

Pertes de coïncidence gamma-gamma dans des sources épaisses

G. Lhersonneau, O. Bajeat

▶ **To cite this version:**

G. Lhersonneau, O. Bajeat. Pertes de coïncidence gamma-gamma dans des sources épaisses. 2011, pp.1-13. in2p3-00644009

HAL Id: in2p3-00644009
https://hal.in2p3.fr/in2p3-00644009

Submitted on 23 Nov 2011

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

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

Grand Accélérateur National d'Ions Lourds
GANIL
Laboratoire commun CEA / DSM - CNRS / IN²P³

Pertes de coïncidences gamma-gamma dans des sources épaisses

G. Lhersonneau et O. Bajeat.

GANIL, CEA/DSN-CNRS/IN2P3, Bd. H. Becquerel, BP 55027, 14076 Caen Cedex 5, France

GANIL R 2011 02

Sommaire

1. Contexte 3
2. Problématique 4
3. Calcul ab initio 8
4. Calcul adapté de FICNER 9
5. Résultats 10
6. Conclusions et perspectives 13
7. Références 13

1. Contexte

Cette étude est motivée par un projet de mesures de section efficaces ayant pour but la détermination expérimentale des taux de production de noyaux exotiques riches en neutrons attendus dans les cibles d'UCx de Spiral2. Les cibles sont constituées de barillets cylindriques, eux mêmes composés de disques. Une estimation expérimentale du taux de production dans la cible peut donc être faite en sélectionnant un certain nombre de disques selon leur position dans la cible et en mesurant le nombre de noyaux présents. La cible est décrite dans [1]. Des calculs de taux de production ont ensuite été faits par M. Fadil [2]. La motivation de la mesure est qu'une simulation de l'expérience à IGISOL pour une cible mince (90 mg/cm2) [3] a donné des résultats trop optimistes qui suggèrent que les bibliothèques de section efficaces ne sont pas fiables aux énergies neutroniques à considérer pour Spiral2.

Il est d'abord envisagé d'irradier une feuille d'uranium assez mince (quelques g/cm^2) par des neutrons pour obtenir des sections efficaces. Une proposition d'expérience a été acceptée par le PAC de Jyväskylä où un faisceau de neutrons obtenu par l'envoi de deutons de 40 MeV sur un convertisseur de carbone, analogue à celui de Spiral2, est disponible et est bien connu [4]. Ce faisceau est présenté sur la figure 1. La mesure comportera une série de cycles avec une irradiation par les neutrons, un transport de la cible puis la détection les radiations gamma émises par les noyaux se trouvant dans les cibles.

Afin d'éviter certaines hypothèses faites pour évaluer les rares mesures publiées [5,6] la mesure se fera sans séparation physique ou chimique des produits de fission. Les noyaux restent dans la cible puis se désexcitent par émission beta puis une série de raies gammas. Il est nécessaire de détecter les raies gamma en coïncidence, plutôt qu'en spectres directs, afin d'identifier le noyau émetteur avec le moins possible d'ambigüité. La condition que les signaux des 2 raies gamma d'énergie bien déterminée soient reçus dans un intervalle de temps d'environ 100 ns réduit fortement l'enregistrement d'évènements non corrélés. La validité du principe d'une telle mesure a été démontrée par un test au LPSC Grenoble conduit en collaboration avec T.Malkiewicz et G.Simpson [7]. Des fragments de fission produits par une source de ^{252}Cf ont été implantés dans une bande de transport pour les amener devant 2 détecteurs au germanium et enregistrer les coïncidences. Un des facteurs à maitriser afin d'obtenir une mesure absolue des taux de production est l'efficacité de détection pour les paires de raies gamma en coïncidence.

