

**EXPÉRIENCE CIRENE
DESCRIPTION ET RÉSULTATS**

par

**Xavier LEDOUX, J. SIGAUD, J.P. LOCHARD,
Y. PATIN, P. PRAS, C. VARIGNON**

J.M. LABORIE, Y. BOULIN

CEA/DAM - DIRECTION ILE-DE-FRANCE

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE THÉORIQUE
ET APPLIQUÉE

SERVICE DE PHYSIQUE NUCLÉAIRE

DÉPARTEMENT ANALYSE SURVEILLANCE
ENVIRONNEMENT

SERVICE RADIOANALYSE CHIMIE
ET ENVIRONNEMENT

DIRECTION DES SYSTEMES
D'INFORMATION



**RAPPORT
CEA-R-6030**

2003

- Rapport CEA-R-6030 -

CEA/DAM – Direction Ile de France
Département de Physique Théorique et Appliquée
Service de Physique Nucléaire
Département Analyse Surveillance Environnement
Service Radioanalyse Chimie et Environnement *

EXPÉRIENCE CIRENE
DESCRIPTION ET RÉSULTATS

par

Xavier LEDOUX, J. SIGAUD, J.P. LOCHARD, Y. PATIN
P. PRAS, C. VARIGNON

J.M. LABORIE, Y. BOULIN *

- Juin 2003 -

**RAPPORT CEA-R-6030 – LEDOUX X, SIGAUD J, LOCHARD J. P, PATIN Y,
PRAS P, VARIGNON C.
LABORIE J. M, BOULIN Y.**

«Expérience CIRENE, description et résultats»

Résumé - La création d'isomères par capture neutronique à l'énergie des résonances a été étudiée avec le spectromètre à ralentissement du plomb CIRENE. La mesure inédite du rapport isomérique de huit noyaux a permis la détermination du spin des noyaux composés à l'énergie de liaison S_n . Une expérience originale sur le ^{177}Lu a mis en évidence l'influence du spin d'une résonance sur la probabilité d'alimentation de l'isomère. La mesure du flux de neutrons dans le massif, des projections sur la production d'une cible isomérique par cette méthode et le fonctionnement en mode pulsé sont présentés.

Descripteurs : Isomères, capture neutronique, résonance, spectromètre

2003 – Commissariat à l'Énergie Atomique – France

**RAPPORT CEA-R-6030 – LEDOUX X., SIGAUD J., LOCHARD J. P., PATIN Y.,
PRAS P., VARIGNON C.
LABORIE J. M., BOULIN Y.**

«CIRENE experiment, description and results»

Abstract - The creation of isomeric nuclei by neutron capture in the resonances energy range has been studied with the lead slowing down spectrometer CIRENE. The isomeric ratio measurement of 8 nuclei allows to determine the spin of the compound nucleus at the binding energy S_n . An experiment on ^{177}Lu underline the role of the spin of a resonance on the isomeric state alimentation. The neutron flux measurement inside the lead pile, projections on the production of an isomeric target by this method and the pulsed working mode are also presented.

2003 – Commissariat à l'Énergie Atomique – France

Expérience CIRENE, description et résultats.

Par

X. LEDOUX, J. SIGAUD, J. P. LOCHARD, Y. PATIN, P. PRAS, C. VARIGNON

SERVICE DE PHYSIQUE NUCLEAIRE

J. M. LABORIE, Y. BOULIN

SERVICE RADIOANALYSE, CHIMIE ET ENVIRONNEMENT

DIRECTION DES APPLICATIONS MILITAIRES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE THEORIQUE ET APPLIQUEE

ET

DEPARTEMENT ANALYSE SURVEILLANCE ENVIRONNEMENT

CEA/ DAM ILE DE FRANCE

Introduction.....	5
I Dispositif expérimental.....	6
I.1 Le massif de plomb	6
I.2 La cible de production des neutrons	8
I.3 Echantillons et détecteurs	9
II Détermination du flux de neutrons	10
II.1 Mesures	10
II.2 Simulations	11
II.3 Résultats	13
III Création d'isomères	18
III.1 Critères de sélection des isomères	18
III.2 Mesure de rapports isomériques	18
III.3 Cas du Lutécium 177	21
IV Production d'une cible isomérique :.....	23
IV.1 Candidats isomères	23
IV.2 Transposition de la méthode à d'autres installations.....	25
V Fonctionnement en spectromètre	26
V.1 Principe, simulations	26
V.2 Application aux mesures par transmission.....	29
Conclusions	30
ANNEXE 1 : Calcul du nombre de captures dans un échantillon soumis à un flux neutronique homogène	33
1 Echantillon simple	33
2 Application au sandwich :.....	34
ANNEXE 2 : détermination du nombre de captures pendant une irradiation.	35
1 Pendant l'irradiation ($t < t_i$).....	35
2 Après l'irradiation $t > t_i$	36
ANNEXE 3: Détermination du rapport isomérique	37
1 Bilan du nombre de noyaux :.....	37
2 Détermination du rapport isomérique :.....	38
Bibliographie.....	41

Introduction

La création de noyaux dans un état isomérique (que nous appellerons isomères dans la suite) par capture neutronique a été étudiée dans le passé avec des neutrons thermiques [1-2], les irradiations étant réalisées auprès de réacteurs nucléaires. L'un des résultats essentiels étant dans ce cas la détermination du rapport isomérique RI, défini comme le rapport de la section efficace de production de l'isomère σ^m sur la section efficace de production des noyaux dans leur état fondamental σ^g . La plupart des éléments lourds présentent des résonances dans les sections efficaces de capture dans la zone 0.1 eV-1 keV environ, les valeurs de certaines résonances dépassant la dizaine de milliers de barn. On peut donc envisager un gain important dans la quantité d'isomères créés, si les réactions de capture ont bien lieu dans la région des résonances plutôt qu'à l'énergie thermique.

Les résonances étant étroites une forte probabilité de capture ne peut être obtenue qu'en utilisant des neutrons de haute énergie ralentis par de très petits sauts en énergie, on parle alors de ralentissement adiabatique. Cet objectif est atteint en utilisant une source intense de neutrons entourée d'un massif de plomb. En effet le plomb possède la double propriété d'être un élément de masse élevée (indispensable au ralentissement adiabatique par diffusion élastique) et de posséder une très faible section efficace de capture. L'énergie initiale des neutrons source importe peu car après quelques diffusions inélastiques (dès que l'énergie des neutrons est inférieure à environ 500 keV) le ralentissement adiabatique commence. L'énergie du neutron diminue à chaque choc élastique d'environ 1 %, et l'énergie thermique n'est atteinte qu'après quelques milliers de chocs [4-5]. Cette technique a souvent été utilisée par le passé pour des mesures de sections efficaces [6-8] ou des études sur la transmutation des déchets nucléaires [9-11]. Ces mesures utilisent la relation « énergie moyenne des neutrons - temps de ralentissement » permettant d'atteindre des flux beaucoup plus intenses que par une méthode de temps de vol classique bien que la résolution en énergie soit beaucoup moins bonne. L'objectif de CIRENE (Création d'Isomères dans les Résonances Neutroniques) est d'étudier la création d'isomères par capture neutronique dans les résonances.

A titre d'exemple, la figure 1 représente la section efficace de capture du tungstène 186, le spectre des neutrons dans CIRENE ainsi que le nombre de captures cumulé obtenu en intégrant tout le domaine en énergie vers les énergies décroissantes. On remarque que 89 % des réactions ont lieu dans la résonance, malgré un flux neutronique thermique important.

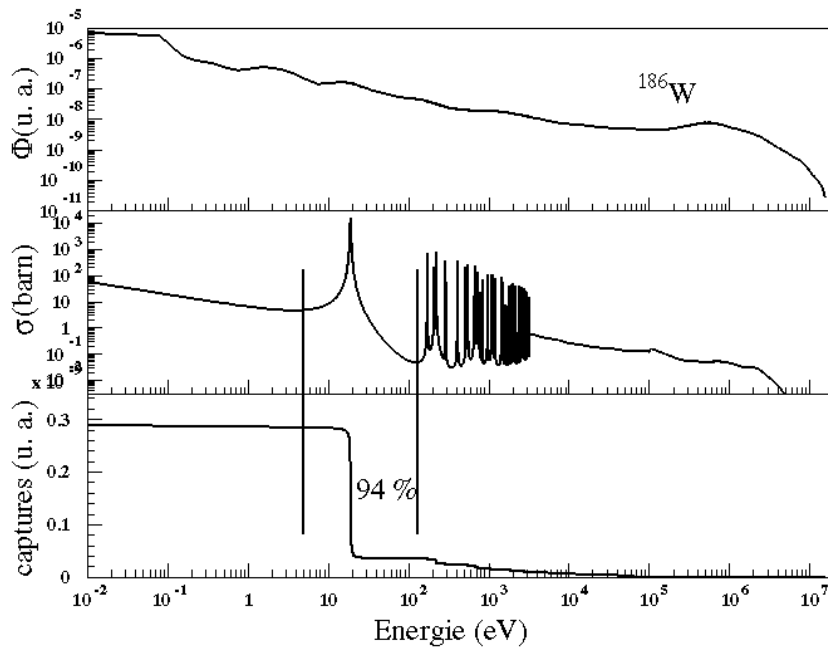


Figure 1 : Flux de neutrons dans CIRENE, section efficace de capture du ^{186}W et nombre de captures intégré.

Dans ce document nous décrivons le dispositif expérimental et les méthodes utilisées pour déterminer le flux de neutrons. Dans les chapitres suivants les isomères étudiés sont passés en revue et les mesures inédites de rapports isomériques pour des énergies résonnantes de neutrons sont présentées. Des projections sur une fabrication de cibles isomériques sont ensuite proposées. Enfin dans un dernier chapitre nous exposons les mesures réalisées en mode spectromètre à ralentissement de plomb.

I Dispositif expérimental

I.1 Le massif de plomb

CIRENE est un massif de plomb cubique de 1,2 m d'arête. Il est composé de 36 cubes ($30 \times 30 \times 40 \text{ cm}^3$) de 542 kg pour un poids total de 19 t. Les cubes ont été coulés à la fonderie de Gentilly et sont composés de plomb récupéré dans les batteries dont la composition chimique est donnée tableau I.1. L'antimoine, habituellement utilisé pour durcir le plomb, a été proscrit à cause des fortes sections efficaces de captures résonnantes que présente cet élément.

Pb	Ag	Bi	As	Cd	Cu	Ni	Sb	Sn	Zn	Te	Se	S	Fe
99.9703	0.0028	0.0223	0.0003	0.0001	0.0001	0.0003	0.0003	0.0003	0.0001	0.0001	0.0007	0.0007	0.0010

Tableau I.1 : Composition chimique en pourcentage massique du massif de plomb.

Son installation dans la salle LA02 (voir photo I.1) du tandem a nécessité la construction d'une plate-forme pouvant supporter 50 t. Chaque cube est manipulé par un outil spécialement dédié et manœuvré par le pont roulant (voir photo I.2).



Photo I.1 : Vue de la partie inférieure du massif (en partie démonté) avec l'extension faisceau.

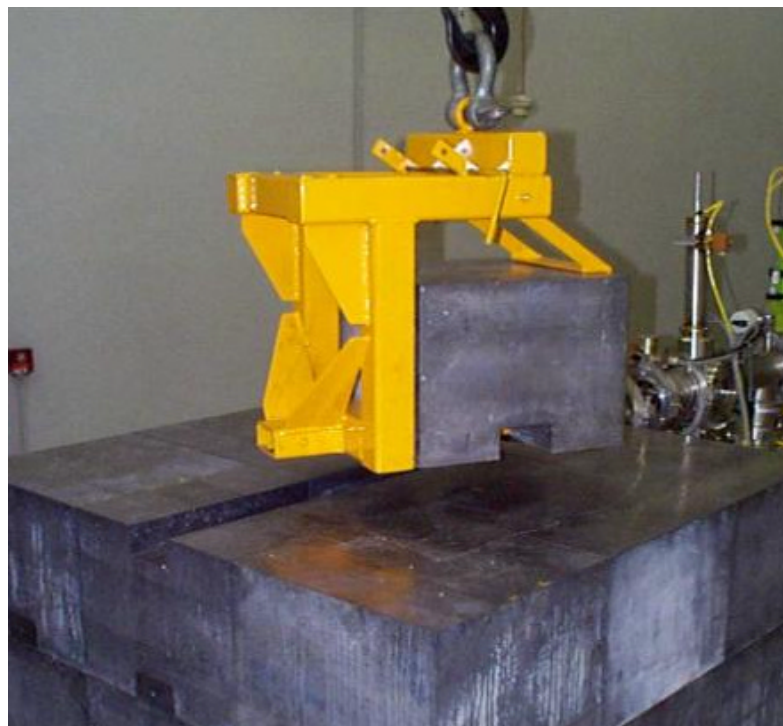


Photo I.2 : Outil de manipulation des blocs de plomb.

Lors d'un démontage total ou partiel les éléments sont entreposés au sous-sol de LA02. Le massif repose sur une dalle en polyéthylène de 10 cm d'épaisseur et de 1,2 m d'arête utilisée à l'origine comme réflecteur de neutrons. Cette plaque a surtout eu pour

effet de produire un intense flux de neutrons thermiques et de briser la symétrie haut-bas du cube rendant les simulations plus complexes.

1.2 La cible de production des neutrons

Une étude préliminaire a montré que la production de neutrons la plus efficace avec les accélérateurs du DPTA est obtenue en bombardant une cible épaisse de Be (1 mm) par un faisceau de deutons de 10 à 12 MeV. Un disque de Be a été brasé sur un porte cible en aluminium spécialement conçu (voir photo I.3) pour cette application. L'ensemble cible-porte cible devait respecter les conditions suivantes : supporter un dépôt d'énergie important et ne pas comporter de matériaux risquant de générer des produits radioactifs rendant toute intervention délicate.



