A+1\right)^2}\right) \tag{20}$$

La probabilité de capture après une diffusion est donnée par :

$$y_1 = P_n(E)$$
, $P_{\gamma}(E')$, $\left[1 - \exp\left(-S(E')\right)\right]$. CFR $(\bar{S}(E'))$

où CFR ($\tilde{S}(E')$) est une fonction tabulée qui ne dépend que de l'énergie E' et P_n (E) représente la probabilité de diffusion au cours d'un choc :

$$P_n(E) = \sigma_n(E)/\sigma(E) \text{ avec } \sigma_n(E) = \sigma(E) - \sigma_v(E)$$

En ne considérant que les captures au 2ème choc, on a :

$$C' = \frac{y_{j}}{y_{0}} = P_{n}(E) \cdot \frac{P_{\gamma}(E')}{P_{\gamma}(E)} \cdot CFR \left(S(E')\right)$$
 (22)

soit en introduisant les sections efficaces :

$$C' = \frac{\sigma_n(E)}{\sigma(E')} \cdot \frac{\sigma_{\gamma}(E')}{\sigma_{\gamma}(E)} \cdot CFR \left(S(E')\right)$$
 (23)

3. Auto-absorption des neutrons dans l'échantillon.

La section efficace de capture est définie par la relation :

$$\sigma = \frac{N_{\Upsilon}}{\int \Phi \ n \ dx}$$
 (24)

avec $N_{\mathbf{v}}$ nombre de captures au 1er choc

et:
$$\emptyset = \emptyset_0 e^{-n \sigma}$$
 (25)

l'intégrale est prise sur l'épaisseur de l'échantillon :

$$\int_{0}^{m} \varphi_{0} e^{-n \sigma} dn = \varphi_{0} n \cdot \frac{1}{n\sigma} (1 - e^{-n\sigma}) = \varphi_{0} n \cdot \frac{1}{S} (1 - e^{-S})$$
 (26)

la section efficace de capture s'écrit alors :

$$\sigma = \frac{N_{\Upsilon}}{\emptyset_0 n} \cdot \left(\frac{S}{1 - e^{-S}}\right) \tag{27}$$

le deuxième terme $A_n = S/(1 - e^{-S})$ défini l'auto-absorption des neutrons dans l'échantillon.

5. Absorption des rayonnemen : y dans l'échantillon,

Les rayonnements de capture crées dans l'échantillon peuvent y être également absorbés avant d'être détectés par le cristal NaI. L'atténuation des rayonnements y sui; une loi de la forme :

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$
 (28)

οù ν est le coefficient d'atténuation linéaire x l'épaisseur de l'échantillon.

Pour une absorption de volume à l'intérieur de l'échantillon, le coefficient de correction d'absorption sera défini, de manière identique aux neutrons, par la relation :

$$A_{\Upsilon} = \frac{\mu x}{1 - e^{-\mu x}} \tag{29}$$

Le coefficient μ peut être calculé à partir des tables de sections efficaces d'interaction de photons [13] ; il dépend de l'énergie des photons et du matériau traversé. Cette correction est appliquée au spectre déconvolué lors du calcul de la forme du spectre de capture; elle varie de 14% pour $E_{\gamma}=1$ MeV à 10% pour $E_{\gamma}=1$ MeV pour un disque d'or de 1,5 mm d'épaisseur.

4. Correction d'anisotropie de la source de neutrons.

Cette correction est introduite par l'intermédiaire du rapport :

$$A_{r} = -\frac{\emptyset}{\overline{\emptyset}}$$
 (30)

cù \emptyset est le flux de neutrons au centre de l'échantillon , et $\overline{\emptyset}$ le flux moyenné sur l'angle solide de l'échantillon vu de la source de neutrons.

Le flux \emptyset est proportionnel à la section efficace différentielle de la réaction utilisée pour produire les neutrons et peut être écrit sous la forme :

$$\emptyset = \emptyset_0 \left[1 + \sum_i a_i P_i (\cos \theta) \right]$$
 (31)

Les coefficients a_i ont été tabulés pour les principales réactions utilisées $\begin{bmatrix}14\end{bmatrix}$.

Le flux moyen est défini par ;

$$\bar{\phi} = -\frac{1}{\theta_{\text{max}}} \int_{0}^{\theta_{\text{max}}} \phi(\theta) d\theta$$
 (32)

où θ_{max} est l'angle moyen d'ouverture maximum de l'échantillon.

L'échantillon a la forme d'un disque, plus ou moins épais, dont le plan fait un angle de $^45^\circ$ avec la direction de détection des rayonnements γ . Pour définir $\overline{\theta}_{max}$, nous avons calculé le rayon équivalent d'un disque dont le plan serait perpendiculaire à la direction du faisceau de protons.

L'angle solide sous-tendu par un disque de rayon R est calculé par la méthode proposée par Gardner et Verghese [15]. Le disque est approximé par un polynôme de n côtés et de surface équivalente. Pour un point situé à la distance D du centre et h du plan du disque, l'angle solide sous-tendu par le disque est défini par une relation de la forme :

$$\Omega (h,D,R) = 2 \sum_{i=1}^{(n-2)/2} (E_i - F_i)$$
 (33)

où E, et F, sont des fonctions des paramètres n, h, D et R. L'échantillon ayant une épaisseur finie, nous avons calculé l'angle solide moyen $\bar{\Omega}$, les paramètres D et n restant fixes.

Le rayon R' équivalent est alors défini par :

$$\Omega (R', h = D, n) = \overline{\Omega} (R, h, D, n)$$
(34)

et l'on en déduit l'angle $\bar{\theta}_{mex}$:

$$\bar{\theta}_{max} = Arctg (R'/D)$$
 (35)

VIII - CALCUL DE LA FORME DU SPECTRE DE CAPTURE -

Quand un neutron d'énergie \mathbf{E}_n interagit avec un noyau de masse A, il y a formation d'un état du noyau composé avec une énergie d'excitation :

$$U_{a} = E_{n} \cdot \frac{A}{A+1} + B_{n}$$
 (36)

où B_n est l'énergie de séparation du neutron dans le noyau composé. Cet état a une probabilité Γ_{γ} h par unité de temps de désexcitation électromagnétique vers des niveaux b d'énergie plus petite, la cascade des transitions s'arrêtant au niveau fondamental.

 Probabilité de transition électromagnétique entre les états |a> et |b>.

La probabilité de transition par unité de temps entre l'état initial |a> et l'état final |b> est donnée, en première approximation, par la théorie des perturbations [16]:

$$T_{a,b} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle b| H_{nr} |a\rangle|^2 \frac{dN}{dE}$$
 (37)

où H_{nr} est l'hamiltonien d'interaction entre le noyau et le champ électromagnétique et dN/dE la densité des états finals. Le développement en ondes sphériques multipolaires de la fonction d'onde correspondant au photon d'énergie $E_{\gamma} = U_{B} - U_{b} = \hbar \omega$, conduit à l'expression suivante [17] :

$$T_{a,b}^{lm} = \frac{8\pi (l+1)}{\hbar l (2l+1)!!} (\frac{\omega}{c})^{2l+1} |\langle b| M \frac{lm}{op} |a\rangle|^{2}$$
(38)

où M $^{lm}_{
m op}$ est l'opérateur de moment multipolaire électrique ou magnétique.