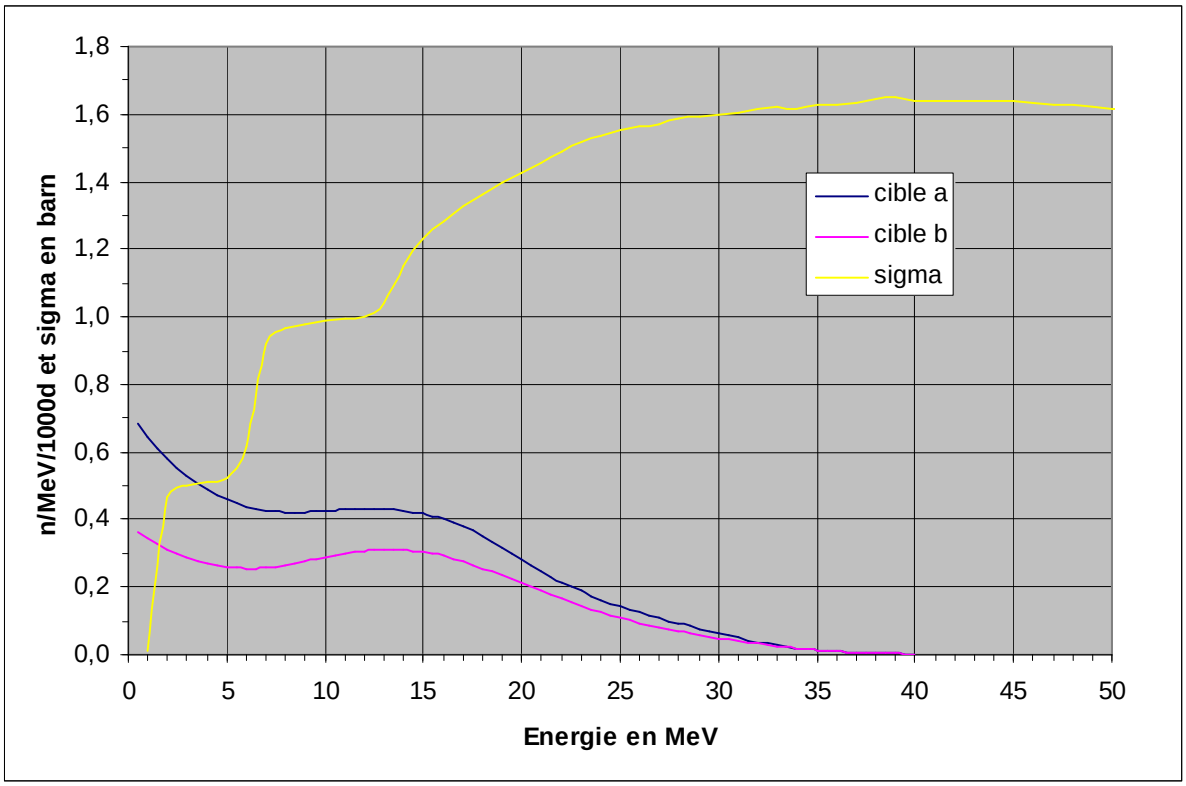


Figure 1 : Spectres de neutrons produits par 40 MeV de deutons sur un convertisseur de carbone incidents sur la cible Spiral2 de référence (a : 19 barillets de disques UCx) et la cible de départ (b : 7 barillets). Les spectres ont été calculés en intégrant les doubles distributions différentielles $\partial^2\Phi/\partial E\partial\Omega$ [4] jusqu'aux angles de 40 (a) et 26 (b) degrés qui essayent de tenir compte de la profondeur moyenne des fissions en augmentant la distance convertisseur-cible de 1.5 cm. Les intégrales, énergies moyennes et sections efficaces moyennes sont respectivement : 10.3 et 6.8 neutrons pour 1000 deutons, 12.1 et 13.0 MeV, 0.94 et 1.04 b. Grâce à un choix judicieux de la taille de la feuille d'uranium et de sa distance au convertisseur le spectre de neutrons pendant l'expérience sera proche de ceux montrés ici. Le spectre sera mesuré dans les mêmes conditions que durant la prise de données par la méthode d'activation en remplaçant l'uranium par des feuilles d'Al, Ni, In et Bi. La courbe (sigma) représente la section efficace de fission de l'uranium 238 prise de NNDC en fonction de l'énergie des neutrons.

2. Problématique

Les disques de carbure d'uranium sont de l'ordre du cm de rayon et quelques mm d'épaisseur. Ce ne sont pas des sources ponctuelles. Cependant, on peut supposer l'activité être répartie uniformément, la variation du flux de neutrons y étant faible sur leur volume. Ceci simplifiera les calculs.