Photo I.3 : Cible refroidie par liquide.

La première condition est réalisée en équipant la cible d'un système de refroidissement liquide. Le « coolanol » a été préféré à l'eau pour sa meilleure neutralité électrique. La réfrigération est assurée par un appareil de marque LAUDA d'une puissance de 500 W. De plus l'utilisation couplée des plaques de déviation faisceau et d'un générateur de fréquence permet de produire un balayage du faisceau sur la pastille de béryllium. Le risque d'échauffement ponctuel, qui pourrait entraîner une vaporisation de béryllium dans la ligne de faisceau, est ainsi réduit. Des sécurités sur la température et la pression de circulation du liquide de refroidissement permettent de couper instantanément le faisceau en cas de dysfonctionnement du système de réfrigération.

La seconde contrainte a nécessité la construction du corps de la cible et la partie de la ligne située à l'intérieur du cube en aluminium. En effet, ces éléments sont soumis aux neutrons issus de la réaction $d+Be$ (quelques MeV), aux neutrons thermiques et de résonance présents dans le cube. Ainsi les matériaux comportant du fer, du nickel ou du cuivre ont dû être écartés au profit de l'aluminium. Parmi les éléments radioactifs créés par irradiation neutronique sur l'aluminium, seul le ^{24}Na peut être produit en quantité importante par réaction (n,α) , mais sa période radioactive est suffisamment courte

($T_{1/2} = 14.96$ h) pour permettre toute intervention sur la cible après quelques jours de « refroidissement ». De plus sa bonne conductibilité thermique (équivalente à celle du béryllium) favorise l'évacuation de la chaleur déposées dans la cible par le faisceau.

La cible en aluminium est isolée électriquement du reste de l'extension faisceau pour rendre possible la mesure du courant induit par le faisceau sur la cible.

Afin de réduire la taille du massif de plomb un pré-ralentisseur en polyéthylène a été conçu pour entourer la cible afin de casser rapidement l'énergie des premiers neutrons. Cet élément a été abandonné par la suite car il produisait une composante de neutrons thermiques importante (voir chapitre II).

1.3 Echantillons et détecteurs

Chaque bloc de plomb dispose d'une échancrure rectangulaire de $h = 5$ cm et $l = 10$ cm utile à la manipulation (voir photo I.2) et servant de canal d'irradiation. Ces canaux sont dimensionnés pour recevoir des briques de plomb rectangulaires standard ($h = 5$ cm, $L = 20$ cm, $l = 10$ cm). Certaines briques sont usinées pour recevoir les échantillons ou pour les détecteurs de neutrons placés dans le massif (voir photos I.4 et I.5).



Photo I.4 : Brique porte-échantillons et coupelle en plomb.

Les échantillons à irradier sont déposés par évaporation sur de fines coupelles en plomb très pur (l'activation de certaines impuretés peut générer des raies gamma parasites). La composition chimique de ces coupelles est donnée tableau I.2.

Elément	Ag	Bi	Cd	Cu	Fe	Mg	Sn	Tl
PPM	20	100	2	20	2	<1	70	5

Tableau I.2: Impuretés contenues dans le plomb des coupelles.

Une coupelle posée sur une brique est visible photo I.4. Nous avons vérifié théoriquement (simulations MCNP) et expérimentalement que les flux de neutrons dans

CIRENE ne créait pas d'éléments radioactifs gênants par réaction sur les impuretés contenues dans les coupelles.

Des détecteurs à ^3He sont placés à divers endroits du massif pour suivre les variations du flux de neutrons dans le temps. Un circuit électronique type constitué d'un préamplificateur, d'un amplificateur et d'un discriminateur est associé à chaque détecteur. Deux des trois compteurs à hélium 3 sont entourés de 2 mm de cadmium pour atténuer le flux de neutrons thermiques auxquels les détecteurs sont très sensibles. Une échelle de comptage « MCS » permet de suivre les variations de flux durant toutes les périodes d'irradiation et permet également une détermination précise des heures de début et fin d'irradiation.

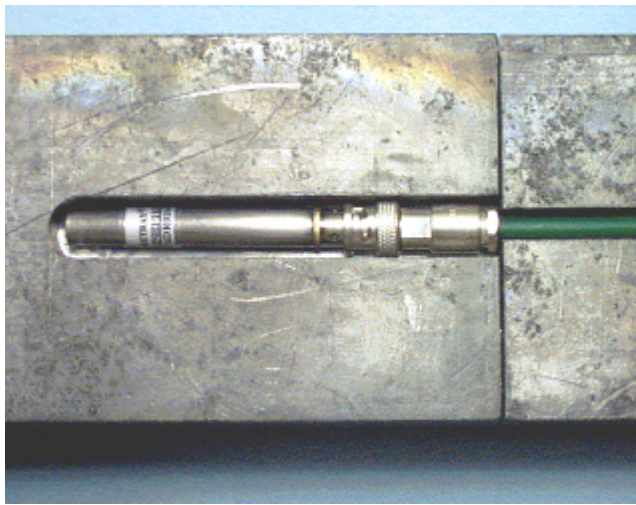


Photo I.5 : Détecteur ^3He dans sa brique spécifique.

II Détermination du flux de neutrons

La gamme énergétique très étendue des neutrons (du thermique à 16 MeV) rend la mesure de leur spectre et de leur nombre impossible par une méthode directe. On a donc recours à une simulation avec le code de transport MCNP [12] afin de déterminer le flux de neutrons en tout endroit du massif pour un neutron source. Le nombre de neutrons sources est déduit de ces spectres simulés et de mesures d'activations. Dans les trois paragraphes suivants nous décrivons les mesures hors ligne, les simulations et la confrontation des résultats.

II.1 Mesures

Il s'agit de mesures d'activations d'échantillons d'or et de tungstène. Ce choix a été dicté par les critères suivants :

- Une seule résonance de capture avec une section efficace élevée.
- Période radioactive supérieure à la durée d'irradiation (quelques heures).
- Une abondance isotopique élevée dans le matériau naturel.
- Décroissance par un ou plusieurs gamma(s) aisément détectable(s).

Les caractéristiques des deux candidats retenus, l' ^{197}Au et le ^{186}W , sont rassemblées dans le tableau II.1.

Les échantillons, minces dépôts évaporés sur des coupelles en plomb, sont placés dans les briques prévues à cet effet (voir photo I.4) à différentes positions du massif parfaitement repérées par leurs coordonnées X,Y,Z (l'origine du repère étant le centre du massif). Au cours de l'irradiation les variations de flux (dépendantes des fluctuations d'intensité du faisceau de deutons) sont suivies par deux détecteurs à ^3He (voir photo I.5). Les échantillons sont ensuite extraits de leur logement pour être placés devant un détecteur germanium d'efficacité connue. La mesure de l'activité et la prise en compte des variations relatives de flux permet de remonter au nombre de noyaux créés pendant l'irradiation (voir annexe 2), donc au nombre de captures.

Élément	^{197}Au	^{186}W
Abondance isotopique (%)	100	28.6
Période de l'élément A + 1	2.6943 j	23.72 h
Energie de la résonance principale	4.906 eV	18.83 eV
$\sigma_{\text{capture}}(E_{\text{res}})$ (barn)	27400	15000

Tableau II.1: Caractéristiques des éléments utilisés pour les mesures de flux.

II.2 Simulations

Le code de transport neutrons et gamma MCNP-4B [12] est utilisé pour calculer le spectre de neutrons en tout point du massif. Une représentation fidèle du cube, de l'extension de la ligne de faisceau, de la cible de béryllium, du réflecteur et éventuellement du pré-ralentisseur en polyéthylène sont introduits dans la géométrie du système. Les figures II.1 et II.2 représentent respectivement le dispositif en entier et l'ensemble « extension de la ligne – cible ».

Les neutrons sources, émis par le béryllium, sont générés suivant les données expérimentales publiées précédemment (distribution en angle et en énergie) [13]. Pour réduire les temps de calcul, les secteurs où sont disposés les échantillons sont affectés d'importance supérieure. Seule la symétrie gauche droite par rapport à l'axe du faisceau est utilisée. En effet le réflecteur en polyéthylène sur lequel repose le plomb induit une asymétrie haut-bas et la distribution de neutrons piquée vers l'avant interdit toute symétrie avant – arrière.

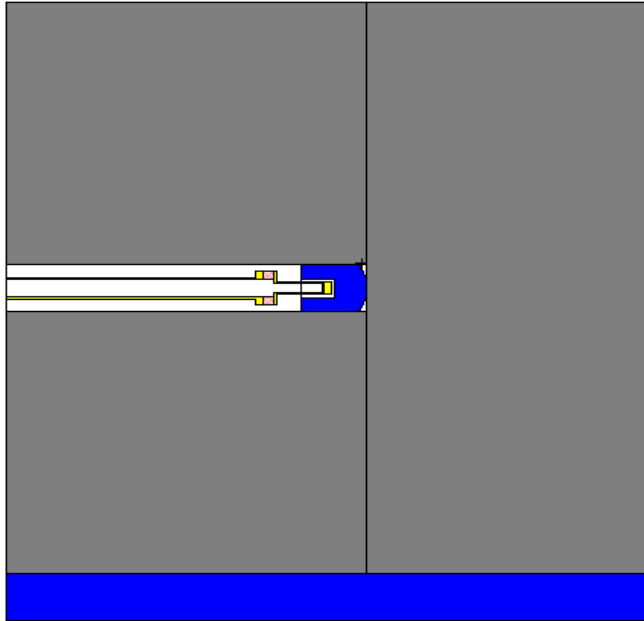


Figure II.1 : Vue de la géométrie du massif dans MCNP. Le bleu représente le CH_2 et le gris le plomb.

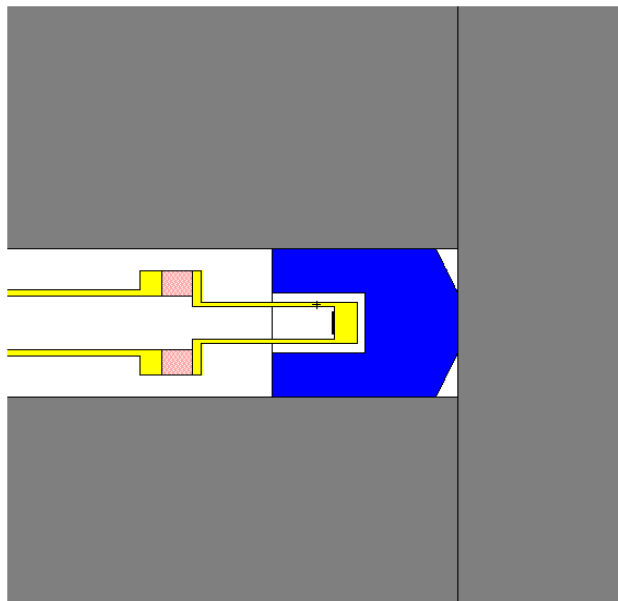


Figure II.2 : Agrandissement de la cible et du pré-ralentisseur en CH_2 (en bleu). Le plomb est en gris, l'aluminium en jaune, l'alumine en violet et le béryllium en noir.

Le nombre de captures peut être alors déterminé de deux manières :

1. En intégrant l'échantillon avec ses caractéristiques réelles dans la simulation MCNP. On obtient alors directement le nombre de captures dans la pastille, cette méthode est inutilisable car trop coûteuse en temps de calcul. En effet les épaisseurs des échantillons sont micrométriques alors que le massif a 1,2 mètre d'arête.

2. En convoluant le spectre neutronique simulé par la section efficace de capture de l'élément. Les calculs se rapportant à l'irradiation d'un disque dans un champ

neutronique homogène, développés en annexe 1, donnent un nombre de captures par neutron source pour un échantillon de dimensions données (surface et épaisseur). Le flux dans le massif peut être considéré homogène car, après quelques diffusions, le neutron a perdu toute mémoire de sa direction originelle.

Une comparaison de ces deux méthodes est réalisée en considérant une sphère de plomb de 80 cm de rayon, une source isotrope monocinétique et des échantillons d'épaisseur croissante. Le rapport du nombre de captures obtenu par les deux méthodes est présenté figure II.3.

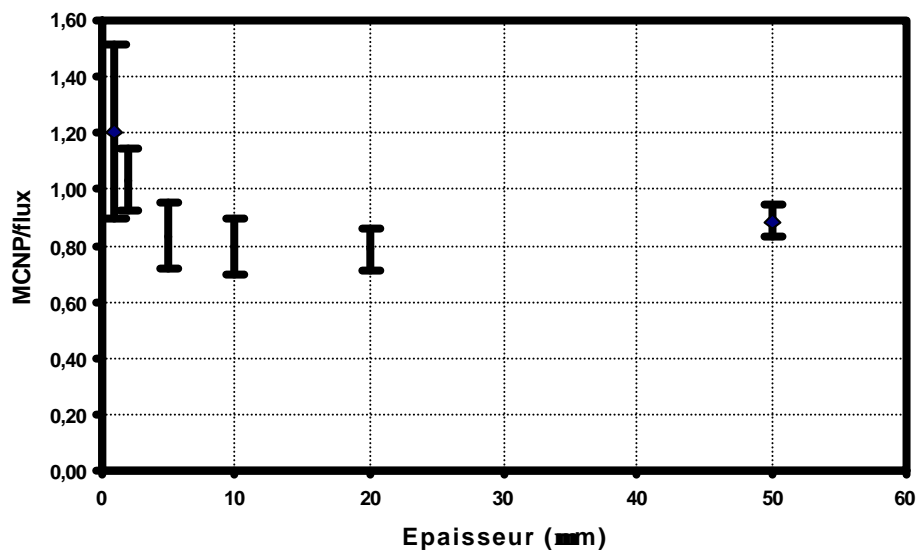


Figure II.3 : Rapport du nombre de captures simulé par MCNP sur le nombre obtenu en utilisant la méthode exposée en annexe 1 en fonction de l'épaisseur de l'échantillon. Dans ce cas le milieu est une sphère de plomb, la source isotrope de 5 MeV est au centre et les échantillons sont des disques d'or de 4 cm de rayon.