Si les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont spécifiés par le moment angulaire total j, le nombre magnétique m et la parité π , la conservation des moments angulaires et de la parité impose les règles de sélection suivantes au photon émis :

$$\begin{aligned} |\mathbf{j}_{\mathbf{a}} - \mathbf{j}_{\mathbf{b}}| &\leq \boldsymbol{\ell} \leq \mathbf{j}_{\mathbf{a}} + \mathbf{j}_{\mathbf{b}} \\ & \quad m_{\mathbf{a}} = m + m_{\mathbf{b}} \\ & \quad \pi_{\mathbf{a}} \cdot \pi_{\mathbf{b}} = (-) \boldsymbol{\ell} + \pi \end{aligned}$$

où $\pi = 1$ pour une transition magnétique (M),

 $\pi = 2$ pour une transition électrique (E).

Généralement, seuls les ordres les plus petits ($\ell \leq 3$) sont pris en considération, la contribution des ordres supérieurs à la probabilité de transition étant négligeable.

La largeur radiative totale Γ_{γ} de l'état |a> peut être décomposée suivant les différents multipoles d'ordre ℓ :

$$\Gamma_{\Upsilon} = \sum_{l=1}^{\infty} \Gamma_{a} (E l) + \Gamma_{a} (M l)$$
 (39)

L'état |a> pouvant se désexciter vers plusieurs états |b>, la largeur $\Gamma(E \ell)$ est la somme de largeurs radiatives partielles :

$$\Gamma_{\mathbf{a}} (\mathbf{E} \mathbf{l}) = \sum_{\mathbf{b}} \Gamma_{\mathbf{a},\mathbf{b}} (\mathbf{E} \mathbf{l})$$
 (40)

Le calcul de l'expression (38) nécessite donc la connaissance des fonctions d'onde du noyau, c'est à dire le choix d'un modèle nucléaire. Or, si les principales composantes des fonctions d'onde des niveaux de basse énergie sont assez bien connues, il en est différemment pour les états de grande énergie d'excitation qui ont des fonctions d'onde très complexes.

Dans les noyaux lourds, la densité de niveaux est telle que l'on doit considérer la valeur moyenne des largeurs radiatives partielles, moyenne prise sur un grand nombre de niveaux. La largeur radiative partielle moyenne est définie par :

$$<\Gamma_{a,b}(El)>=\hbar T_{a,b}(El)/\rho_a$$
 (41)

où ρ_a est la densité de niveaux à l'énergie U_a .

2. Distribution spectrale .

La distribution spectrale des rayonnements γ émis après la capture d'un neutron constitue le spectre primaire. La distribution en énergie de ces transitions est obtenue en multipliant la largeur radiative moyenne, donnée par l'expression (41), par la densité de niveaux $\rho_{\rm b}$:

$$\nu(U,E_{\gamma}) = C(U). < \Gamma_{a,b} > \rho_b$$
 (42)

où U est l'énergie du niveau a émettant des photons d'énergie E_{γ} . $\nu(U,E_{\gamma})$ représente le nombre de photons γ d'énergie comprise entre E_{γ} et E_{γ} + dE_{γ} émis par des niveaux d'énergie comprise entre U et U + dU.

L'expression (42) peut également s'écrire ;

$$\nu(U, \mathbb{E}_{\gamma}) = C(U) < \Gamma(U) > \rho_b (U - \mathbb{E}_{\gamma})$$
 (43)

où la constante C(U) est liée à la population des niveaux d'énergie U.

3. Fonction d'intensité y.

Suivant Bartholomew et al. [18], nous définissons une fouction d'intensité f(E $_{\gamma}$) comme la distribution de la largeur radiative moyenne réduite par des transitions d'énergie E $_{\gamma}$ et d'ordre ℓ :

$$f(E_{\gamma}) = \frac{\langle f(U) \rangle}{E_{\gamma}^{2} \ell + 1} \cdot \rho(U)$$
 (44)

Le facteur $E_{\gamma}^{2\ell+1}$ est introduit par analogie avec le facteur de pénétration des largeurs réduites de particule. La fonction $f(E_{\gamma})$ est donc une grandeur moyenne au même titre que la densité de niveaux et ces deux grandeurs sont utilisées pour la même région d'énergie.

Avec cette définition, la distribution spectrale des rayonnements primaires (éq. 43), se met sous la forme :

$$v(\mathbf{U}, \mathbf{E}_{\mathbf{Y}}) = \mathbf{E}_{\mathbf{Y}}^{2} \mathcal{L}^{+1} \cdot \mathbf{f}(\mathbf{E}_{\mathbf{Y}}) \cdot \mathbf{C}(\mathbf{U}) \cdot \frac{\rho_{\mathbf{b}}^{(\mathbf{U} - \mathbf{E}_{\mathbf{Y}})}}{\rho_{\mathbf{c}}(\mathbf{U})}$$
(45)

et la largeur radiative moyenne totale des niveaux d'énergie U sera donnée par :

$$\langle \Gamma_{\gamma}(U) \rangle = \int_{0}^{U} C(U) \cdot E_{\gamma}^{2} \ell^{+1} f(E_{\gamma}) \cdot \frac{\rho_{b}(U - E_{\gamma})}{\rho_{a}(U)} dE_{\gamma}$$
(46)

Pour la suite du calcul nous supposons que les transitions γ sont du type dipolaire électrique, hypothèse justifiée pour la région de masse qui nous concerne, soit $A \ge 100$.

Généralement la densité des niveaux de spin J à l'énergie E est donnée par une expression de la forme :

$$\rho_{J}(E) = \rho_{0}(E)$$
, (2 J+1) exp $\left[- (J+1/2)^{2}/2\sigma^{2} \right]$ (47)

Si le paramètre de spin cut-off o est indépendant de l'énergie, la distribution spectrale des rayonnements primaires est donnée par :

$$v(U,E_{\gamma}) = 3 E_{\gamma}^{3} \cdot f(E_{\gamma}) \cdot c(U) \frac{\rho_{0}(U-E_{\gamma})}{\rho_{0}(U)}$$
 (48)

Pour un spin J_i > 1, une transition E1 peut peupler des niveaux de spin J_f = J_i , $J_i \pm 1$, d'où : ρ_b = 3 ρ_a .

La forme du spectre des rayonnements γ de capture dépend donc de la fonction $f(E_{\gamma})$ et de la dépendance en énergie de la densité de niveaux.

Les rayonnements du spectre primaire émis par le niveau de capture peuplent les niveaux d'énergie d'excitation plus petite qui se désexcitent eux-mêmes par des transitions secondaires. La distribution spectrale observée expérimentalement représente donc la somme du spectre primaire et des transitions secondaires et constitue le spectre total.

Le spectre total est défini par :

$$v(E_{\underline{Y}}) = \int_{E_{\underline{Y}}}^{U_{\text{max}}} v(U, E_{\underline{Y}}) dU$$
 (49)

4. Densité de niveaux.

La forme du spectre total dépend des deux fonctions $f(E_{\gamma})$ et $\rho(U)$. Or si nous voulons déduire de la forme du spectre observé, la forme et l'amplitude de la fonction $f(E_{\gamma})$, la densité de niveaux du noyau composé doit être connue aussi bien que possible et doit être déterminée par ailleurs.