L'efficacité de détection varie avec la position du point source dans le disque. Ce problème a été étudié lors du comptage des feuilles activées par neutrons [4]. L'effet est relativement faible. Dans le cas qui nous concerne, voir figure 2, considérons d_0 la distance du centre du

disque (r=0, z=0) au centre du détecteur dont l'axe est incliné d'un angle θ par rapport à la normale au disque, et sa variation pour (r, z) et une rotation φ dans le plan du disque. La nouvelle distance est donnée par

$$d(r,\varphi,z)^2 = d_0^2 + r^2 + z^2 - 2d_0(r\sin\theta\cos\varphi + z\cos\vartheta)$$

La variation relative d'efficacité ε en considérant uniquement la variation de distance si le détecteur est assez loin est au premier ordre

$$\frac{d\varepsilon}{\varepsilon}(r,\varphi,z) = 2\frac{r}{d}\sin\theta\cos\varphi + 2\frac{z}{d}\cos\vartheta$$

Les contributions de déplacements radialement opposés sur la face du disque (φ, φ+π) se compensent au premier ordre. La variation d'efficacité pour un déplacement selon l'épaisseur du disque z est assez importante mais est également compensée au premier ordre pour des déplacements (z, -z) opposés. Les applications numériques montrent que pour une géométrie réaliste (rayon =1 cm, épaisseur =1 mm, détecteur Ge à 10 cm du centre (d0), de rayon 4 cm et profondeur 8 cm) la variation d'efficacité par effet de volume par rapport à une source ponctuelle est inférieure à 2%.