L'accord n'est certes pas parfait mais les résultats tout à fait cohérents. Les barres d'erreur représentent les incertitudes statistiques sur le nombre de captures directement évalué par MCNP, cette incertitude est donc d'autant plus élevée que l'échantillon est mince.

Dans les paragraphes suivants le nombre de neutrons sources mesuré est déduit des mesures d'activation et de la méthode 2 exposée plus haut.

II.3 Résultats

Des mesures de flux ont été réalisées dans deux configurations de massif (avec et sans pré-ralentisseur), avec deux types d'échantillon (or et tungstène), nus ou entourés de cadmium et à de multiples emplacements du massif. Rappelons, que le fait d'entourer le produit à irradier, ^{197}Au et ^{186}W entre autres, avec du cadmium, supprime la quasi totalité des neutrons d'énergie inférieure à 0.2 eV grâce à la très forte section efficace de capture du cadmium dans ce domaine en énergie.

Les résultats exposés figures II.4 et II.5 ont été obtenus au cours de différentes irradiations. Pour les comparer entre eux, une normalisation au nombre de neutrons sources déduits de la « quantité de faisceau » utilisée et du rendement de la réaction $d+Be$ est réalisée.

II.3.1 Evolution avec la distance

Les nombres de neutrons sources, normalisés à la quantité de faisceau, sont présentés en fonction de la distance à la cible mais la position réelle des pastilles est prise en compte. Le flux diminuant avec la distance et les neutrons perdant rapidement leur « mémoire » cette variable semble tout à fait indiquée. Les figures II.4 et II.5 donnent les résultats obtenus après irradiation de pastilles d'or et de tungstène nues et entourées de 0,8 mm de cadmium. Les résultats sont cohérents pour les deux types d'échantillons avec et sans chemisage et pour toutes les positions. Les figures II.4 et II.5 correspondent à des irradiations avec et sans pré-ralentisseur respectivement.

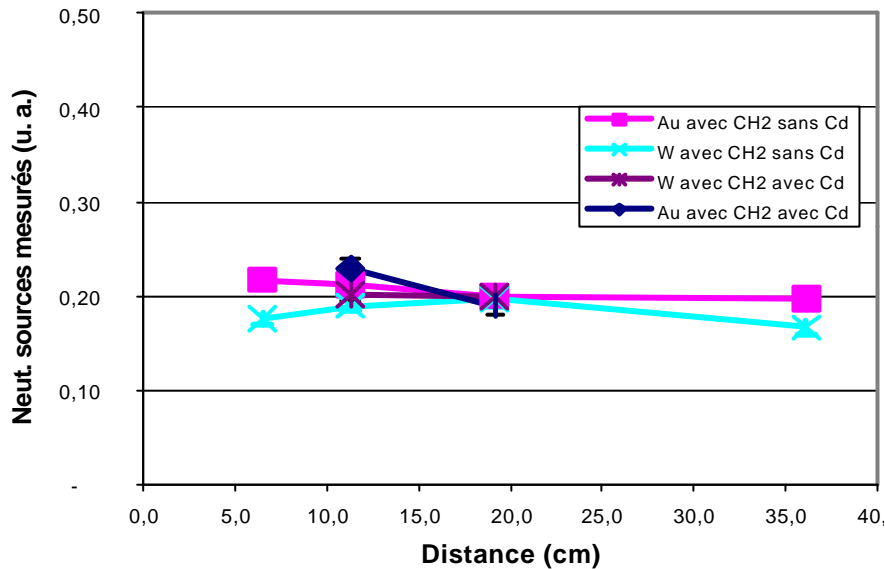


Figure II.4 : Nombre de neutrons sources mesurés en fonction de la distance au centre du cube de plomb, avec pré-ralentisseur.

Un net désaccord, environ un facteur 2, apparaît entre les deux configurations de CIRENE. Ce phénomène n'est toujours pas compris et plusieurs hypothèses ont été envisagées :

- Le CH_2 constituant le pré-ralentisseur est dopé d'un élément neutrophage mais une analyse du matériau a montré que les impuretés n'étaient présentes qu'à l'état de traces.
- La mesure du courant n'est peut être pas fiable, mais cela ne pourrait expliquer une erreur systématique d'un facteur 2.
- Le code Monte-Carlo simule mal le transport des neutrons thermiques (particulièrement nombreux avec le pré-ralentisseur), la « durée de vie » de ces

neutrons étant grande. L'utilisation d'un code déterministe permettrait peut-être de lever cette ambiguïté.

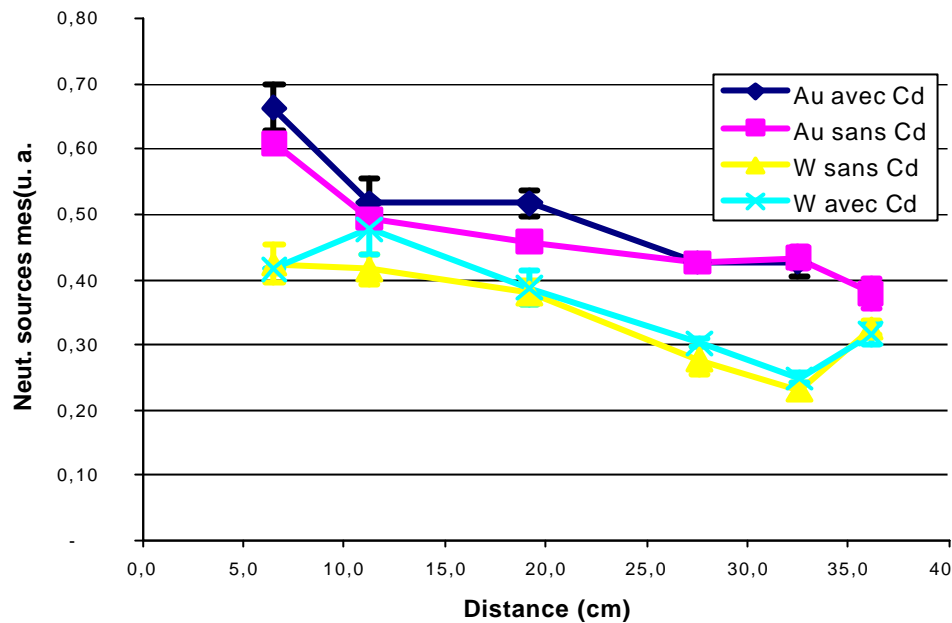


Figure II.5 : Nombre de neutrons sources mesuré en fonction de la distance au centre du cube de plomb, sans pré-ralentisseur.

II.3.2 Utilisation des sandwiches

La mesure de flux de neutrons à des énergies bien déterminées peut être réalisée en utilisant des « sandwiches » de trois feuilles identiques accolées les unes contre les autres. Les deux pièces extérieures jouent le rôle de filtres en atténuant le flux de neutrons essentiellement à l'énergie de la résonance. La partie interne est donc soumise à un flux de neutrons présentant un « trou » à l'énergie de la résonance principale.

Nous avons utilisé cette technique avec de fines feuilles d'or de 20 et 30 microns dans différentes configurations :

- une feuille seule (point 7).
- un assemblage de 3 feuilles (points 4 et 5 pour les externes et 6 pour l'interne).
- un assemblage de 3 feuilles entouré de Cd (points 1 et 2 pour les externes et 3 pour l'interne).

La figure II.6 représente le nombre de captures dans chaque feuille pour les trois configurations étudiées.

Plusieurs constatations découlent de l'analyse des résultats :

- Le nombre de captures est plus important dans la feuille seule car il n'y a aucune atténuation du flux.
- Le nombre de captures est identique sur les deux parties externes de chaque assemblage accréditant l'hypothèse d'un flux de neutrons homogène.

- Le nombre plus faible de captures dans la feuille centrale montre que l'importance de l'atténuation du flux dans les feuilles externes est due à la forte section efficace de capture dans la résonance principale.

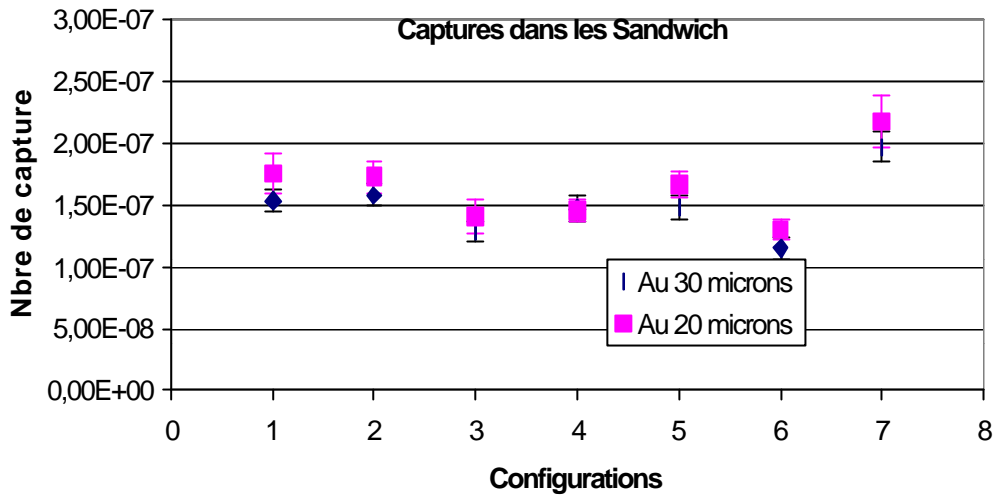


Figure II.6 : Nombre de captures mesuré dans les feuilles d'or au sein d'un sandwich nu (points 1 à 3), d'un sandwich entouré de Cd (points 4 à 6) et d'une feuille seule (point 7). Les points 3 et 6 concernent les feuilles internes.

Les captures sont un peu moins nombreuses dans le sandwich entouré de Cd. L'effet est d'ailleurs relativement faible, l'atténuation principale est due à la résonance dans les feuilles externes.

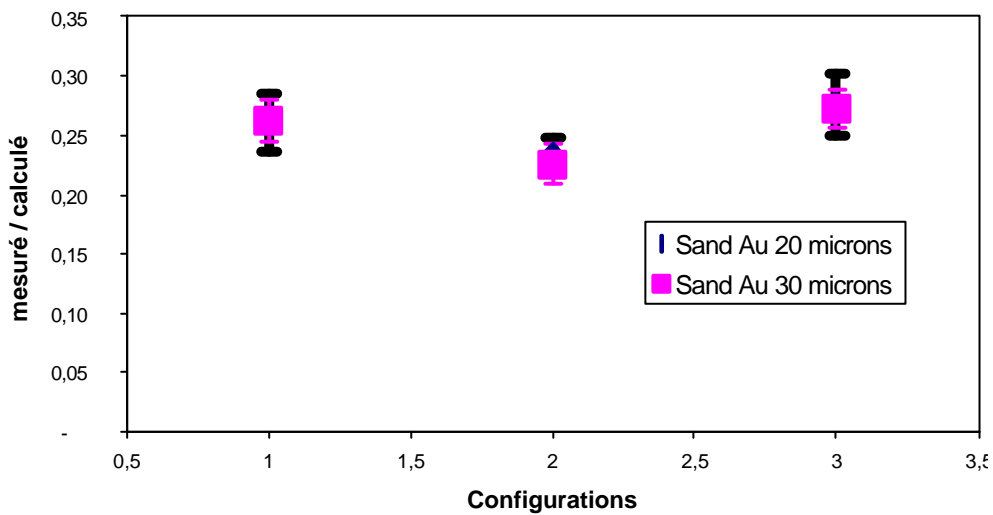


Figure II.7 : Rapport du nombre de captures mesuré sur calculé dans la feuille interne d'un sandwich d'or (points 1), d'un sandwich entouré de Cd (points 2) et d'une feuille d'or seule (point 3). Les deux couleurs représentent deux épaisseurs de feuilles.

La figure II.7 présente le rapport du nombre de captures mesuré sur le nombre de captures calculé pour la feuille interne de sandwich d'or de 20 et 30 μm d'épaisseur dans les trois configurations exposées plus haut. Le nombre de captures calculé est

obtenu en appliquant la méthode présentées en annexe 1 et le flux de neutrons simulé par MCNP.

Une cohérence parfaite des résultats est observée pour les trois configurations et les deux épaisseurs de sandwich. Cela valide les spectres de neutrons simulés par MCNP. Cependant la valeur absolue est manifestement fausse, ce désaccord ayant probablement la même origine que le décalage observé sur la mesure du nombre de neutrons sources.

II.3.3 Evolution avec le courant

On a vu plus haut que les résultats obtenus avec des échantillons d'or et de tungstène entourés ou non de cadmium sont cohérents et ce quelque soit l'emplacement dans le massif. Ceci valide la technique utilisée pour mesurer le nombre de neutrons sources et confirme les spectres neutroniques simulés par MCNP. Toutefois il subsiste un désaccord sur les flux avec et sans pré-ralentisseur. Cela ne remet pas en cause les études menées sur la mesure de rapports isomériques à l'énergie des résonances et présentées au chapitre suivant. Les irradiations ont été réalisées sans le pré-ralentisseur afin de diminuer la composante thermique.