Un nom're important de densités ont été obtenues en comptant le nombre de résonances de neutrons au voisinage du seuil. Les déterminations récentes ont été faites avec une très bonne résolution en énergie, cependant quelques résonances peuvent être oubliées parce que trop faibles ou masquées par des résonances voisines de grande intensité. Les niveaux de basse énergie sont généralement définis comme états finals de réactions nucléaires.

D'autres méthodes sont également utilisées pour la détermination des densités de niveaux [19].

Plusieurs paramétrisations de la densité de niveaux ont été proposées. La formulation de Gilbert et Cameron [20] est l'une des plus connues. Dans cette formulation, une température constante est utilisée pour les niveaux de basse énergie avec une variation en exp (U/T) tandis que la formule du gaz de Fermi est utilisée à haute énergie. Quatre paramètres sont nécessaires et les variations de la densité pour les deux zones d'énergie doivent être raccordées correctement.

Nous utilisons principalement une version modifiée du modèle du gaz de Fermi (Back Shifted Fermi Gas Model) [21]. Dans ce modèle, le paramètre de densité de niveaux a et le déplacement de l'état fondamental Δ sont considérés comme deux paramètres à déduire des données expérimentales.

La densité de niveaux de spin J dans un noyau de masse A à l'énergie d'excitation U est donnée par [21] :

$$\rho(U,J) = \frac{1}{24\sqrt{2}} \cdot \frac{2J+1}{\sigma^3 a^{1/4}} \cdot \frac{\exp\left[2(a(U-\Delta))^{1/2} - J(J+1)2\sigma^2\right]}{(U-\Delta+t)^{5/4}}$$
(50)

et la densité totale de niveaux par :

$$\rho(U) = \frac{1}{12\sqrt{2}} \cdot \frac{1}{\sigma a^{1/4}} \cdot \frac{\exp\left[2(a(U-\Delta))^{1/2}\right]}{(^{1}J-\Delta+t)^{5/4}}$$
(51)

où la température thermodynamique t est définie par :

$$U-\Delta = a t^2 - t (52)$$

Quant au paramètre de spin cut-off σ , il est relié au moment d'inertie ${\bf J}$ du noyau par la relation :

$$\sigma^2 = 1. t/h^2 \gtrsim 0.0150 A^{5/3} t.$$
 (53)

Les deux paramètres a et A sont déterminés à partir :

a) de la somme cumulée des niveaux N_0 jusqu'à l'énergie v_0 :

$$N_{Q} = \int_{0}^{U_{Q}} \rho(U) dU$$
 (54)

b) de l'espacement moyen pour les neutrons de résonance s à l'énergie $\mathbf{B}_{\mathbf{n}}$:

$$2/D_{\ell=0} = \sum_{J=I-1/2}^{1+1/2} \rho(U,J)$$
 (55)

I étant le spin de l'état fondamental du noyau cible. Les dernières données publiées sont utilisées pour la détermination des paramètres a et Δ .

5. Technique de calcul du spectre y total.

Nous employons la méthode utilisée par Starfelt [22]. Nous supposons qu'un grand nombre de résonances du noyau composé sont excitées lors de la capture, condition satisfaite pour des neutrons rapides en interaction avec des noyaux lourds.

La région d'énergie s'étendant jusqu'à l'énergie maximale U_{\max} est divisée en n intervalles de largeur $\Delta E = U_{\max}/n$. Nous assimilons chaque intervalle ainsi défini à un niveau et nous calculons la population de chaque niveau à partir du spectre primaire émis par le niveau de capture.

Dans l'expression de la densité spectrale des rayonnements primaires :

$$v(U,E_{\gamma}) \Delta E_{\gamma} = 3 \cdot E_{\gamma}^{3} f(E_{\gamma}) C(U) \frac{\rho(U-E_{\gamma})}{\rho(U)} \cdot \Delta E_{\gamma}$$

la constante C(U) est définie en égalant la probabilité de désexcitation du niveau d'énergie U à sa probabilité de population :

$$\int_{0}^{U} v(U, E_{\gamma}) dE_{\gamma} = \int_{0}^{U} \max_{\text{max}} v(U', U' - U) dU' \quad \text{pour } V \neq U_{\text{max}}$$
 (56)

$$\int_{0}^{U_{\text{max}}} v(U, E_{\gamma}) dE_{\gamma} = 1 \qquad \text{pour } U = U_{\text{max}}$$
 (57)

La population du niveau de capture est définie par :

$$P(U_{\max}) = \int_{0}^{U_{\max}} c(U_{\max}) \ 3. \ f(E_{\gamma}).E_{\gamma}^{3} \frac{\rho(U_{\max}-E_{\gamma})}{\rho(U_{\max})} \ dE_{\gamma} = 1.$$
 (58)

d'où l'on tire :

$$C(U_{\text{max}}) = 1 / \left(\int_{0}^{U_{\text{max}}} 3 \cdot E_{\gamma}^{3} f(E_{\gamma}) - \frac{\rho(U_{\text{max}}^{-1} - E_{\gamma})}{\rho(U_{\text{max}})} dE_{\gamma} \right)$$
 (59)

Pour le niveau suivant, d'énergie $U = U_{max} - \Delta E$:

$$\int_{0}^{U_{\text{max}}-\Delta E} v(U_{\text{max}}-\Delta E, E_{\gamma}) dE_{\gamma} = \int_{0}^{\Delta E} v(U_{\text{max}}, E_{\gamma}) dE_{\gamma}$$

d'où l'on déduit la constante $C(U_{max}^-\Delta E)$:

$$C(U_{\text{max}} - \Delta E) = \int_{0}^{\Delta E} v(U_{\text{max}} - \Delta E, E_{\gamma}) dE_{\gamma} / \int_{0}^{U_{\text{max}} - \Delta E} 3.E_{\gamma}^{3}.f(E_{\gamma}) \frac{\rho(U_{\text{max}} - \Delta E, E_{\gamma})}{\rho(U_{\text{max}} - \Delta E)} dE_{\gamma}$$
(60)

Le calcul des constantes C(U) est fait jusqu'à l'énergie $U=\Delta E$. La population du niveau d'énergie U est donc donnée par :

$$P(U) = 1 / C(U) \tag{61}$$

Si l'on suppose que les niveaux ne se désexcitent que par transition électromagnétique ($\Gamma_{\rm tot} = \Gamma_{\gamma}$), alors la population de l'état fondamental doit être égale à la population du niveau de capture. Dans ces conditions l'énergie totale des rayonness y doit être égale à l'énergie apportée au noyau soit : $U_{\rm max} = B_{\rm n} + E_{\rm n} = A_{\rm h+1}$;

$$\int_{0}^{U_{\text{max}}} E_{\gamma} \cdot \nu(E_{\gamma}) dE_{\gamma} = U_{\text{max}}$$
 (62)

Le spectre total γ(E,) doit vérifier les deux conditions précédentes.

Pour des neutrons d'énergie supérieure à 100 keV, la largeur Γ_n des niveaux du noyau composé est beaucoup plus grande que la largeur radiative Γ_γ . Tout niveau d'énergie comprise entre B_n + 100 keV et U_{max} peuplé par désexcitation du niveau de capture, se désexcite préférentiellement par la voie "neutron". La population de ces niveaux sera donc prise égale à zéro pour la suite du calcul du spectre total.