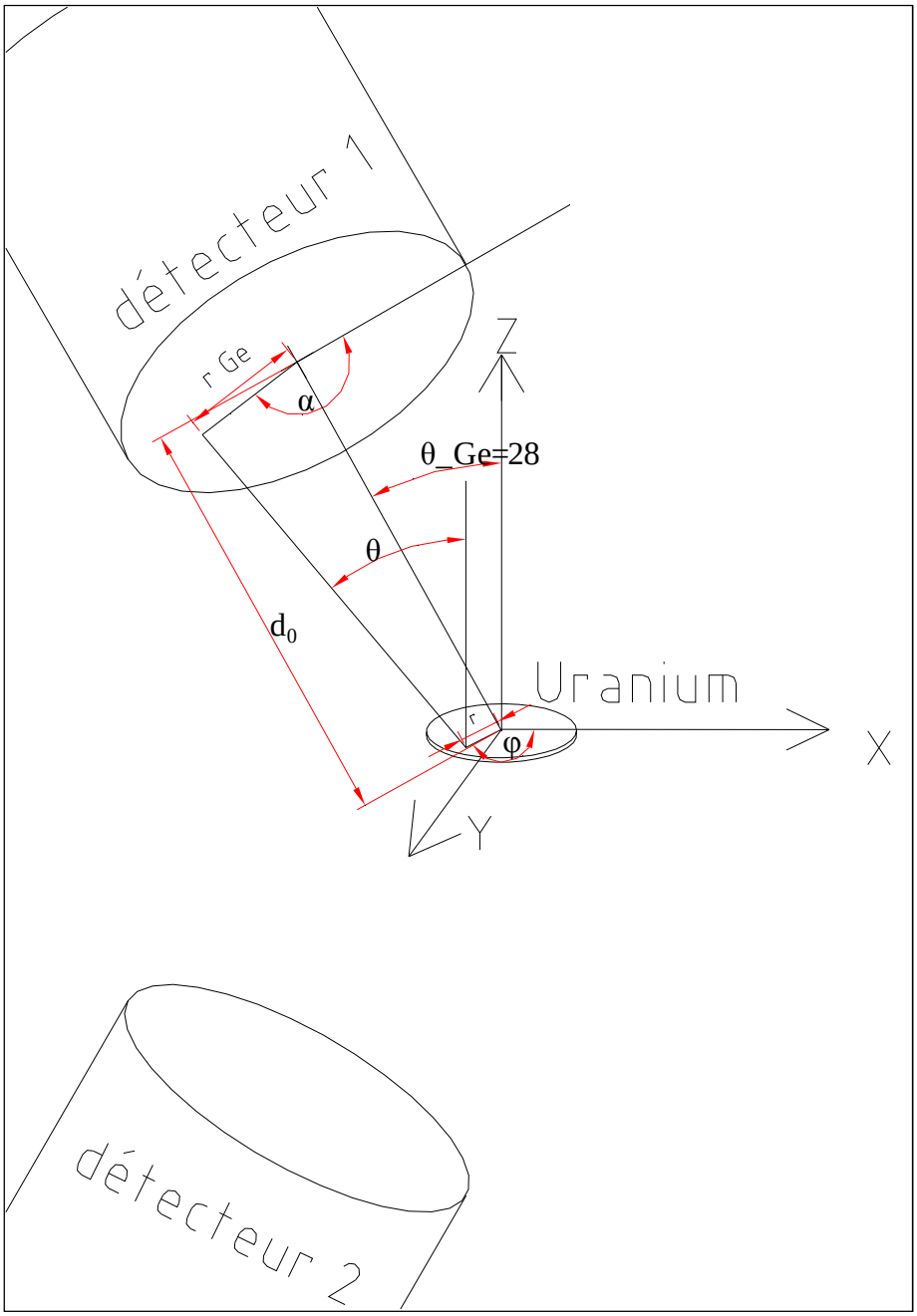


Figure 2 : géométrie de comptage gamma-gamma

Plus conséquente est l'absorption des raies gammas dans la cible. L'uranium est un excellent absorbant de raies gamma, voir la figure 3 tirée de NIST [8]. On aura donc une perte importante des raies à détecter et qui varie fortement selon l'énergie de ces raies. La spécificité de ce problème est que les 2 raies gamma sont émises du même point à l'intérieur de la cible et dans des directions différentes pour être absorbées dans des détecteurs distincts. On ne peut donc pas multiplier les efficacités pour des raies gamma en spectres directs.