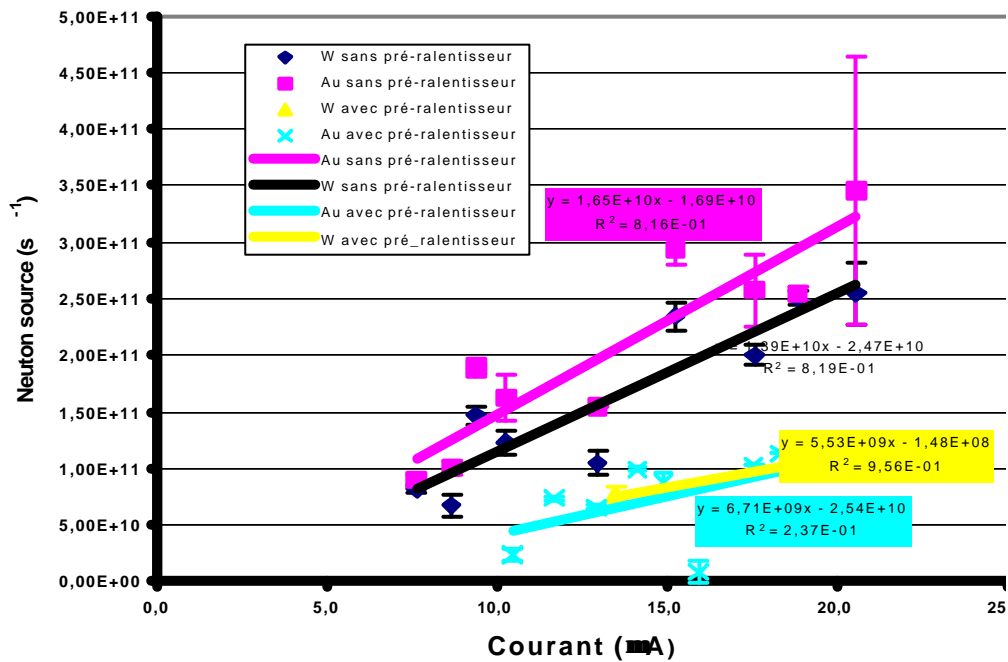


Figure II.8 : Nombre de neutrons sources mesurés en fonction de l'intensité du faisceau de deutons. Les valeurs sont déduites des irradiations des pastilles d'or et de tungstène.

Les mesures de flux sont rassemblées et présentées en fonction de l'intensité du faisceau de deutons sur la figure II.8. On observe toujours cet important décalage entre les irradiations avec et sans pré-ralentisseur. La différence entre Au et W, qui est faible et constante, est probablement due à l'incertitude sur l'épaisseur des échantillons.

L'évolution du flux avec l'intensité du faisceau est linéaire et permet de conclure que le TANDEM 7 MV de la DIF permet de produire 3.10^{11} neutrons par seconde dans 4π à 20 μ A de courant de deutons.

III Création d'isomères

III.1 Critères de sélection des isomères

Les isomères étudiés doivent remplir plusieurs conditions dictées par les caractéristiques de production (capture neutronique) et de détection utilisées. Les critères de sélection sont les suivants :

- Le noyau dans ses états isomériques et fondamental doit pouvoir être produit par capture neutronique avec une forte résonance de section efficace.

- Afin d'évaluer le rapport isomérique nous avons opté pour des cas où le noyau A+1 dans son état fondamental est instable et peut être caractérisé par détection d'un ou plusieurs gamma. Dans de nombreux cas le noyau se désexcite par émission β et les gamma associés au descendant sont détectés.

- La période radioactive de chacun des deux noyaux est également un critère contraignant. Les très courtes périodes sont exclues car CIRENE n'est pas équipé d'un système d'extraction rapide des échantillons hors du cube couplé à une chaîne de mesure dans la salle LA02. Ainsi le temps nécessaire pour pénétrer dans la salle d'irradiation, retirer l'échantillon et le placer devant le détecteur germanium rend impossible la mesure d'élément de période inférieure à celle de l'argent 110 (24,6 s). Les trop longues périodes sont également à proscrire, car le peu de noyaux créés se traduit par une très faible activité difficile à mesurer. Un effort important a été réalisé sur le banc de détection gamma afin d'abaisser le bruit de fond ambiant. L'échantillon et le cristal de germanium sont placés à l'intérieur d'un blindage constitué de cuivre (1 cm) et de plomb (10 cm). Le plomb permet de se protéger très efficacement des gamma et le cuivre permet de stopper les X générés dans le plomb. La mise en évidence de l' $^{166}\text{Ho}^m$ (1200 ans de demi-vie) a ainsi été possible mais dans le cas du ^{177m}Lu la détection a été réalisée auprès des installations du Département d'Analyse et de Surveillance de l'Environnement (voir III.3).

- L'élément évaporé sur la coupelle de plomb doit être isotopiquement abondant et non toxique chimiquement, le cobalt n'a pu être étudié pour cette raison.

- Les isomères étudiés ne sont donc pas tous des candidats intéressants pour la création d'une cible mais présentent la caractéristique de n'avoir jamais été explorés dans la région des résonances.

III.2 Mesure de rapports isomériques

Les rapports isomériques sont calculés à partir des activités des échantillons mesurées par spectrométrie gamma au moyen des formules développées en annexe 3. Les calculs présentés permettent de traiter le cas général d'un isomère qui se désexcite

par transition isomérique avec une probabilité p comprise entre 0 et 1. Pour les noyaux possédant deux isomères (^{152}Eu par exemple sur la figure III.1) le traitement est réalisé en deux temps :

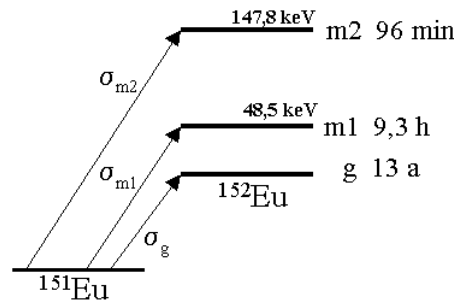


Figure III.1 : Schéma de niveaux de l' ^{152}Eu

L'isomère m_2 en fonction de m_1 on a alors $x = \frac{S_{m_2}}{S_{m_1}}$

L'isomère m_1 en fonction du fondamental : $RI_{m_1} = \frac{S_{m_1}}{S_g}$

On obtient donc pour l'isomère m_2 : $RI_{m_2} = x \times RI_{m_1}$

Les durées d'irradiation ne dépassent pas 3 périodes pour ne pas atteindre l'équilibre et ainsi réduire l'influence d'éventuelles fluctuations d'intensité.

Lorsque les deux périodes (isomère et fondamental) T_a et T_b sont très différentes ($T_a \gg T_b$), deux irradiations sont réalisées. La première d'une durée appropriée à l'élément B et à la fin de laquelle ce noyau est détecté, suivie d'une seconde plus longue permettant de caractériser l'élément A. Le nombre de noyaux A en fin de première irradiation est déduit de la seconde mesure par une simple pondération des quantités de faisceaux des deux irradiations.

Les mesures de très faible activité sont réalisées avec une distance échantillon-détecteur germanium faible. Ceci augmente l'incertitude sur l'angle solide et surtout rend nécessaire des corrections sur les pertes de comptage dues aux multiplicités gamma. Ces corrections atteignent 40 % pour les échantillons de Lu qui se trouvaient au contact mais ne dépassent pas 15 % pour les autres éléments mesurés à des distances toujours supérieures ou égales à 2 cm.

Le tableau III.1 rassemble, outre les RI mesurés (colonne 3), différents paramètres : le RI à l'énergie thermique, les spins des noyaux mères (colonne 4), des états fondamental et isomérique (colonnes 5 et 6), le spin de la résonance et l'énergie du niveau isomérique [14].

Les incertitudes associées à la mesure des RI sont également mentionnées. Elles comprennent les incertitudes statistiques et systématiques. Celles-ci ont pour origine l'incertitude sur l'angle solide, l'efficacité de détection et le rapport d'embranchement du gamma considéré. Les incertitudes statistiques sont données avec un intervalle de

confiance de 68 % (soit à $\pm\sigma$). Lorsque plusieurs comptages sont réalisés, une moyenne avec pondération quadratique des incertitudes est effectuée. Les chiffres en caractères gras représentent les cas pour lesquels les RI mesurés à l'énergie des résonances sont sensiblement supérieurs à ceux du thermique.

Un gain notable de l'alimentation de l'isomère est observée pour 3 des noyaux étudiés : l' ^{110}Ag , ^{122}Sb et le ^{177}Lu . Pour les autres noyaux il ne semble pas y avoir d'évolution par rapport à l'énergie thermique. Nous reviendrons sur le cas du ^{177}Lu au paragraphe suivant.

Noyau	RI _{therm}	RI _{mesuré}	J(A-1)	J _{fond}	J _{iso}	J _{résonance}	E _{iso} (keV)
^{110}Ag	5.10^{-2}	$(11,5\pm 2,2).10^{-2}$	1/2 ⁻	1 ⁺	6 ⁺	1	117,7
^{122}Sb	1.10^{-2}	$(2,42\pm 0,15).10^{-2}$	5/2 ⁺	2 ⁻	8 ⁻	3	163
^{134}Cs	0,094	$(9,39\pm 1,41).10^{-2}$	7/2 ⁺	4 ⁺	8 ⁻	3	138,7
$^{152}\text{Eu}^{\text{m1}}$	0,559	$(57,3\pm 5,8).10^{-2}$	5/2 ⁺	3 ⁻	0 ⁻	3	48,5
$^{152}\text{Eu}^{\text{m2}}$	$6,8.10^{-4}$	$(6,7\pm 1,0).10^{-4}$	5/2 ⁺	3 ⁻	8 ⁻	3	147,8
^{154}Eu	?	$(1,33\pm 0,16).10^{-4}$	5/2 ⁺	3 ⁻	8 ⁻	3	160
^{188}Re	0,038	$(3,56\pm 0,32).10^{-2}$	5/2 ⁺	1 ⁻	6 ⁻	3	172,1
^{177}Lu	11.10^{-4}	$(28,2\pm 3,7).10^{-4}$	7 ⁻	7/2 ⁺	23/2 ⁻	15/2	970,2

Tableau III.1 : Rapports Isomériques mesurés au thermique et avec CIRENE. Caractéristiques des isomères étudiés : spin du noyau (A-1), du fondamental, de l'isomère, de la résonance principale et énergie du niveau.

Ces résultats sont très intéressants car ils permettent de définir le spin du noyau composé à l'énergie de liaison du neutron (S_n). Les neutrons impliqués dans les captures à basse énergie sont des ondes s, le spin du noyau composé ne peut être que $J\pm 1/2$ (avec J le spin du noyau A-1). Si le RI est identique au thermique et à la résonance, le noyau composé au S_n a le même spin que le noyau formé à la résonance principale sinon il diffère de $1\hbar$. C'est ce qui est résumé dans le tableau III.2.

Les différences de spin entre thermique et résonance principale semblent prouver l'existence d'une résonance « d'énergie négative » proche du S_n . Ceci est confirmé dans le cas du ^{122}Sb mais pas pour ^{109}Ag [14]. Dans ces deux cas le spin plus élevé de la résonance par rapport au thermique favorise l'alimentation de l'isomère (voir tableaux III.1 et III.2).

Noyau	J (A-1)	J _{résonance}	J _{thermique}
¹¹⁰ Ag	1/2	1	0
¹²² Sb	5/2	3	2
¹³⁴ Cs	7/2	3	3
¹⁵² Eu ^{m1}	5/2	3	3
¹⁵² Eu ^{m2}	5/2	3	3
¹⁵⁴ Eu	5/2	3	3
¹⁸⁸ Re	5/2	3	3
¹⁷⁷ Lu	7	13/2	13/2

Tableau III.2 : Spin du noyau (A-1), de la résonance principale, et spin du noyau composé à l'énergie de liaison du dernier neutron (S_n).

III.3 Cas du Lutécium 177

En marge des mesures exposées plus haut, une étude spécifique sur le ¹⁷⁷Lu présente une particularité très intéressante. Le lutécium 176, qui par capture neutronique conduit aux ¹⁷⁷Lu^g (T=6,71 j) et au ¹⁷⁷Lu^m (T=160,1 j), possède deux résonances de capture principales à 0,141 eV et 1,565 eV de spin respectifs 13/2 et 15/2. La section efficace d'absorption du Cd permet de parfaitement occulter la première résonance du Lu (voir figure III.2).

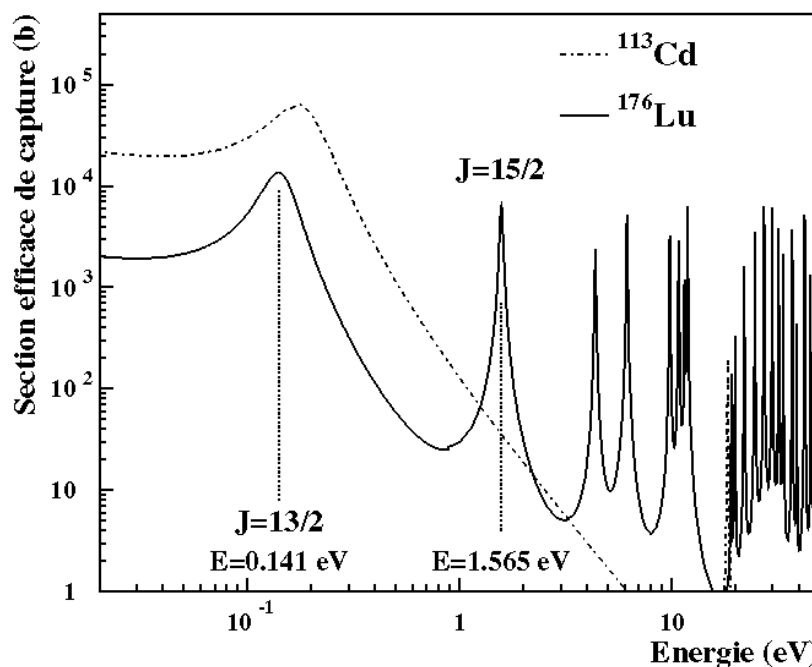


Figure III.2 : Section efficace de capture du ¹⁷⁶Lu et du Cd. L'énergie et le spin des deux principales résonances du ¹⁷⁶Lu sont mentionnées.