6. Détermination de la fonction $f(E_{\gamma})$.

Le spectre total calculé est utilisé pour extrapoler le spectre γ entre le seuil de détection (aux environs de 1 MeV) ou l'énergie maximale des rayons γ de la réaction $(n,n'\gamma)$ (de …'ordre de \mathbb{E}_n) et l'énergie $\mathbb{E}_{\gamma}=0$.

Pour une capture, la distribution spectrale des rayonnements γ primaires est donnée par l'équation (48) et le spectre total par l'équation (49).

Pour une densité de niveaux donnée, la fonction d'intensité $f(E_{\gamma})$ est définie par un calcul itératif, en comparant le spectre γ total calculé et le spectre expérimental observé. La fonction $f(E_{\gamma})$ retenue est celle qui donne le meilleur accord entre le spectre calculé et le spectre expérimental dans la gamme d'énergie s'étendant de E_n à U_{\max} . La fonction $f(E_{\gamma})$ est extrapolée entre 0 et E_n . L'influence de cette extrapolation sur la forme du spectre est peu importante.

IX - DETERMINATION DE LA SECTION EFFICACE DE CAPTURE -

1. Détermination de la section efficace $\sigma_{n\gamma}$.

Si $S(E_{\gamma})$ représente la distribution des rayonnements γ émis observée expérimentalement et $\nu(E_{\gamma})$ la distribution du spectre total calculée, la section efficace de capture est définie par :

$$\sigma = \frac{C}{N\emptyset} \cdot \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} s(E_{\gamma}) dE_{\gamma} = \frac{C}{N\emptyset} \cdot R$$

$$\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} v(E_{\gamma}) dE_{\gamma}$$
(63)

avec :

N nombre de noyaux dans l'échantillon

Ø flux de neutrons/cm2 reçu par l'échantillon

C tient compte des corrections dépendant uniquement de l'énergie des neutrons et explicitées dans le paragraphe VII.

Nous supposons que la distribution des rayonnements de capture est isotrope.

2. Calcul d'erreurs.

L'erreur sur le facteur R dépend :

- du spectre expérimental : atténuation des rayonnements γ , efficacité de détection $\varepsilon(E_{\gamma})$, erreurs statistiques sur le spectre d'amplitude propagées lors de la déconvolution du spectre.
- du spectre calculé : l'une des sources d'erreur provient de l'extrapolation de la fonction $f(E_{\gamma})$ entre $E_{\gamma}=0$ et E_{\min} . Une estimation de l'influence sur le spectre calculé peut être obtenue à partir de deux variations extrêmes de cette fonction dans l'intervalle considéré. La seconde source importante d'erreur est due à la densité de niveaux. Un changement de la densité de niveaux modifie la forme du spectre primaire dans la région de l'extrapolation ; il en résulte un rapport R différent. Nous avons donc tenu compte de la formulation utilisée pour la densité de niveaux dans l'estimation de l'erreur sur le spectre calculé.

L'erreur finale sur la section efficace $\sigma_{n\gamma}$ est calculée en supposant que les erreurs sur les facteurs intervenant dans l'éq. 63 ne sont pas corrélées.

3. Applications de la méthode à la réaction 197 Au (n,γ) .

L'échantillon de 6 cm de diamètre a une épaisseur de 1,5 mm (poids d'environ 82 g.).

La section efficace de capture a été mesurée aux énergies suivantes : 0.52 - 0.72 - 0.94 - 2.5 et 3.0 MeV. Nous avons également utilisé une cible de lithium pour produire les neutrons de 720 keV de sorte que la section efficace obtenue doit être corrigée pour tenir compte de la contribution des neutrons de 275 keV produits par la réaction ${}^{7}\text{Li}(p,n_1){}^{7}\text{Be}^{*}$. Cette extrection est de l'ordre de 6%.

Les facteurs de correction à appliquer aux résultats bruts sont présentés dans le tableau I. Les coefficients d'absorption A_{γ} , dépendant de l'énergie E_{γ} , ont été introduits lors du calcul de la forme du spectre. Dans le tableau II sont reportées les différentes erreurs intervenant dans l'incertitude sur la section efficace de capture corrigée ; dans les calculs d'erreurs, nous avons défini l'erreur par la déviation standard. L'une des principales contributions provient de l'erreur statistique sur le spectre d'amplitude, erreur importante pour $E_{\eta} = 3$ MeV (de l'ordre de 25%) et plus particulièrement pour le mode PE (l'efficacité pour ce mode étant faible dans la région importante $E_{\gamma} = 3$ à 5 MeV).

La seconde contribution importante est apportée par la densité de niveaux utilisée pour le calcul de la forme su spectre. L'ensemble des calculs a été fait en utilisant l'équation 51 du paragraphe VIII-4 avec les paramètres :

$$\Delta = -1,04 \text{ MeV}$$

a = 17,38 MeV⁻¹

paramè res que nous avons déduits des données les plus récentes concernant le noyau 198 Au. Pour tester l'influence de la densité de niveaux nous avons utilisé une paramétrisation de la forme :

$$\rho = A \exp \left[U/T \right] \tag{64}$$

avec une température T = 0,75 MeV, valeur utilisée par Bartholomew et al. [18].

Les figures 14 et 15 représentent les spectres primaire et total calculés pour $E_n=0.72$ MeV et $E_n=2.5$ MeV , respectivement. La forme du spectre calculé est identique à celle du spectre obtenu expérimentalement entre l'énergie $E_{\min} \gtrsim E_n$ et E_{\max} .

Nous avons représenté sur la figure 16 la fonction $f(E_{\gamma})$ déduite du spectre obtenu à $E_n=0.52$ MeV avec une densité de niveaux donnée par l'éq. 51. L'ajustement sur le spectre expérimental est fait à partir de $E_{\min}=1.5$ MeV. Les calculs de section efficace sont faits en supposant une valeur constante de $f(E_{\gamma})$ entre 0 et 1.5 MeV. L'influence de l'extrapolation de cette fonction est donnée en considérant les extrapolations extrêmes représentées sur la figure. L'effet sur la section efficace est assez faible, de l'ordre de 2%.

Les résultats de nos mesures sont rassemblés dans le tableau III. L'erreur sur l'énergie des neutrons tient compte de la perte d'énergie des protons incidents dans la cible de lithium ou de titane tritié et de l'ouverture angulaire de l'échantillon, l'énergie moyenne des neutrons sur l'échantillon étant donnée par :

$$\langle E \rangle = \frac{\int_0^{\theta_{\text{max}}} \phi(E) E dE}{\int_0^{\theta_{\text{max}}} \phi(E) dE}$$
 (65)

Les sections efficaces sont calculées pour les deux modes de fonctionnement. L'analyse des données et les efficacités du spectromètre pour chaque mode étant indépendantes, il est possible de déduire une section efficace pondérée par l'erreur sur chaque résultat partiel. Cette erreur englobe l'erreur statistique sur les spectres d'amplitude et l'erreur sur l'efficacité $\varepsilon(E)$ que nous avons prise égale à 0% pour chaque mode et pour toute la gamme d'énergie E. Du fait de la meilleure statistique obtenue avec le mode AT, le résultat final dépend essentiellement de ce mode. Les sections efficaces obtenues à partir des deux modes de fonctionnement sont assez voisines (écart relatif inférieur à 10%).