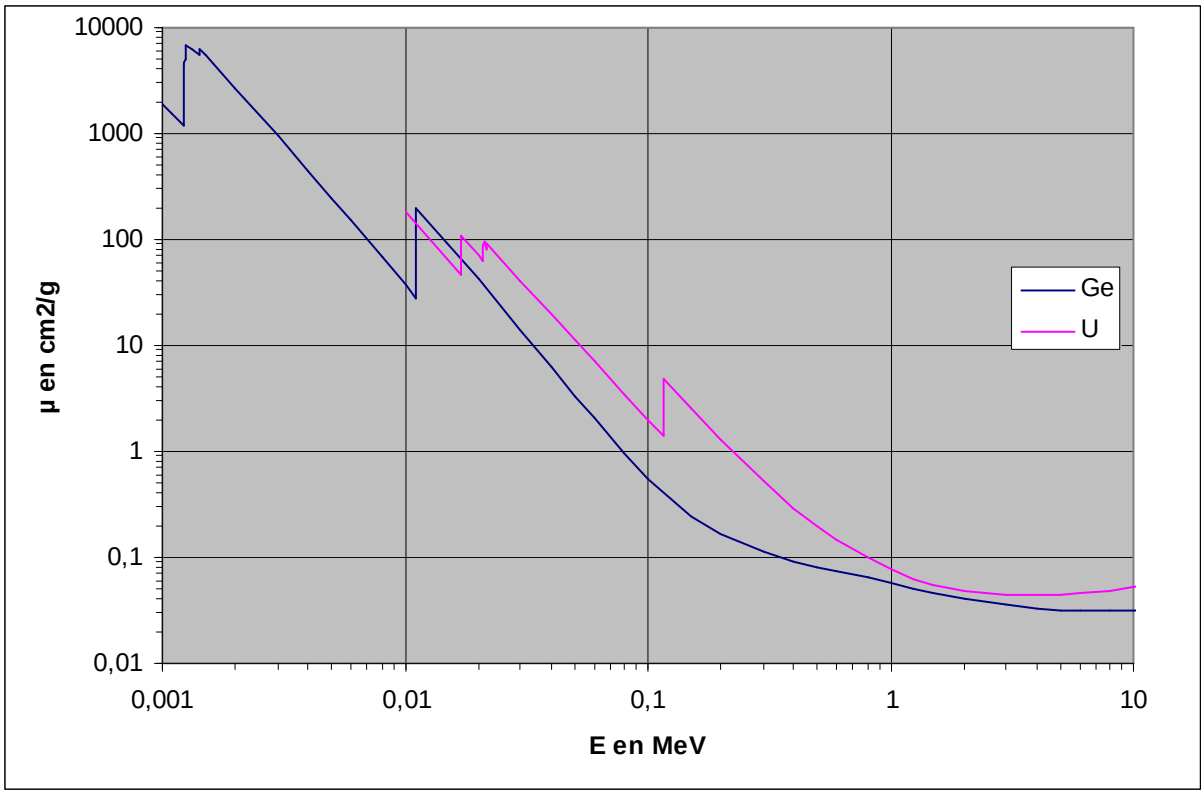


Figure 3. Coefficients d'absorption massiques pour les raies gamma pour l'uranium (cible) et Ge (détecteur) pris de NIST. Les densités de l'uranium métallique et du germanium sont 19.0 et 5.32 g/cm^3. Les données tabulées dans le site NIST ont été interpolées en log-log aux énergies d'intérêt pour nos exemples de calculs.

Pour l'expérience à Jyväskylä nous utiliserons une feuille d'uranium métallique de densité ρ=19 g/cm^3 plutôt que de l'UCx de densité proche de 3 g/cm^3 dont la surface n'excèdera pas quelques cm^2. La procédure standard de calibration en efficacité est d'utiliser une source de raies gamma ponctuelle d'intensité connue, par exemple ^{152}Eu. Mais une telle source ne reproduit ni les effets dus au volume ni ceux dus à l'absorption. Nous avons donc effectué un calcul de la correction à apporter à l'efficacité mesurée à l'aide de sources ponctuelles.

Il est hors de propos ici de décrire l'efficacité intrinsèque du détecteur. Dans le calcul le détecteur joue un rôle qui est de définir dans quelle direction les raies gammas à considérer sont émises. Cependant, leur probabilité d'absorption peut être modulée selon la distance qu'elles sont susceptibles de traverser dans le cristal, ce qui introduit un facteur du type 1-exp(-μL) où μ est le coefficient d'absorption et L la longueur traversée. On calculera donc d'abord pour un point au centre du disque l'intégrale du nombre de radiations émises dans toutes les directions incidentes sur le cristal de Ge et en tenant compte de leur probabilité d'absorption. Ceci est le nombre de gammas détectés pour une source ponctuelle. On calculera ensuite une quantité analogue pour chaque point du disque, en s'assurant que l'intensité émise totale est conservée, en y ajoutant l'effet d'absorption lors du trajet à l'intérieur du disque. Celle ci sera ensuite intégrée sur le volume du disque pour obtenir le nombre de raies gamma détectées. Finalement la division par l'intégrale pour la source ponctuelle donnera la fraction d'intensité transmise pour la source étendue.

Deux calculs indépendants ont été effectués, l'un ab initio par G.Lhersonneau, l'autre en adaptant le code FICNER développé pour PARRNe à l'IPN-Orsay pour estimer le nombre de fissions par neutrons [9] par O.Bajeat.