Ainsi deux échantillons de ¹⁷⁶Lu (l'un nu et l'autre entouré de Cd) placés dans CIRENE « voient » des spectres de neutrons différents et les captures s'effectuent sur des résonances de spin différents. L'abondance isotopique naturelle du ¹⁷⁶Lu n'étant que

de 2,5%, du ^{176}Lu , enrichi par le séparateur PARSIFAL [15], a été utilisé. Deux échantillons d'environ 100 μg sont implantés dans deux containers cylindriques en carbone et disposés dans CIRENE à des positions symétriques par rapport à la source de neutrons. Un des containers est chemisé de 0.8 mm de Cd. Aucune normalisation de flux n'est donc nécessaire. Après une irradiation de 63,5 heures, et une durée de refroidissement de quelques jours, la quantité de $^{177}\text{Lu}^g$ créée dans chaque échantillon est mesurée. Le nombre d'isomères ne peut être déterminé avant la disparition totale du fondamental et nécessite une détection à bas bruit de fond, les activités étant de l'ordre du millibecquerel. Ces mesures ont été réalisées par le service Radioanalyse Chimie Environnement avec le détecteur planar GL45 au laboratoire souterrain de Modane. Les nombres de noyaux de $^{177}\text{Lu}^g$ et $^{177}\text{Lu}^m$ déterminés, les rapports isomériques sont calculés avec la formule A.3.5 de l'annexe 3. Les résultats sont donnés dans le tableau III.3 ci-dessous :

	Energie thermique	Sans Cadmium	Avec Cadmium
RI	$(11,0 \pm 3,0) \cdot 10^{-4}$	$(10,6 \pm 1,7) \cdot 10^{-4}$	$(28,2 \pm 3,7) \cdot 10^{-4}$

Tableau III.3 : RI du ^{177}Lu pour différents spectres neutroniques.

L'incertitude est d'origine essentiellement statistique. La présence de cadmium induit une modification importante du rapport isomérique.

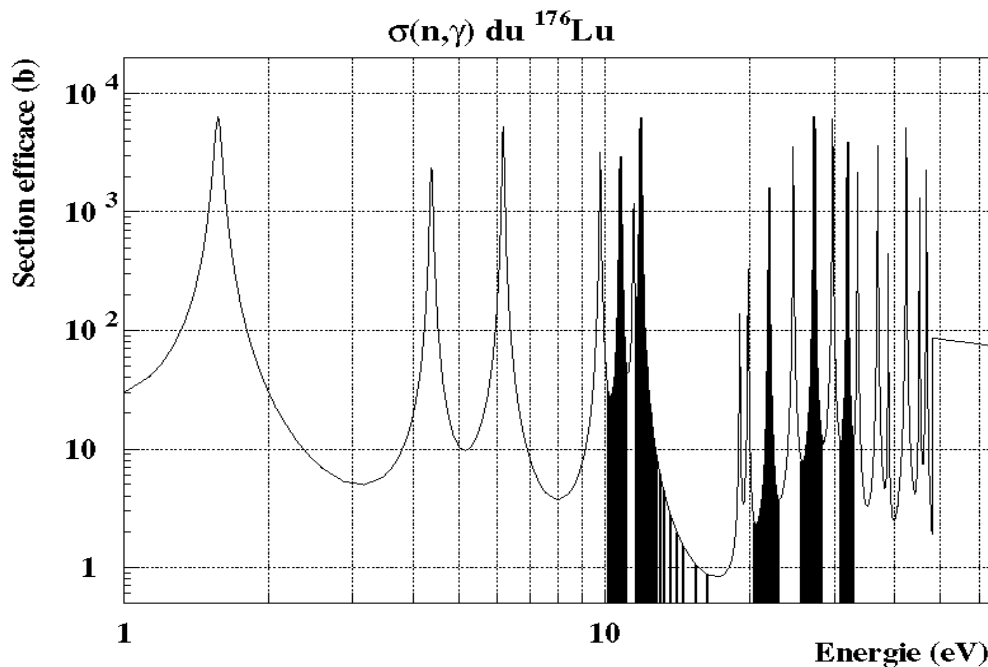


Figure III.3 : Section efficace de capture du ^{176}Lu dans la zone des résonances. En foncé, les résonances de spin 13/2, en clair celles de 15/2 [14].

Sans filtre, la valeur est compatible avec celle du thermique, dans ce cas l'essentiel des captures a lieu dans la première résonance de spin 13/2. Avec le cadmium, les résonances entrant en jeu sont majoritairement de spin 15/2 comme en atteste la

figure III.3. On observe donc pour la première fois l'influence du spin de la résonance sur l'alimentation de l'état isomérique du ^{177}Lu . L'explication pourrait venir en partie du fait que l'isomère ayant un spin élevé (23/2 voir tableau III.1) son alimentation est favorisée par une résonance 15/2 par rapport à une résonance 13/2. On peut également supposer, d'après ce résultat, que le spin de la capture au thermique est de 13/2.

IV Production d'une cible isomérique :

IV.1 Candidats isomères

L'étude expérimentale des noyaux isomériques ne peut se faire que par la réalisation de réactions nucléaires mettant en jeu de tels noyaux. Deux possibilités existent, utiliser un faisceau isomérique ou avoir recours à une cible constituée de noyaux dans un état isomérique sur laquelle des réactions induites par des faisceaux de particules chargées peuvent être étudiées. Une telle cible doit posséder les caractéristiques suivantes :

- 1- Un nombre de noyaux isomériques élevé ($>10^{15}$)
- 2- Une pureté (noyaux isomériques / noyaux dans l'état fondamental) maximale
- 3- Un rapport nombre de noyaux isomériques / nombre de noyaux « mère » le plus grand possible.
- 4- Une durée de vie d'au moins quelques mois
- 5- Etre déposable en couche mince sur un film fin utilisable sous vide.

Pour répondre au premier point, il faut un fort taux de production des noyaux dans leur état isomérique. La capture dans les résonances peut apporter un gain substantiel par rapport aux neutrons thermiques pour certains éléments qui ont une faible section efficace de capture à l'énergie thermique mais présentent des résonances de sections efficaces élevées. Un parallèle peut être établi avec les études menées au CERN pour brûler le ^{99}Tc [11].

Le second point est automatique pour certains éléments dont le fondamental a une période radioactive beaucoup plus courte que l'isomère et décroît vers un autre élément par émission β ou conversion interne. Une « simple » séparation chimique suffit alors. C'est le cas de l' ^{110}Ag ou du ^{177}Lu . Pour les noyaux ne répondant pas à ce critère un rapport isomérique élevé est absolument nécessaire.

Le troisième point est crucial et ne peut être obtenu qu'en faisant « disparaître » le plus de noyaux « mère » possible. A moins de pouvoir transmuter tous les noyaux par capture (forte section efficace de capture et flux de neutrons très intense) il faut avoir recours à une séparation isotopique « à chaud ». Cette opération est difficile car les deux éléments ne diffèrent que d'une masse (A et A+1) et surtout les noyaux sont radioactifs. Dans toute étude de création d'une cible isomérique, les phases de production (irradiation dans un cube de plomb) et de séparation ne peuvent être dissociées.

Le point numéro 4 est également contraignant et limite d'emblée le nombre de candidats. Il faut ajouter que le spin et l'énergie de l'état isomérique rendent l'étude d'un élément plus ou moins attractif mais ces critères deviennent presque secondaires au vue de toutes les difficultés exposées plus haut pour la production d'une telle cible.

Nous nous sommes particulièrement intéressé à l'isomère de l' ^{110}Ag dont les caractéristiques sont données dans le tableau IV.1. Conformément à ce qui a été évoqué plus haut c'est un bon candidat qui possède une très forte section efficace de capture à la résonance (23000 barn à 300 K) mais pour lequel une séparation isotopique à chaud est obligatoire. De plus la mesure du RI (voir tableau III.1) montre un gain d'un facteur 2 sur la production d'isomères à l'énergie des résonances par rapport à l'énergie thermique. L'abondance isotopique de l' ^{109}Ag n'est pas un obstacle car il est possible de se procurer facilement et à bon marché des isotopes très enrichis.

	^{109}Ag	$^{110}\text{Ag}^g$	$^{110}\text{Ag}^m$
Abondance isotopique	48.161 %		
Période radioactive		24.6 s	249.9 j
Spin	1/2 -	1+	6+
Décroissance		β^- à 99.7 %	IT à 1.5%
$\sigma_{\text{thermique}}$ (barn)		86.3 ± 3.0	4.7 ± 0.2

Tableau IV.1 : Caractéristiques des isotopes 109 et 110 de l'argent [16].

Plusieurs feuilles d'argent ont été irradiées et la quantité d'isomères formés mesurée. On constate que le taux de production de l'isomère diminue quand l'épaisseur de la feuille augmente et que la production maximum serait obtenue pour de l'argent « dilué » dans du plomb (voir annexe 1). La quantité de noyaux isomériques produit et le rapport $^{110m}\text{Ag}/^{109}\text{Ag}$ en fonction de la durée d'irradiation dans CIRENE sont présentée dans le tableau IV.2.

Epaisseur	Noyaux d' ^{109}Ag	Noyaux d' $^{110}\text{Ag}^m$	$^{110}\text{Ag}^m / ^{109}\text{Ag}$
0.15 μm	$1,14 \cdot 10^{18}$	$1,3 \cdot 10^{10}$	10^{-8}
20 μm	$2,0 \cdot 10^{20}$	$3,7 \cdot 10^{10}$	$1,8 \cdot 10^{-10}$
100 μm	$1,0 \cdot 10^{21}$	$1 \cdot 10^{11}$	10^{-10}

Tableau IV.2 : Nombre de noyaux obtenus dans 3 échantillons d'argent d'épaisseur croissante dans CIRENE avec 15 mA de deutons de 10 MeV pendant 240000 s.

On constate que la production d'une cible d' ^{110m}Ag avec CIRENE n'est pas envisageable car le flux de neutrons disponible est insuffisant. En effet si la quantité d'isomère peut être augmentée en plaçant plus de matière le rapport $^{110m}\text{Ag}/^{109}\text{Ag}$ égal à 10^{-8} est rédhibitoire pour tenter toute séparation isotopique. Il faut donc envisager les possibilités d'optimisation de CIRENE ou la transposition de la technique sur une autre machine.

IV.2 Transposition de la méthode à d'autres installations.

Nous venons de voir que les taux de production d'isomères avec CIRENE ne permettent pas la réalisation d'une cible. Aucun gain n'est possible sur le nombre de neutrons source auprès du TANDEM de Bruyères-le-Châtel. L'augmentation du flux neutronique utilisable ne peut provenir que de l'optimisation du cube de plomb. Le préralentisseur en CH_2 permet certes d'intensifier le flux mais en favorisant très fortement la partie thermique du spectre ce qui n'est guère intéressant dans le cas de l'argent vue la faible section efficace de production de l'isomère au thermique (voir tableau IV.1). Une augmentation de la taille du cube (3 m d'arête au lieu de 1,2 m) permet un gain d'un facteur 3.

L'adaptation de cet instrument à une autre source de neutrons, disponible dans d'autre laboratoire ou en projet, est donc à étudier. Nous avons considéré deux installations : LINAG et une machine à Spallation.

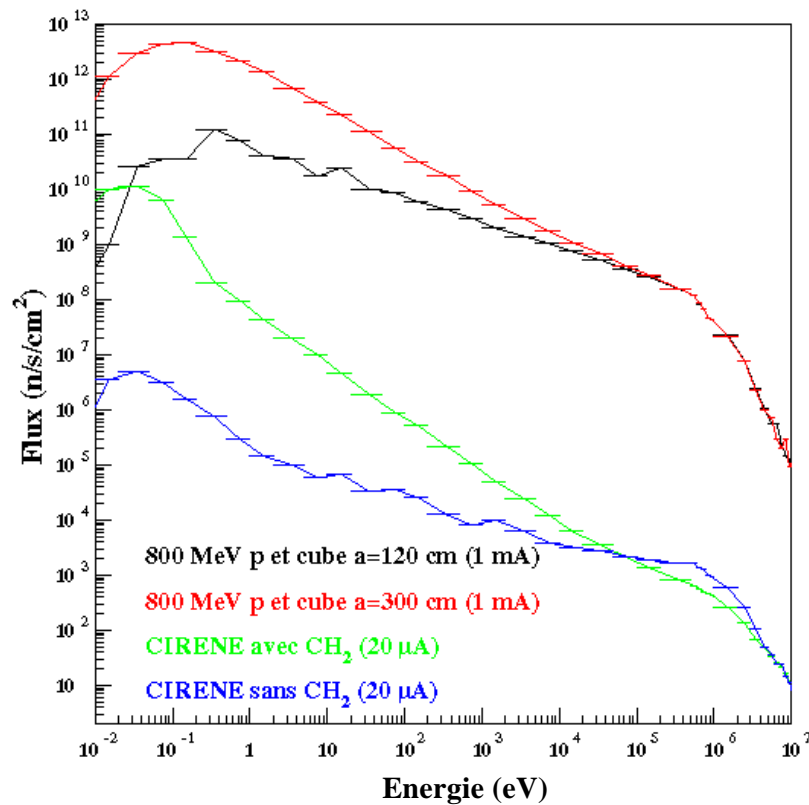


Figure IV.1 : Spectres neutroniques simulés au centre de CIRENE et de deux cubes de plomb de 1.2 et 3 m d'arête avec une source de spallation.