4. Comparaison avec les autres méthodes.

Nos résultats sont comparés sur la figure 17 aux mesures de Poenitz [23], Lindner et al. [24] dans le même domaine d'énergie et à l'évaluation récente de Mughabghab [25]. L'accord est très satisfaisant pour $E_n=0.52-0.72$ et 2,5 MeV, par contre, nos valeurs sont plus faibles pour $E_n=1$ et 3 MeV.

Poenitz utilise un gros sc.ntillateur liquide de 1300 l. pour la détection des rayonnements γ. Dans ette technique, la précision des mesures est limitée par l'incertitude sur l'efficacité de détection qui dépend de deux facteurs :

- la probabilité d'interaction des rayonnements γ dans le scintillateur.
- l'extrapolation du spectre observé jusqu'à l'amplitude zéro.

La précision des mesures de Poenitz varie de 10% à $E_n=0.7$ MeV à 11% à $E_n=2.5$ MeV contre 8% et 15% respectivement pour nos mesures, la précision est donc assez comparable. La durée d'une mesure est cependant beaucoup plus courte avec le gros scintillateur qui peut être considéré comme un détecteur 4π .

Lindner et al. utilisent 1 méthode d'activation. Les sections efficaces de capture sont déterminée relativement aux sections efficaces de fission de 235 U évaluées dans ENL /B-IV. Le précision des mesures est excellente ($\Delta\sigma/\sigma < 3\%$) mais l'énergie des neutrons n'est pas très bien définie ($\Delta E_{\rm n}/E_{\rm n} \gtrsim 25\%$).

La méthode du spectre intégré apporte également des informations sur la dépendance en énergie de la probabilité d'émission gamma ce que ne permettent pas les deux méthodes pre édentes.

Nous n'avons pas mentionn les mesures pour lesquelles $E_n \leqslant 600$ keV et utilisant d'autres techniques de détection des rayonnements de capture ; une vibliographie complète est fait dans la compilation de Mughabghab [25].

X - CONCLUSION -

Au vu des résultats obtenus avec l'or, la méthode du spectre intégré semble donner des résultats satisfaisants. Rappelons qu'à notre connaissance, cette méthode est utilisée pour la première fois pour la détermination de sections efficaces totales de capture.

Les mesures de sections efficaces de capture radiative sont parmi les plus difficiles à entreprendre, dans le domaine des données neutroniques, du fait des faibles sections efficaces à mesurer et de l'importance des rayonnements parasites (neutrons et rayonnements γ). Toutes les méthodes utilisées jusqu'à présert font appel à des détecteurs de grande efficacité γ et (ou) de grand angle solide de détection, proche de 4π (gros scintillateur liquide, détecteur de Maier-Leibnitz). De plus,une bonne réponse en temps du détecteur permet de discriminer par la méthode du temps de vol les rayonnements parasites des rayonnements de capture.

Le détecteur NaI possède une bonne efficacité intrinsèque de détection des rayonnements γ (pour $E_{\gamma} <$ 12 MeV) mais la géométrie du dispositif expérimental nous impose un angle solide de détection très petit ce qui nécessite des durées de mesure assez longues (de l'ordre de 20 h. pour o $_{n\gamma} \sim$ 100 mb). L'extrapolation du spectre expérimental en dessous du seuil de détection ne semble pas très critique quant au résultat. Par contre une meilleure connaissance des densités de niveaux permettrait de diminuer l'erreur qui en résulte sur la section efficace et permettrait également de déterminer la fonction d'intensité gamma f(E_{\gamma}) avec plus de précision.

L'hypothèse de l'isotropie des rayonnements de capture pourrait être vérifiée pour un élément et une énergie donnés en détectant les rayonnements de capture à plusieurs angles par rapport à la direction des neutrons incidents.

Des mesures ont été faites entre 0,5 et 3 MeV pour les éléments suivants : Au, Ir, Rh, Tm, 182 W, 183 W, 184 W, 186 W et 203 Tl, 205 Tl. L'analyse des données est en cours.

Nous remercions vivement Monsieur A. MICHAUDON, qui a proposé cette nouvelle méthode de mesure des sections efficaces de capture, pour l'intérêt constant qu'il a porté à la mise au point de la méthode et pour les facilités accordées au cours de ce travail. Nous remercions également MM. DUBOIS, MEUNIER et PENNARUN pour le bon fonctionnement de l'accélérateur, Mme GUILLOUD et M. de PENQUER pour l'acquisition et le traitement des données, ainsi que MM. DUIGOU, GIMAT et PARISOT pour leur participation aux mesures.

REFERENCES

- [i] BERGQVIST I., DRAKE D.M., et McDANIELS D.K., Nucl. Phys. 191 (1972) 641.
- [2] LINDHOLM A. et al., Nucl. Plys. A279 (1977) 445.
- [3] LEROY J.L. et al., Nucl. Instr. Meth. 88 (1970) 1.
- [4] VALERO S., communication privée.
- [5] LUSSIGNOL M., Thèse 3ème cycle, Orsay. (1971).
- [6] SCOTT A.L., et LUSBY T.F., Can. J. Phys. 44 (1966) 3075.
- [7] AZUMA R.E. et al., Nucl. Instr. and Meth. 131 (1975) 517.
- [8] MEYER M.A., et WOLMARANS N.S., Nucl. Phys. A136 (1969) 663.
- [9] FORSYTHE G., et MOLER C.B., Computer Solution of Linear Algebraic Systems, (Prentice-Hall, New York, 1967).
- [10] TROMBKA J.I., Applications of Computers to Nuclear and Radiochemistry (Gatlinburg, 1962).
- [11] MONAHAN J.E., Scintillation Spectroscopy of Gamma Radiation édité par SHAFROTH S.M., (Gordon and Breach-New York, 1967), p. 371.
- [12] TASTE J., Note CEA-N 1877 (1976).
- [13] STORM E., et ISRAEL H., Nucl. Data Tables 7 (1970) 565.
- [14] LISKIEN H., et PAULSEN A., Nucl. Data Tables 11 (1973) 570.
- [15] GARDNER R.P., et VERGHESE K., Nucl. Instr. Meth. 93 (1971) 163.

- [16] MESSIAH A., Mécanique quantique (Dunod éditeur Paris, 1964) Tome II, p. 620.
- [17] BLATT J.M., et WEISSKOFF V.F., Theoretical Nuclear Physics, (John Wiley and Sons, New York, 1952).
- [18] BARTHOLOMEW G.A. et al., Advances in Nuclear Physics 7 (1973) 229.
- [19] HUIZENGA J.R., dans Statistical Properties of Nuclei, édité par GARG J.B. (Plenum Press, New York, 1972), p. 425.
- [20] GILBERT A., et CAMERON A.G.W., Can. J. Phys. 43 (1965) 1446.
- [21] DIIG W. et al., Nucl. Phys. A217 (1973) 269.
- [22] STARFELT N., Nucl. Phys. 53 (1964) 397.
- [23] POENITZ W.P., Nucl. Sci. Eng. 57 (1975) 300.
- [24] LINDNER M., NAGLE R.J. et LANDRUM J.H., Nucl. Sci. Eng. 59 (1976) 381.
- [25] MUGHABGHAB S.F., Rapport BNL-NCS-21774.