3. Calcul ab initio

Le disque source est centré à l'origine (r=0, z=0). Le rayon et l'épaisseur sont R et Z. Il est possible de voir l'effet du volume seul en effectuant le calcul avec $\mu(U)=0$. Le facteur dû à l'absorption ne peut être isolé par le calcul mais seulement en comparant les résultats avec $\mu(U) = 0$ et à sa vraie valeur. Pour représenter les détecteurs une simplification a été effectuée. Les raies gamma interagissent avec le détecteur en moyenne bien avant la fin de leur parcours maximum dans le cristal. Le détecteur est remplacé par un disque repoussé de la distance moyenne $1/\mu(Ge,E)$ au delà de la face avant et de probabilité d'absorption $p(E)=1-\exp(-\mu L)$, où L est pris égal à la longueur du détecteur divisée par le cosinus de l'angle d'incidence sur la face avant. On notera que négliger les effets de bord correspond assez bien aux conditions expérimentales où les détecteurs seront loin du disque source. O.Bajeat propose une meilleure description de la probabilité d'absorption (voir plus loin), et donc des efficacités en valeur absolue, qui présente l'intérêt supplémentaire de permettre de calculer le taux de comptage. Les bornes des intégrales sont calculées en utilisant pour le disque Ge les coordonnées polaires (r_{Ge}, α_{Ge}). Les coordonnées du point source (r, φ, z) et du point sur le disque Ge définissent l'angle d'émergence θ ainsi que la distance et l'angle d'incidence sur le détecteur. L'intensité émise est isotrope, donc varie selon sinθ. L'absorption dans le disque est une conséquence de la distance parcourue qui est $(z+ Z/2)/\cos\theta$ ou $(Z/2- z)/\cos\theta$, selon que la raie gamma sort par la face inférieure ou supérieure du disque. Ce calcul permet au détecteur de regarder le disque sous incidence quelconque. Une configuration symétrique a été choisie avec θ_{Ge} = 28 degrés afin de minimiser les effets de corrélation angulaire en annulant le polynôme de Legendre $P_2(\cos\theta)$.

4. Calcul adapté de FICNER

Le modèle FICNER adapté à cette expérience consiste à faire le calcul suivant avec la géométrie présentée sur la figure 4.

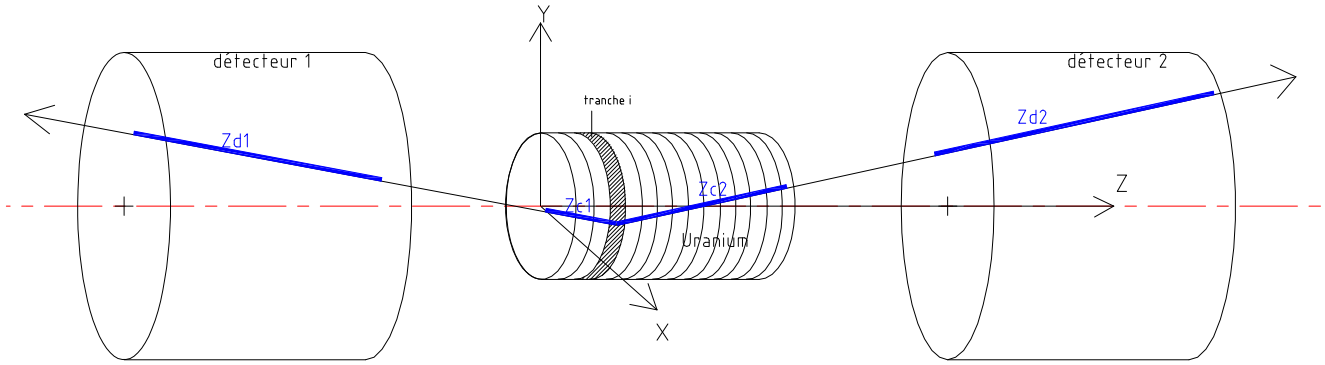


Figure 4 : le modèle FICNER

$P_1(i)$: probabilité qu'un photon d'énergie E1 émis de la tranche i soit détecté sur le détecteur 1.

$$P_1(i) = \frac{1}{4\pi}\frac{1}{\pi R^2}\int e^{-\mu_c Zc1(x,y,\theta,\varphi)}\left(1-e^{-\mu_d Zd1(x,y,\theta,\varphi)}\right)\sin(\theta)dxdyd\theta d\varphi$$

Avec

R : rayon de la cible d'uranium
x,y : coordonnées du point d'émission du photon dans la tranche considérée
θ,φ : angle d'émission du photon en coordonnées sphériques
µc : coefficient d'atténuation des photons d'énergie E1 dans l'uranium
Zc1 : parcours du photon dans l'uranium
µd : coefficient d'atténuation des photons d'énergie E1 dans le détecteur
Zd1 : parcours du photon dans le détecteur

Probabilité moyenne de détection sur 1 détecteur : $P(E1) = 1/Ni \times \sum P_1(i)$

De même, $P_2(i)$ est la probabilité qu'un photon d'énergie E2 émis de la tranche i soit détecté sur le détecteur 2.