LINAG est un accélérateur de deutons de 40 MeV et 5 mA envisagé pour le projet SPIRAL phase 2 au GANIL. Le bombardement d'une cible épaisse de béryllium permettrait d'atteindre un flux neutronique de 4 ordres de grandeur supérieur à celui de CIRENE.

Une machine à spallation rassemble un accélérateur délivrant un faisceau de protons de quelques centaines de MeV et de forte intensité et une cible en plomb, en

tungstène ou en mercure. Un proton incident de 800 MeV produisant environ 20 neutrons par réaction de spallation, ces ensembles génèrent de gigantesques flux de neutrons. Une simulation réalisée avec le système de code TIERCE [17] permet d'évaluer le gain sur les flux neutrons possibles (figure IV.1). L'intensité (1 mA) et l'énergie du faisceau (800 MeV) considérées s'inscrivent parfaitement dans les caractéristiques des futures installations ESS en Europe et SNS aux Etats-Unis.

On peut alors réaliser des projections sur la quantité de noyaux isomériques et le rapport $^{110m}\text{Ag}/^{109}\text{Ag}$ prévisible avec ces différentes installations. Comme cela a été évoqué au paragraphe précédent il faut en parallèle envisager une solution de séparation isotopique de l' ^{110m}Ag par rapport à l' ^{109}Ag . L'hypothèse (tout à fait réaliste) retenue est celle d'un séparateur isotopique avec une source de 100 μA . Les taux de production et de séparation journaliers sont calculés pour les trois machines précédentes et les résultats sont regroupés dans le tableau IV.3. Il n'a pas été tenu compte dans ces calculs de la diminution du nombre de noyaux « mère » d' ^{109}Ag au cours de l'irradiation.

Installation	Φ (n/s/cm ²)	Durée Jours	Noyaux ^{109}Ag	Noyaux $^{110}\text{Ag}^m$	Rapport isotopique	$^{110}\text{Ag}^m$ séparé par jour
Tandem	2.10^8	30	10^{21}	2.10^{14}	2.10^{-7}	5.10^{12}
LINAG	2.10^{12}	30	10^{21}	2.10^{18}	2.10^{-3}	5.10^{16}
Spallation	5.10^{13}	30	10^{21}	5.10^{19}	5.10^{-2}	6.10^{18}

Tableau IV.3 : Projections sur la production et la séparation journalière d' $^{110}\text{Ag}^m$ avec un cube de plomb auprès de 3 sources de neutrons.

Cela confirme l'impossibilité de produire une cible avec le TANDEM mais confirme également que la méthode de production par capture à l'énergie des résonances est très intéressante à condition de posséder une source de neutrons suffisamment intense. Il ne faut pas perdre de vue que dans ce cas le facteur limitant est la séparation isotopique. Elle nécessite un séparateur à chaud muni d'une source très intense.

V Fonctionnement en spectromètre

V.1 Principe, simulations

CIRENE peut également être utilisé comme un spectromètre à ralentissement de plomb. Il existe en effet une relation entre le temps de ralentissement et l'énergie des neutrons. Cette technique, souvent utilisée par le passé [4,6,11] ne permet pas d'atteindre la résolution d'une méthode de temps de vol classique mais permet d'avoir des flux de neutrons très importants rendant possible la mesure de très faibles sections efficaces ou des mesures sur des échantillons en très faible quantité.

Le code de transport MCNP permet de simuler l'évolution temporelle des neutrons et donc à un emplacement donné du cube la relation : temps écoulé depuis l'émission du neutron (temps de ralentissement) énergie du neutron. La figure V.1 représente cette corrélation dans le cas d'un cube de plomb sans ralentisseur et sans réflecteur en polyéthylène. Par ajustement on établit la relation suivante entre l'énergie E en keV et le temps de ralentissement en microseconde:

$$E = \frac{K}{(t+t_0)^2} \text{ avec } K=170 \text{ keV} \cdot \mu\text{s}^2 \text{ eq V.1}$$

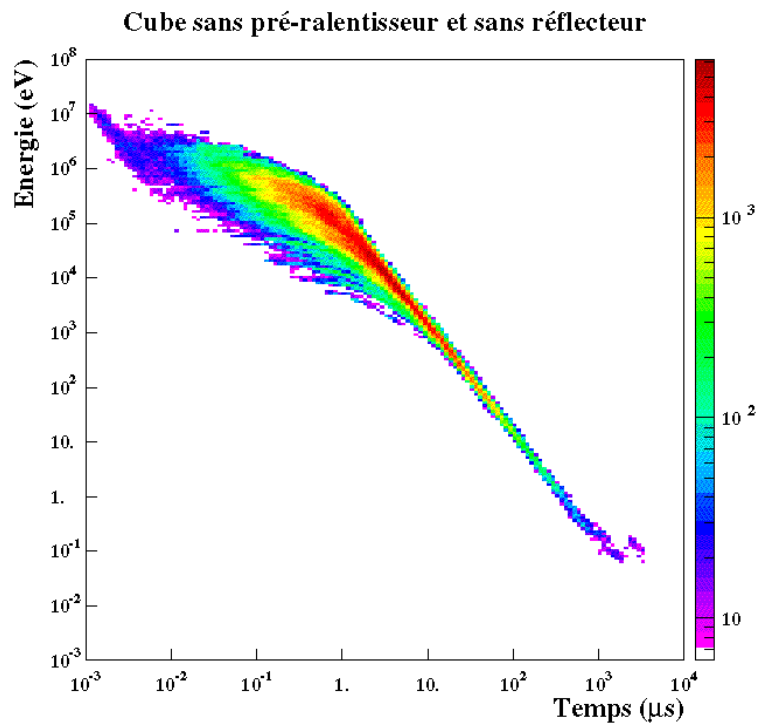


Figure V.1 : Energie des neutrons – temps de ralentissement simulée par le code de transport MCNP4B pour un cube de plomb et des neutrons produits par réaction (12 MeV) d + Be.

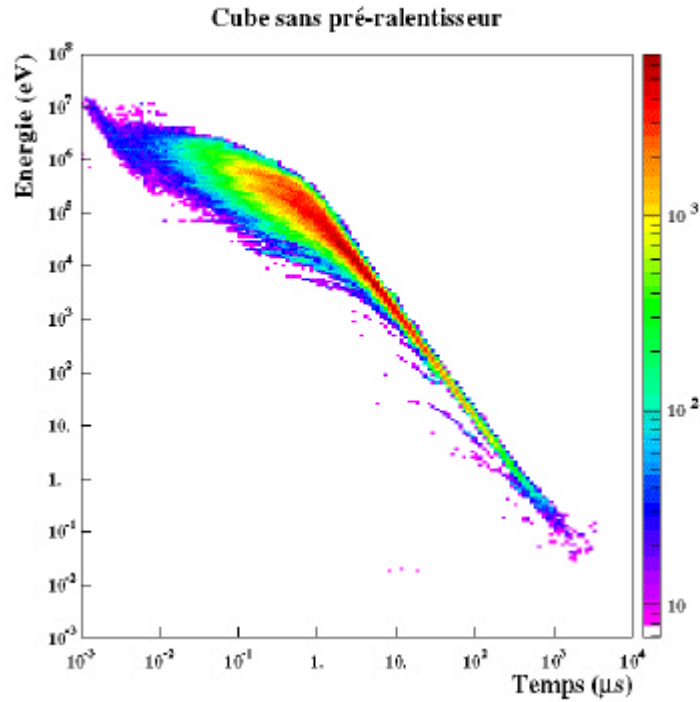


Figure V.2 : Idem que figure V.1 avec le réflecteur en polyéthylène

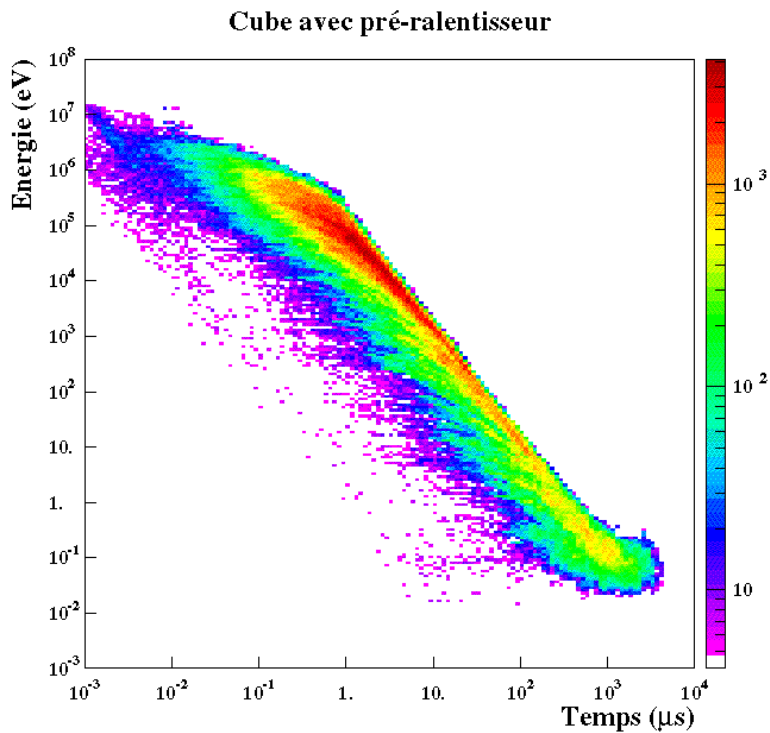


Figure V.3 : Idem que figure V.2 avec le pré-ralentisseur en polyéthylène

Dans le cas de CIRENE il faut tenir compte du réflecteur en polyéthylène et éventuellement du ralentisseur. Les figures V.2 et V.3 représentent les résultats des simulations avec ces deux objets. On constate que si le ralentisseur détruit

complètement la relation temps énergie la présence du réflecteur seul laisse l'utilisation en mode spectromètre possible. La zone de validité de cette relation, entre 0.1 eV et le keV, correspond à la région des résonances qui nous intéresse. Pour appliquer cette méthode il est nécessaire d'atteindre des temps de ralentissement de l'ordre de la milliseconde.

V.2 Application aux mesures par transmission

La technique du spectromètre a été explorée avec CIRENE après avoir ôté le pré-ralentisseur en CH₂. La pulsation de la source est réalisée en utilisant le déviateur basse énergie associé à un montage électronique spécifique. Un signal d'une durée réglable est généré par une horloge à la fréquence de 1 kHz. La largeur de l'impulsion est un compromis entre le flux nécessaire à la mesure et la résolution temporelle (donc en énergie) recherchée. La zone des résonances étant atteinte après plusieurs dizaines de microsecondes une largeur de quelques microsecondes ne dégrade pas la résolution énergétique. Cette mesure est réalisée en utilisant une carte MCS pilotée par un PC, le départ est donné par l'impulsion commandant la bouffée de faisceau, le stop par le détecteur. Des mesures de temps par pas de 2 microsecondes sont alors possibles.

Le détecteur utilisé doit être sensible aux neutrons dans une très large gamme en énergie (du thermique au keV) avec une efficacité maximale et bien connue. L'utilisation d'un matériau fissile dans une chambre à fission ou sur une cellule solaire permet de mesurer la section efficace de fission ou de mesurer un flux de neutrons si la section efficace est connue. Nous avons utilisé un détecteur gazeux à hélium 3 (voir photo I.5) dont l'efficacité varie avec la section efficace de la réaction ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ soit en raison inverse de la vitesse du neutron.

Pour recalibrer la mesure en énergie (détermination du t_0 de l'équation V.1), le détecteur est entouré d'une feuille d'or, d'argent ou d'indium et les neutrons sont détectés après transmission à travers la feuille. Le flux est d'autant plus atténué que la section efficace de capture est élevée, les résonances se traduisent donc par un trou dans le spectre aux énergies considérées. Les spectres en présence d'or, d'argent et d'indium (voir figure V.4) sont marqués aux énergies de 4.906, 5.19 et 1.457 eV respectivement correspondant aux résonances principales de ${}^{197}\text{Au}$, du ${}^{109}\text{Ag}$ et de ${}^{115}\text{In}$. Les ajustements sur ces trois énergies donnent une valeur de t_0 de 5 μs dont la valeur élevée s'explique par les retards induits dans les câbles et les tiroirs électroniques. Les épaisseurs sont choisies en fonction des feuilles disponibles et des sections efficaces de capture de chaque élément.

Bien que CIRENE n'ait pas été construit dans ce but ces résultats montrent que ce dispositif peut être utilisé comme un spectromètre à ralentissement au plomb. Toutefois il serait souhaitable d'enlever le réflecteur en polyéthylène qui dégrade la corrélation « énergie-temps de ralentissement ». Il est à noter que le flux disponible ne permet pas de rivaliser avec les mesures réalisées au CERN [11] dans lesquelles les neutrons sont produits par réaction de spallation.

Une étude complémentaire, menée avec un détecteur de fission composé de cellule photovoltaïque et d'un fin dépôt d' ^{235}U , a été réalisée avec CIRENE et est exposée dans la référence [19].