Manuscrit reçu le 29 septembre 1977

Energie des neutrons (MeV)	A ₁	A ₂	A3	А _Ц	A ₅	$C = \prod_i A_i$
0,52	1,037	0,939	1,032	0,897	0,955	0,861
0,72	1,042	0,967	1,017	0,934	0,964	0,923
1,00	1,053	0,948	1,027	0,906	0,946	0,879
2,50	1,082	0,926	1,039	0,882	0,978	0,898
3,00	1,079	0,949	1,026	0,908	0,975	0,930

TABLEAU_I

CORRECTIONS APPLIQUEES AUX SECTIONS EFFICACES DE CAPTURE.

A, anisotropie de la source de neutrons.

 ${\it A_{2}}$ absorption des neutrons dans l'échantillon.

A₃ auto-absorption des neutrons dans l'échantillon.

 ${\bf A}_4$ diffusion multiple des neutrons dans l'échantillon.

 A_5 absorption des neutrons dans l'air.

. 17

erreur relative (%)

Anisotropie de la source de neutrons	0,2
Absorption des neutrons dans l'échantillon	0,2
Auto-absorption des neutrons dans l'échantillon	0,1
Diffusion multiple des neutrons	0,5
Absorption des neutrons dans l'air <	0,1
Distance cible-échantillon	1,5
Masse de l'échantillon <	0,1
Efficacité du long compteur directionnel,	2 - 4
Distance cible-long compteur <	0,5
Efficacité de détection du spectromètre γ	6
Erreur statistique	1,5-26
Densité de niveaux	5 - 10
Extrapolation de la fonction $f(E_{\gamma})$	1,5 - 2
·	
Erreur relative sur o	9 - 30

TABLEAU II

CONTRIBUTIONS A L'ERREUR SUR LA SECTION EFFICACE DE CAPTURE.

Energie des neutrons (MeV)	mode du spectromètre	section efficace calculée (mb)	section efficace corrigée (mb)	moyenne pondérée	section efficace finale (mb)
		a)	a)	a)	ъ)
0,52 ± 0,08	PE	155,7 ± 10,9	134,0 ± 9,4	125 1 1 6 2	135,1 ± 10,8
	TA	158,0 ± 9,8	136,0 ± 8,4	135,1 ± 6,3	
0,72 ± 0,08	PE	125,5 ± 10,4	106,9 ± 8,9		110,0 ± 9,2
	TA	131,5 ± 8,7	112,0 ± 7,4	110,0 ± 5,7	
0,94 ± 0,07	PE	77,8 ± 13,3	68,4 ±11,7	(2.4.1.5.7	63,1 ± 6,9
	TA	69,9 ± 7,5	61,4 ± 6,6	63,1 ± 5,7	
2,50 ± 0,06	PE	43,5 ± 7,3	39,1 ± 6,5	27.02.6	37,2 ± 5,7
	ΑT	40,6 ± 4,8	36,4 ± 4,3	37,2 ± 3,6	
3,00 ± 0,05	PE	18.,9 ± 5,1	17,6 ± 4,7	16.2	16.2.1
	AT	17,1 ± 2,8	15,9 ± 2,6	16,3 ± 2,3	16,3 ± 3,4

TABLEAU III

SECTIONS EFFICACES DE CAPTURE DE Au.

a) l'erreur tient compte de l'erreur statistique et de l'erreur sur l'efficacité de détection

b) $_{1'incertitude\ englobe\ toutes\ les\ erreurs\ mentionnées\ dans\ le\ Tableau\ II.}$

LEGENDE DES FIGURES

- <u>FIGURE 1</u>: Dispositif expérimental utilisé pour les mesures de sections efficaces de capture,
- <u>FIGURE 2</u>: Schéma fonctionnel de l'électronique associée au spectromètre gamma.
- FIGURE 3: Matrice TdV *AT avant (a) et après (b) correction de la dérive du temps de vol due aux rayonnements γ de faible énergie. Les abcisses représentent le temps de vol avec une pente de 0,44 ns par canal.
- FIGURE 4: Spectre de temps de vol pour la réaction 197 Au(n, γ) à E_n = 0,52 MeV avant et après correction de la dérive. L'échantillon a la forme d'un disque de 6 cm de diamètre et 1,5 mm d'épaisseur. La correction de dérive a pour effet d'améliorer la résolution en temps.
- FIGURE 5: Spectres d'amplitude des rayonnements gamma de la réaction $^{197}\mathrm{Au}(\mathrm{n},\gamma)$ à $\mathrm{E_n}=0.72$ MeV. Les spectres supérieur et inférieur sont obtenus, respectivement, avec et sans échantillon et sont normalisés au même flux de neutrons. Seule la partie du spectre ne contenant que des rayonnements de capture $(\mathrm{E_y} \geqslant \mathrm{E_n})$ est représentée sur la figure.
- FIGURE 6: Spectres d'amplitude obtenus avec et sans échantillon d'or pour E_n = 2,5 MeV. Voir légende Fig.5.
- <u>FIGURE 7</u>: Organigramme du traitement des données permettant d'obtenir la section efficace de capture.
- FIGURE 8: Spectres d'amplitude des rayonnements de 6,13 MeV produits par la réaction 19 F(p, $\alpha\gamma$) 16 O pour les 2 modes de fonctionnement du spectromètre. L'influence des extrêmités du cristal annulaire se manifeste, dans le mode AT, par une remontée de la distribution Compton aux petites et aux grandes énergies.

- FIGURE 9: Matrice de réponse du spectromètre fonctionnant dans le mode AT pour des rayonnements γ de différentes énergies. Nous n'avons représenté, pour alléger la figure, que les fonctions de réponse pour E_γ = 1 à 12 MeV par rus de 1 MeV, alors que la matrice complète est construite par pas de 250 keV.
- FIGURE 10: Matrice de réponse du spectromètre fonctionnant suivant le mode de premier échappement (PE\). Par ailleurs, voir la légende de la figure 9.
- FIGURE 11: Efficacité de détection du spectromètre pour les modes antiCompton et de premier échappement en fonction de l'énergie E_{\gamma}.

 Cette efficacité correspond aux évènements contenus respectivement dans le pic d'absorption totale (AT) et le pic de premier échappement.
- FIGURE 12: Efficacité totale du spectromètre pour les deux modes de fonctionnement en fonction le l'énergie E_γ. Toute la fonction de réponse (au dessus du seuil) est prise en compte pour la détermination de l'efficacité.
- FIGURE 13 : Spectre d'amplitude des ra onnements de capture obtenu pour le mode AT à E_n = 0,52 MeV et spectre déconvolué.
- FIGURE 14: Spectre calculé des rayonnaments primaires émis après la capture de neutrons de 0,72 MeV par 197 Au. Le spectre total est ajusté au spectre expérimental entre 1,5 MeV et l'énergie maximale de 7,2 MeV.
- FIGURE 15: Spectres primaire et total pour $E_n = 2.5$ MeV. L'ajustement est fait entre 2.5 MeV et l'ér rgie maximale de 9 MeV.
- FIGURE 1: Fontion d'intensité gamma f(F) déduite de la forme du spectre de capture entre 1,5 et 7 MeV à E_n = 0,52 MeV. Les différentes extrapolations de la fonction entre 0 et 1,5 MeV sont représentées par les deux courbes 1 et 2.