La probabilité de détecter 2 photons d'énergies E1 et E2 émis d'une tranche i, en coïncidence sur les 2 détecteurs est : $P_E1/E2(i) = P_1(i) \times P_2(i)$

L'efficacité de détection en coïncidence de la cible entière sur les 2 détecteurs est : $P(E1/E2) = 1/Ni \times \sum P_E1/E2(i)$

L'effet de l'absorption des gammas dans l'uranium est calculé en divisant cette valeur par le résultat du calcul fait en remplaçant µc par 0.

5. Résultats

Les deux calculs donnent des résultats très semblables qui diffèrent par moins que 1%. Les courbes obtenues pour les 2 calculs ne sont pratiquement pas séparables. Cette très bonne correspondance nous donne confiance, en écartant les risques d'une erreur de programmation. Nous présentons une série de courbes, figures 5-7 afin de montrer l'importance des effets. Il est possible d'obtenir les codes chez les auteurs pour des applications numériques.

L'absorption de paires de raies gamma en coïncidence dans les cibles d'uranium, même assez minces avec 1 g/cm^2, conduit à des pertes de l'ordre de 50% pour les coïncidences entre les transitions d'énergie les plus communes. Il est impératif de maitriser ces phénomènes afin de bien connaitre les productions dans la cible. Les sections efficaces utilisées par les modèles [3] semblent être trop optimistes d'un facteur 2-3 par comparaison avec les expériences citées plus haut. Etant donné que dans l'expérience projetée le flux de neutrons sera déterminé à 10-15% près par activation, il serait souhaitable que l'efficacité de détection soit déterminée à mieux que 5% pour ne pas avoir trop de poids dans l'erreur finale. Il est difficile, mais possible, d'atteindre 3% pour une cible ponctuelle avec des sources étalonnées en intensité. La convergence de nos résultats numériques nous permet de croire que l'erreur sur la correction est bien inférieure à 2%. La précision de 5% sur l'efficacité sera donc atteinte. En fin de compte, l'incertitude sur les sections efficaces ne devrait pas excéder 20% (en tenant compte des données spectroscopiques) dans les cas favorables. La précision serait donc suffisante pour être significative.

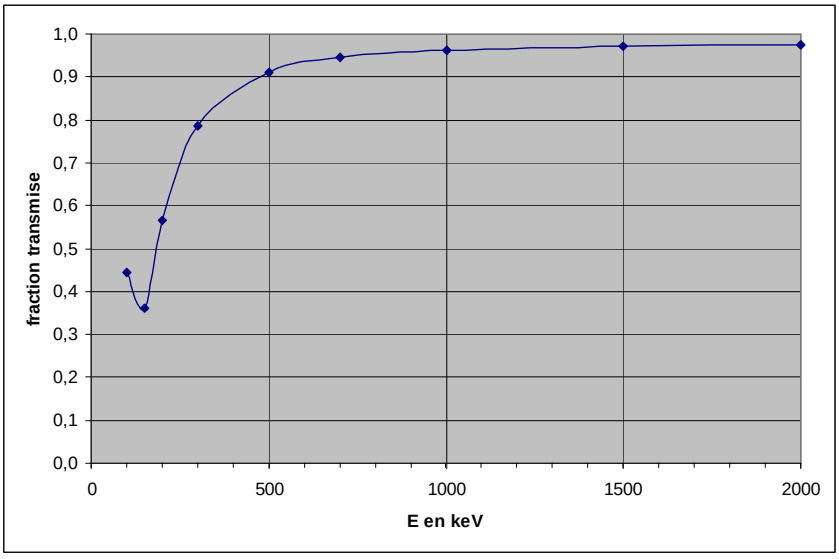


Figure 5. Fraction transmise de l'activité produite dans un disque d'uranium de rayon 1 cm, épaisseur 0.5 mm, uniformément actif et vu par un détecteur à 10 cm de distance, de rayon 4 cm et profondeur 8 cm dont l'axe est perpendiculaire au plan du disque source. Il s'agit ici d'une raie gamma en spectre direct. Il est intéressant de remarquer la discontinuité due à la couche K dans l'atome d'uranium, ainsi que le fait que l'absorption n'est jamais nulle même à haute énergie.