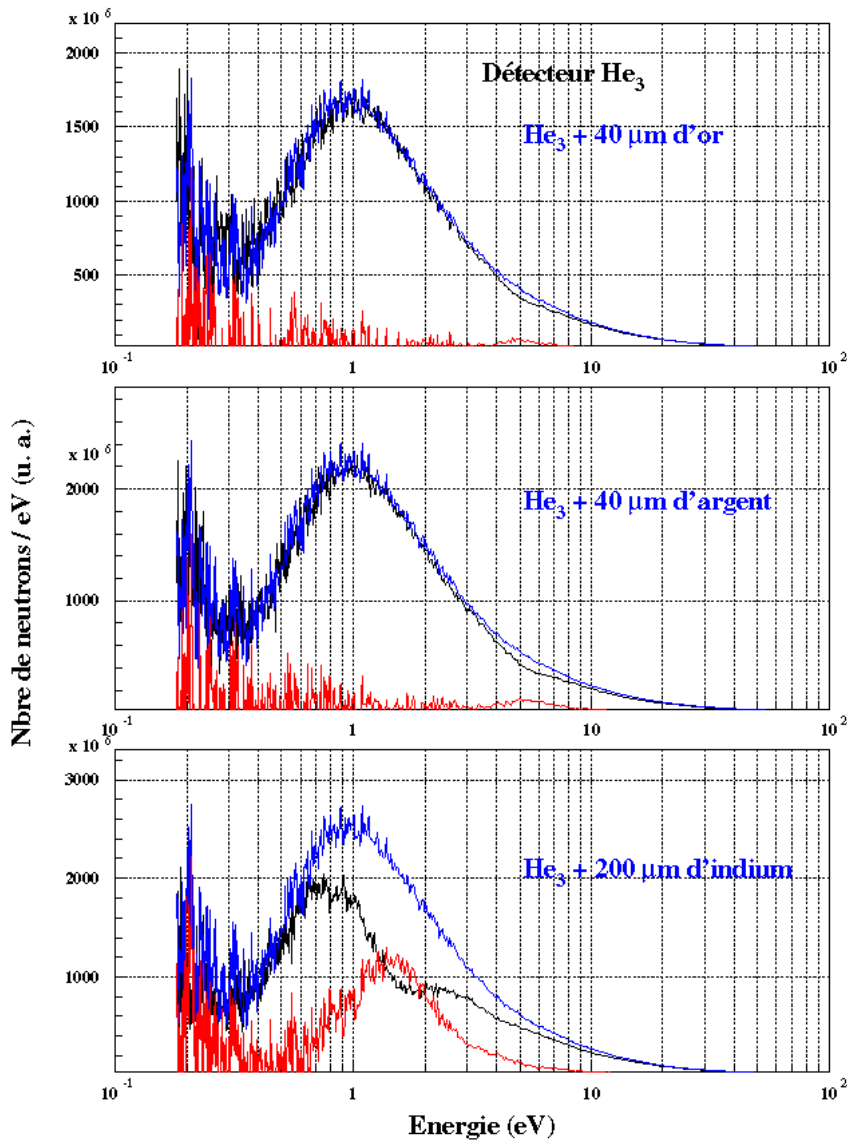


Figure V.4 : Spectres neutrons mesurés en fonctionnement pulsé par un détecteur ^3He entouré de feuilles d'or (en haut), d'argent (au milieu) et d'indium (en bas). Les courbes bleues sont obtenues détecteur nu, les noires avec les feuilles et les rouges sont la différence des deux courbes précédentes.

Conclusions

Nous avons conçu et réalisé l'appareillage expérimental CIRENE dans le but d'étudier la fabrication d'isomères par des réactions de captures neutroniques dans la région des résonances (0,1 eV – 1 keV). Dans cette gamme d'énergie, les sections efficaces de captures neutroniques peuvent atteindre quelques dizaines de milliers de

barns, nettement supérieures aux captures effectives à l'énergie thermique : d'où, à flux égal, une production attendue d'isomères nettement supérieure.

CIRENE est un cube de plomb de 1,2 m d'arête au centre duquel se trouve une source de neutrons rapides (spectre blanc de 1 à 16 MeV). Les neutrons sont ralentis adiabatiquement, par les milliers de chocs élastiques qu'ils subissent sur les noyaux de plomb, pour finalement atteindre l'énergie thermique.

L'utilisation d'un pré-ralentisseur hydrogéné autour de la source de neutrons, envisagée pour augmenter le flux efficace, s'est révélée peu intéressante car sa présence génère une forte composante thermique. Les flux neutroniques en différents points du massif ont été simulés et leurs intensités mesurées par activation. Une incohérence entre les résultats avec et sans pré-ralentisseur n'a toujours pas été expliquée.

Nous avons ensuite créé 11 isomères et mesuré le rapport isométrique ($RI = \mathbf{s}_m / \mathbf{s}_g$) pour huit de ces noyaux. Ces mesures sont tout à fait inédites dans le domaine en énergie des résonances (0,1 eV – 1 keV). Certains RI diffèrent d'un facteur 2 des RI au thermique connus de longue date. Ceci permet de conclure, que pour ces isomères, le noyau composé a un spin différent en étant formé par capture à la résonance (niveau d'énergie $S_n + E_{res}$) par rapport à une capture au thermique (niveau d'énergie S_n). Les neutrons à l'énergie des résonances étant des ondes s, les spin des noyaux composés ne peuvent varier que de $1\hbar$, ceci permet donc une détermination inédite et inambiguë des spins de 8 noyaux composés au S_n .

Pour la première fois, la mesure du RI (pour la capture neutronique sur le lutécium 176) sur des résonances de spin différents a été réalisée. Elle montre une nette différence entre les RI déterminés pour les résonances 13/2 et 15/2 et permet de chiffrer l'importance du spin des résonances sur l'alimentation d'un niveau isométrique.

Il a également été montré que CIRENE pouvait fonctionner comme un spectromètre de neutrons en utilisant un faisceau pulsé. La corrélation entre le temps de ralentissement d'un neutron et son énergie a été mise en évidence.

Enfin si le tandem Van de Graaff du DPTA possède toutes les qualités requises pour cette étude, disponibilité, stabilité du faisceau, grande souplesse des modes pulsés, il n'est pas adapté pour la production d'une cible isométrique ($>10^{15}$ noyaux). L'extrapolation du dispositif auprès d'une source de neutrons plusieurs ordres de grandeur plus intense est étudiée. Ainsi nous avons montré que CIRENE, couplé à la source de neutrons de spallation, permettrait de produire plus de 10^{15} noyaux d' $^{110}\text{Ag}^m$ par jour.

ANNEXE 1 : Calcul du nombre de captures dans un échantillon soumis à un flux neutronique homogène

1 Echantillon simple

Soit une feuille d'épaisseur d , de densité ρ , placée dans un flux de neutrons $\Phi(E)$ homogène et isotrope et $\sigma(E)$ la section efficace de capture à l'énergie E . Supposant que le flux ne change pas sur la surface de la feuille et qu'aucun neutron n'entre sur la tranche. Le nombre de réactions de capture $C(E)$ est [18] :

$$C(E) = \frac{m_{act}}{m_a} \frac{\Phi(r)}{2} j_0(m_a d) = m_{act} d \frac{j_0(m_a d)}{2 m_a d} \Phi(r)$$

avec

$$d = d r, \quad m_a = \Sigma_a / r \quad \text{et} \quad \Sigma_a = \frac{rN}{A} s_a \quad \text{la section efficace d'atténuation}$$

$$j_0 \text{ est une fonction définie par : } j_0(m_a d) = 1 - 2 E_3(m_a d)$$

$$\text{Avec } E_3 \text{ la fonction : } E_n(x) = \int_1^\infty u^{-n} \exp(-ux) du = \int_0^1 t^{n-2} \exp(-x/t) dt$$

$$\text{La fonction } j_0(m_a d) \text{ peut être approximée par } j_0(m_a d) = \frac{2m_a d}{1 + 2m_a d}$$

Si $m_a d \ll 1$ l'échantillon est dit mince et on a : $j_0(m_a d) = 2 m_a d$ d'où $C(E) = 2 m_{act} d \Phi$, la section efficace d'absorption n'intervient plus car le flux neutronique n'est pas atténué dans l'échantillon.

Par contre si $m_a d \gg 1$ l'échantillon est épais, on obtient $j_0(m_a d) = 1$ et $C(E) = \frac{m_{act} d \Phi}{2 m_a}$

Les courbes présentées figure A1.1 mettent en évidence l'effet de l'auto-atténuation du flux de neutrons dans un échantillon de tungstène. Les courbes de la figure du bas représentent le nombre de captures intégré entre 20 MeV et l'énergie en abscisse pour plusieurs épaisseurs. La courbe noire est le résultat obtenu sans atténuation donc correspondant à un échantillon infiniment mince. Les différentes courbes sont normalisés au même nombre de noyaux et par neutron source. On remarque que la majorité des captures a lieu à l'énergie de la résonance à 18,83 eV (voir introduction et tableau II.1) et que leur nombre d'autant plus grand que l'échantillon est mince. Les corrections d'atténuation, dont les calculs sont présentés plus haut, sont minimales jusqu'à une épaisseur de 1 micromètre dans le cas du tungstène.

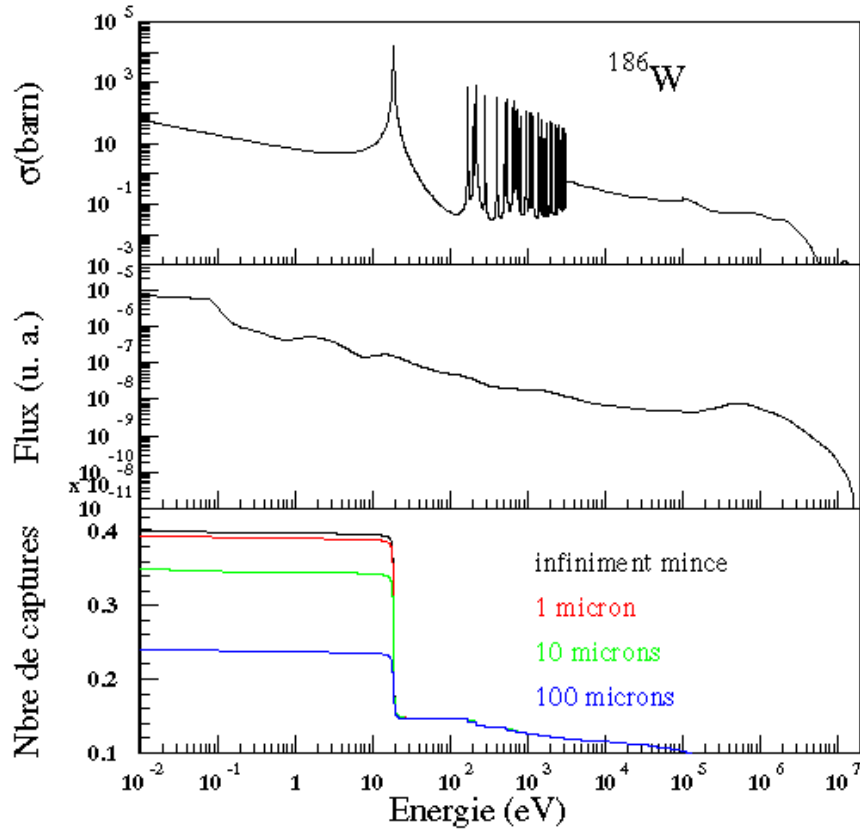


Figure A1.1 : Section efficace de capture du ^{186}W (en haut), flux de neutrons (au milieu) et nombre de captures par micron d'épaisseur dans des échantillons d'épaisseurs croissantes.

2 Application au sandwich :

Il est également intéressant d'utiliser 3 feuilles identiques disposées tel un sandwich. Les feuilles extérieures permettent d'atténuer le flux de neutrons principalement à l'énergie de la ou des résonances. La différence du nombre de captures dans la feuille interne (C_{int}) et les feuilles externes (C_{ext}) correspond aux réactions réalisées à l'énergie des résonances. On a (ref [18]):

$$C_{\text{int}}(E) = \frac{\Phi(E)}{2} [j_0(2m_a d) - j_0(m_a d)]$$

$$C_{\text{ext}}(E) = \frac{\Phi(E)}{4} [j_0(3m_a d) - j_0(2m_a d) + j_0(m_a d)]$$

Dans Cirene le flux dépend de l'énergie. Le nombre de captures est obtenu en intégrant les expressions précédentes sur tout le spectre en énergie soit :

$$I = \int_{E_{\text{min}}}^{E_{\text{max}}} C(E) dE \text{ donc } N_{\text{captures}} = I \times S \times \text{Nbre neutron sources}$$

ANNEXE 2 : détermination du nombre de captures pendant une irradiation.

Un échantillon composé de noyaux de masse A , de densité ρ , d'épaisseur ep , de surface S est soumis à un flux de neutrons $\Phi(t)$ pendant une durée t_i , puis placé devant un détecteur gamma après un temps de refroidissement t_r pour une mesure de durée t_m . Les noyaux $A+1$, créés par capture neutronique avec une section efficace σ , sont radioactifs avec une période T et leur désintégration peut être mise en évidence par la détection d'un gamma avec un rapport d'embranchement I_γ . Le schéma ci-dessous représente l'évolution du nombre de noyaux $A+1$ dans le temps.

1 Pendant l'irradiation ($t < t_i$)

Le nombre de noyaux radioactifs $N(t)$ est régi par l'équation :

$$\frac{dN(t)}{dt} = \Phi(t) S x - I N(t)$$

en posant $x = \frac{\rho N}{A} S ep$ avec N le nombre d'Avogadro et $I = \frac{\ln(2)}{T}$

- Si le flux est constant dans le temps on a :

$$N(t) = \frac{\Phi S x}{I} (1 - e^{-I N(t)}) \quad \text{et} \quad N_{\text{créés}} = \frac{I t_i N(t_i)}{(1 - e^{-I N(t_i)})} \quad (\text{eq A.2.1})$$

Remarquons que si la durée d'irradiation est courte devant la période radioactive ($t_i \ll T$) on a $N_{\text{créés}} = N(t_i)$

- Si le flux n'est pas constant au cours de l'irradiation le traitement précédent n'est plus valable et si la condition $t_i \ll T$ n'est pas vérifiée les variations de flux doivent être prises en compte. Découpons la durée d'irradiation t_i en n intervalles de durée Δt pendant lesquels on a un flux Φ_i .