FIGURE 17 : Comparaison de nos yaleurs ayec les valeurs obtenues récemment en utilisant d'autres techniques et avec l'évaluation ENDF/B-V.

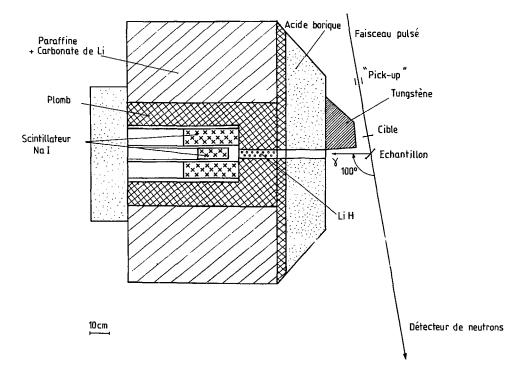


FIG.1

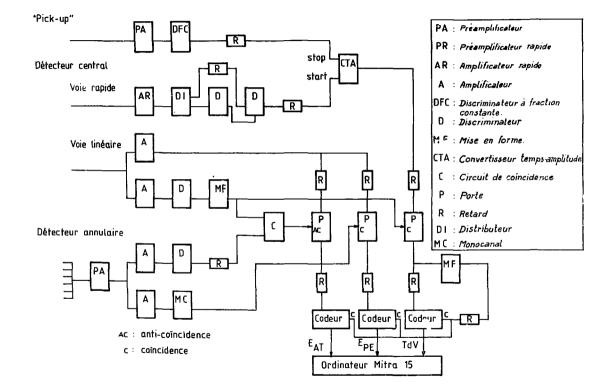
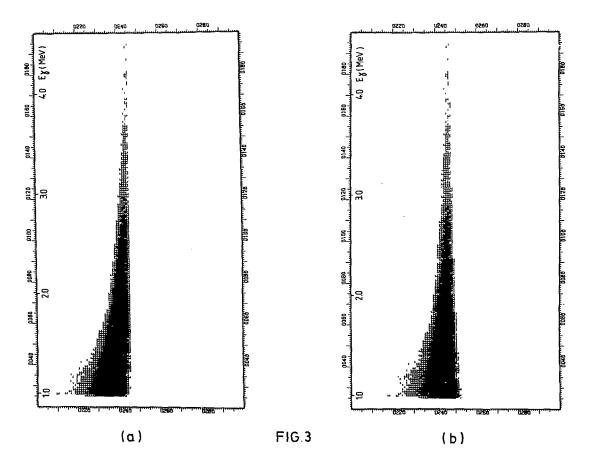


FIG. 2



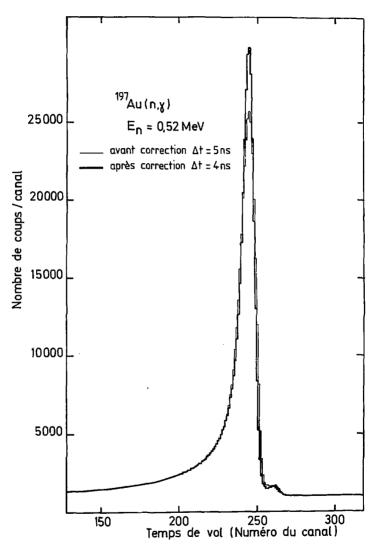
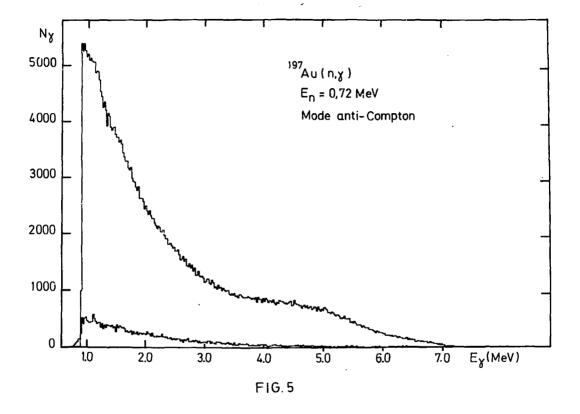
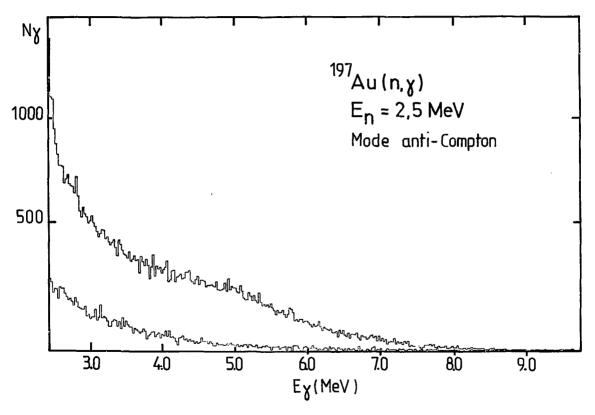


FIG.4





- 58 -

FIG.6

TRAITEMENT DES DONNEES

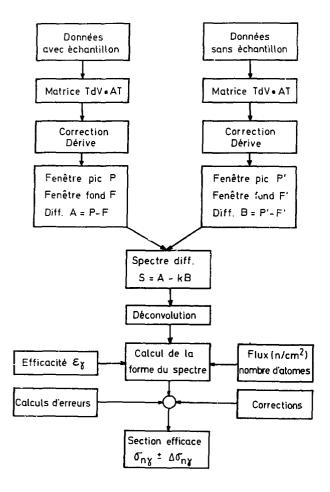
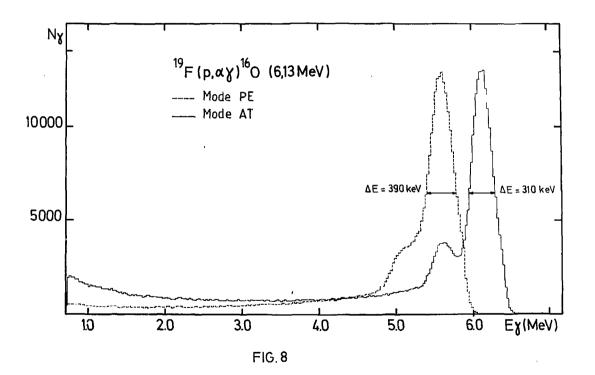


FIG. 7



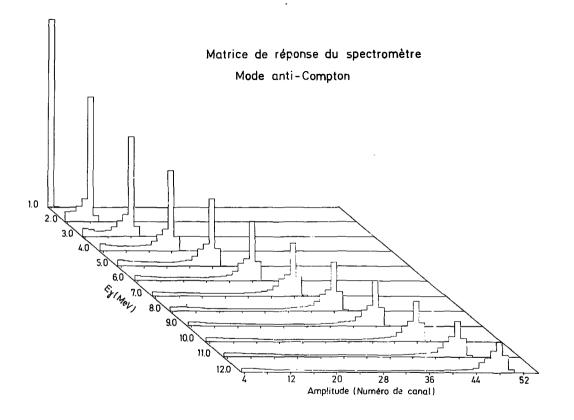


FIG.9

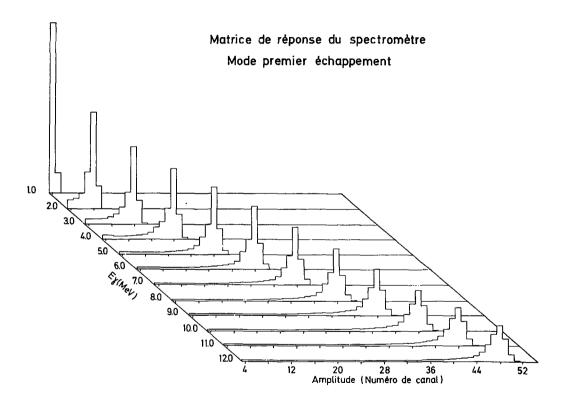
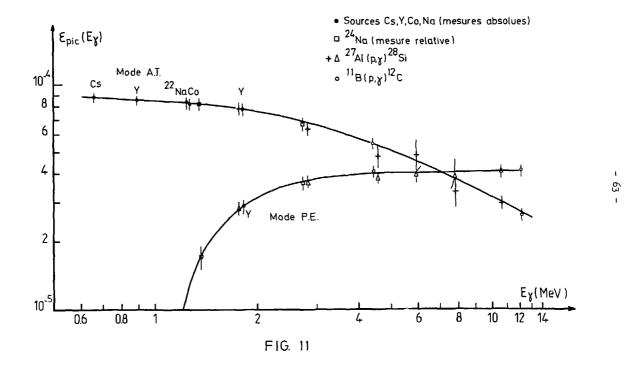
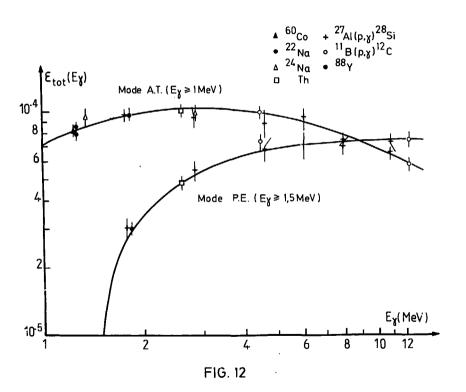


FIG. 10





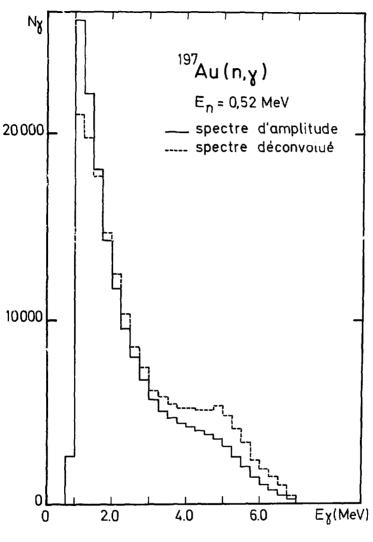
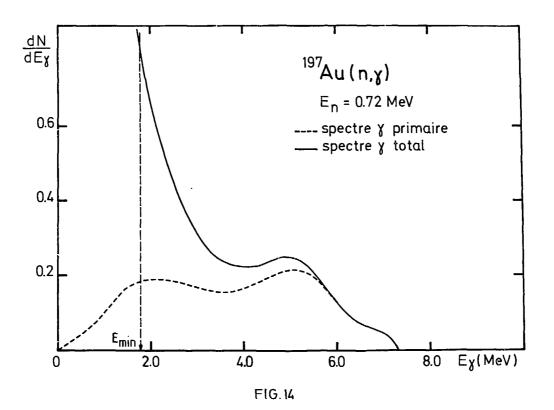
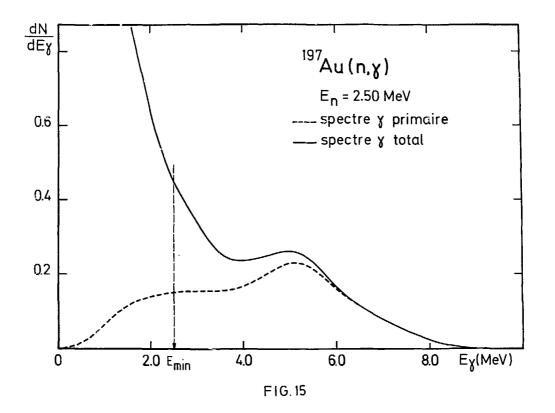


FIG. 13





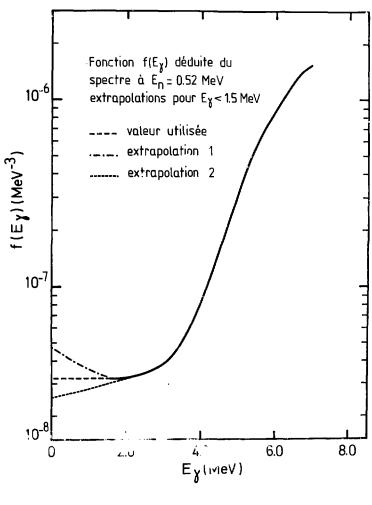
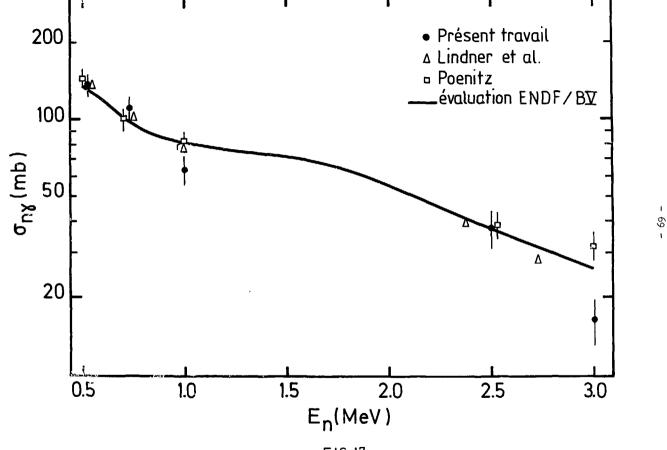


FIG. 16



F1G.17

Achevé d'imprimer par le CEA_. Service de Documentation, Saclay Novembre 1977

> DEPOT LEGAL 4ème trimestre 1977

La diffusion, à titre d'échange, des rapports et bibliographies du Commissariat à l'Energie Atomique est assurée par le Service de Documentation, CEN-Saclay, B.P. n° 2, 91 190 - Gif-sur-Yvette (France).

Ces rapports et bibliographies sont également en vente à l'unité auprès de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, 75007 - PARIS.

Reports and bibliographies of the Commissariat à l'Energie Atomique are available, on an exchange basis, from the Sarvice de Documentation, CEN-Saclay, B.P. nº 2, 91 190 - Gif-sur-Yvette (France).

Individual reports and bibliographies are sold by the Documentation Française, 31, quai Voltaire, 75007 - PARIS.

Edité par le Service de Documentation Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay Boîte Postale nº 2 91190 - Gif-sur-YVETTE (France)

22