Le nombre de noyaux est :

$$\text{A } t = 0 \quad N_0 = 0$$

$$\text{A } t = \Delta t \quad N_1 = \Phi_1 S x \Delta t$$

$$\text{A } t = k \Delta t \quad (1 \leq k \leq n) \quad N_k = \Phi_k S x \Delta t - I N_{k-1} \Delta t$$

$$\text{A } t = t_i = n \Delta t \quad N(t_i) = N_n = \Phi_n S x \Delta t - S x \sum_{k=1}^{k=n-1} (-I)^{n-k} \Phi_k (\Delta t)^{n+1-k}$$

$$\text{On a également : } N_{\text{créés}} = S x \sum_{k=1}^{k=n} \Phi_k \Delta t = S x \Delta t \sum_{k=1}^{k=n} \Phi_k$$

$$\text{D'ou } N_{\text{créés}} = \frac{\sum_{k=1}^{k=n} \Phi_k}{\Phi_n - \sum_{k=1}^{k=n-1} (-I)^{n-k} \Phi_k (\Delta t)^{n-k}} N(t_i) \quad (\text{eq A.2.2})$$

La connaissance du nombre de noyaux à la fin de l'irradiation $N(t_i)$ et une mesure relative en ligne du flux de neutrons permet de déterminer $N_{\text{créés}}$.

2 Après l'irradiation $t > t_i$

Le nombre de noyaux radioactifs décroît dans le temps suivant l'équation :

$$N(t) = N(t_i) e^{-\lambda(t-t_i)}$$

Le nombre de noyaux se désintégrant pendant la mesure des gammas (entre t_i+t_r et $t_i+t_r+t_m$) est :

$$N(t_i+t_r) - N(t_i+t_r+t_m) = N(t_i) e^{-\lambda t_r} (1 - e^{-\lambda t_m})$$

Le nombre de gammas détectés est : $N_g = [N(t_i+t_r) - N(t_i+t_r+t_m)] \epsilon \Omega I_g$

avec

Ω l'angle solide soutenu par le détecteur germanium

ϵ l'efficacité intrinsèque du détecteur à l'énergie du γ considéré

I_γ le rapport d'embranchement du γ détecté

Le nombre de noyaux présents à la fin de l'irradiation est donc :

$$N(t_i) = \frac{N_g}{\epsilon \Omega I_g} \frac{e^{-\lambda t_r}}{(1 - e^{-\lambda t_m})}$$

Le nombre de noyaux créés pendant l'irradiation est alors déduit de l'équation A.2.1 ou A.2.2 .

ANNEXE 3: Détermination du rapport isomérique

Soit un échantillon composé de N noyaux A placé dans un flux neutronique Φ irradié pendant une durée t_i , cet échantillon est ensuite retiré puis après un temps de refroidissement t_r il est placé devant un détecteur gamma pendant une durée t_m . Par capture neutronique le noyau A donne le noyau $A+1$ dans son état fondamental et dans son état isomérique avec des sections efficaces σ_g et σ_m respectivement. Ces éléments sont radioactifs avec des périodes T_g et T_m . L'isomère décroît par transition isomérique avec une probabilité p . Etablissons le bilan du nombre de noyaux dans l'état fondamental et isomérique au cours de l'irradiation et du refroidissement.

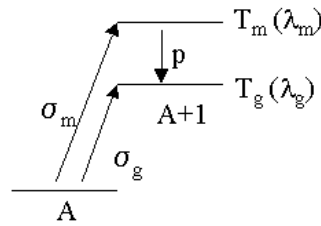


Figure A.3.1 : Schéma d'alimentation des états isomérique et fondamental.

1 Bilan du nombre de noyaux :

1.1 Pendant l'irradiation ($t < t_i$) :

1.1.a Les isomères :

La variation du nombre de noyaux isomériques N_m pendant l'instant dt est régie par :

$$dN_m = R s_m dt - I_m N_m dt \quad \text{avec } R = \Phi N$$

$$\text{on a donc } N_m(t) = \frac{R s_m}{I_m} (1 - e^{-I_m t}) \quad \text{avec } N_m(0) = 0 \quad \text{eq A.3.1}$$

1.1.b Le fondamental :

La variation du nombre de noyaux dans leur état fondamental N_g pendant l'instant dt est régie par :

$$dN_g = R s_g dt - I_g N_g dt + p I_m N_m dt$$

$$\text{soit } \frac{dN_g}{dt}(t) + I_g N_g(t) = R [s_g + p s_m (1 - e^{-I_m t})]$$

En posant $N_g(0) = X_0$ on obtient l'équation A.3.2 :

$$N_g(t) = R \left(\frac{s_g + p s_m}{I_g} \right) + R \left(\frac{s_g I_m + p s_m I_m - s_g I_g}{I_g (I_g - I_m)} \right) e^{-I_g t} - \frac{R p s_m}{(I_g - I_m)} e^{-I_m t} + X_0 e^{-I_g t}$$

1.2 Après l'irradiation ($t > t_i$) :

1.2.a Les isomères :

La variation du nombre de noyaux isomériques N_m pendant l'instant dt est régie par :

$$dN_m = -\lambda_m N_m dt$$

on a donc $N_m(t) = N_m^0 e^{-\lambda_m(t-t_i)}$ avec $N_m(t = t_i) = N_m^0$ eq A.3.3

1.2.b Le fondamental :

La variation du nombre de noyaux dans leur état fondamental N_g pendant l'instant dt est régie par :

$$dN_g = -\lambda_g N_g dt + p \lambda_m N_m dt$$

soit en posant $N_g(t_i) = N_g^0$

$$N_g(t) = N_g^0 e^{-\lambda_g(t-t_i)} + \frac{p \lambda_m N_m^0}{(\lambda_g - \lambda_m)} \left(e^{-\lambda_m(t-t_i)} - e^{-\lambda_g(t-t_i)} \right) \text{ eq A.3.4}$$

2 Détermination du rapport isomérique :

2.1 A partir du nombre de noyaux en fin d'irradiation :

A partir des équations A.3.1 et A.3.2 le rapport isomérique, défini par $RI = \frac{S_m}{S_g}$,

peut être déduit du nombre de noyaux isomériques $N_m(t_i)$ et fondamental $N_g(t_i)$ présents en fin d'irradiation par la relation :

$$RI^{-1} = \frac{1 - e^{-\lambda_m t_i}}{1 - e^{-\lambda_g t_i}} \left[\frac{\lambda_g N_g(t_i)}{\lambda_m N_m(t_i)} - \frac{p \lambda_g}{\lambda_g - \lambda_m} \right] + \frac{p \lambda_m}{\lambda_g - \lambda_m} - \frac{\lambda_g}{\lambda_m} X_0 \frac{e^{-\lambda_g t_i} (1 - e^{-\lambda_m t_i})}{N_m(t_i) (1 - e^{-\lambda_g t_i})} \text{ eq A.3.5}$$

2.2 A partir des mesures d'activité :

$N_m(t_i)$ et $N_g(t_i)$ sont déduits de la mesure d'activité réalisée après un temps de refroidissement t_r . Soit S_m et S_g les aires des pics γ signant la décroissance de l'isomère et du fondamental respectivement obtenus pendant une mesure de durée t_m réalisée après un temps de refroidissement t_r . Soit ϵ l'efficacité globale de détection et I le nombre de gamma émis par désintégration.

2.2.1 Les isomères

On a $S_m = \epsilon_m I_m [N_m(t_i + t_r) - N_m(t_i + t_r + t_m)]$

d'ou d'après l'équation A.3.3 : $S_m = \epsilon_m I_m N_m^0 e^{-\lambda_m t_r} (1 - e^{-\lambda_m t_m})$ eq A.3.6

2.2.2 Le fondamental

On a $S_g = \mathbf{e}_g I_g [N_g(t_i+t_r) - N_g(t_i+t_r+t_m)]$

d'où d'après l'équation A.3.4 :

$$S_g = \mathbf{e}_g I_g \left[N_g^0 e^{-\mathbf{I}_g t_r} (1 - e^{-\mathbf{I}_g t_m}) + \frac{p \mathbf{I}_m}{\mathbf{I}_g - \mathbf{I}_m} N_m^0 e^{-\mathbf{I}_m t_r} (1 - e^{-\mathbf{I}_m t_m}) - \frac{p \mathbf{I}_m}{\mathbf{I}_g - \mathbf{I}_m} N_m^0 e^{-\mathbf{I}_g t_r} (1 - e^{-\mathbf{I}_g t_m}) \right]$$

eq A.3.7

Des deux équations précédentes on obtient :

$$\frac{N_g^0}{N_m^0} = \frac{e^{-\mathbf{I}_m t_r}}{e^{-\mathbf{I}_g t_r}} \frac{1 - e^{-\mathbf{I}_m t_m}}{1 - e^{-\mathbf{I}_g t_m}} \left[\frac{S_g \mathbf{e}_m I_m}{S_m \mathbf{e}_g I_g} - \frac{p \mathbf{I}_m}{\mathbf{I}_g - \mathbf{I}_m} + \frac{p \mathbf{I}_m}{\mathbf{I}_g - \mathbf{I}_m} \frac{e^{-\mathbf{I}_g t_r} (1 - e^{-\mathbf{I}_g t_m})}{e^{-\mathbf{I}_m t_r} (1 - e^{-\mathbf{I}_m t_m})} \right] \text{ eq A.3.8}$$

Des équations A.3.5, A.3.7 et A.3.8 on tire :

$$RI^{-1} = \frac{\mathbf{I}_g f_m(t_i)}{\mathbf{I}_m f_g(t_i)} \left(\frac{S_g \mathbf{e}_m I_m}{S_m \mathbf{e}_g I_g} - p \frac{\mathbf{I}_g}{\mathbf{I}_g - \mathbf{I}_m} \right) + p \frac{\mathbf{I}_m}{\mathbf{I}_g - \mathbf{I}_m}$$

avec la fonction $f_g(t) = (1 - e^{-\mathbf{I}_g t}) e^{-\mathbf{I}_g t_r} (1 - e^{-\mathbf{I}_g t_m})$

Ce résultat est effectivement le même que celui publié dans la référence [2].

Bibliographie

1. C.T. Bishop, H. K. Vonach and J. R. Huizenga, Isomer Ratio for some (n, γ) reactions, Nuclear Physics **60** (1964) 241-249
2. A. G. Belov, Excitation of Isomeric States in (γ ,n) and (n, γ) Reactions on Eu Isotopes, Physics of Atomic Nuclei, **60**, (1997), pp 1773-1779
3. B. Keisch, Phys. Rev. **C 129**, 769-775 (1963)
4. A. A. Bergman et al., Spectromètre neutronique fonctionnant d'après le temps de ralentissement des neutrons dans le plomb, Compte-rendu de la 1^{ère} conférence internationale sur les applications pacifiques de l'énergie atomique, Vol IV, Genève (1955)
5. M. Sawan and R. W. Conn, Neutron Pulses Slowing Down in Heavy Media Analysis with Applications of the Lead Spectrometer, Nuclear Science and Engineering, **54**, 127-142 (1974)
6. Jen-Chang Chou and H. Werle, (n, γ) cross section measurements of ⁹⁹Tc, Eu, Sm and Fe in the energy range 1 eV to 50 keV with a slowing down time spectrometer, Journal of Nuclear Energy, **vol 27** , pp 811 to 823 (1973).
7. S. Yamamoto, Fission Cross-Sections Measurement of ²⁴¹Am between 0.1 eV and 10 keV with Lead Slowing-Down Spectrometer and at Thermal Neutron Energy, Nuclear Science and Engineering, **126**, 201-212 (1997).
8. R. E. Slovacek et al., ²³⁸U(n,f) Measurements Below 100 keV, Nuclear Science and Engineering, **62**, 455-462 (1977).
9. C. Rubbia, S. Buono, Y. Kadi and J. A. Rubio, Fast Neutron Incineration in the energy amplifier as alternative to geologic storage : the case of Spain, CERN-LHC-97-001-EET
10. C. Rubbia, Resonance enhanced Neutron Captures For Element Activation And Waste Transmutation, CERN-LHC-97-004-EET
11. H. Arnould et al., Experimental verification of neutron phenomenology in lead and transmutation by adiabatic resonance crossing in accelerator driven systems, Physics Letters **B 458** (1999) 167-180
12. J. F. Briesmeister (Ed), MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4B, LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico (1997).
13. H. J. Brede et al., Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res., **A274**, 332-344,(1989)
14. S.F. Mughabghab, M. Divadeenam and N. E. Holden, Neutrons Cross Sections, Neutron Resonances Parameters and Thermal Cross Sections, Academic Press (1981).

15. L. Maunoury et al., Isomeric target for nuclear structures studies, Nuclear Physics **A701** (2002) 286c-291c
16. Table of Isotopes, edited by C. Michael Lederer and Virginia S. Shirley
17. O. Bersillon, in Proceeding of the 2nd International Conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies, Kalmar, Sweden, 1996, edited by H. Condé (Uppsala University, Uppsala,1996), p 520.
18. K. H. Beckurts and K. Wirtz, Neutron physics, Springer-Verlag (1964)
19. T. Granier et al., Measuring Neutron-Induced Fission Cross Section of Shortlived Actinides Using a Lead Neutron-Slowing-Down Spectrometer, Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res., **A506**, 149-159,(2003).

ÉDITÉ PAR
LA DIRECTION DES SYSTEMES
D'INFORMATION

CEA / SACLAY 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX FRANCE