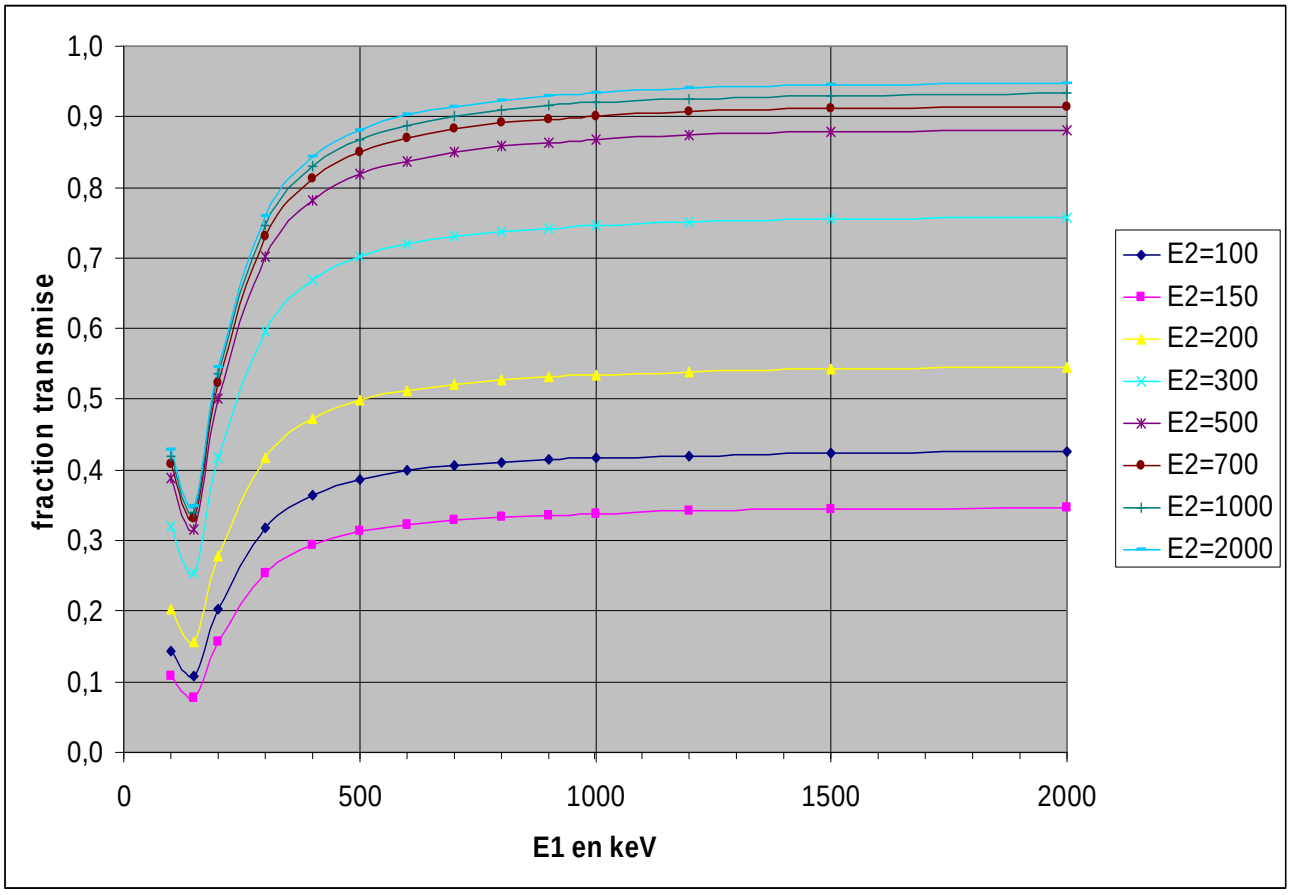


Figure 6. Fraction de l'activité produite et transmise dans les conditions décrites figure 5 pour plusieurs paires d'énergies.

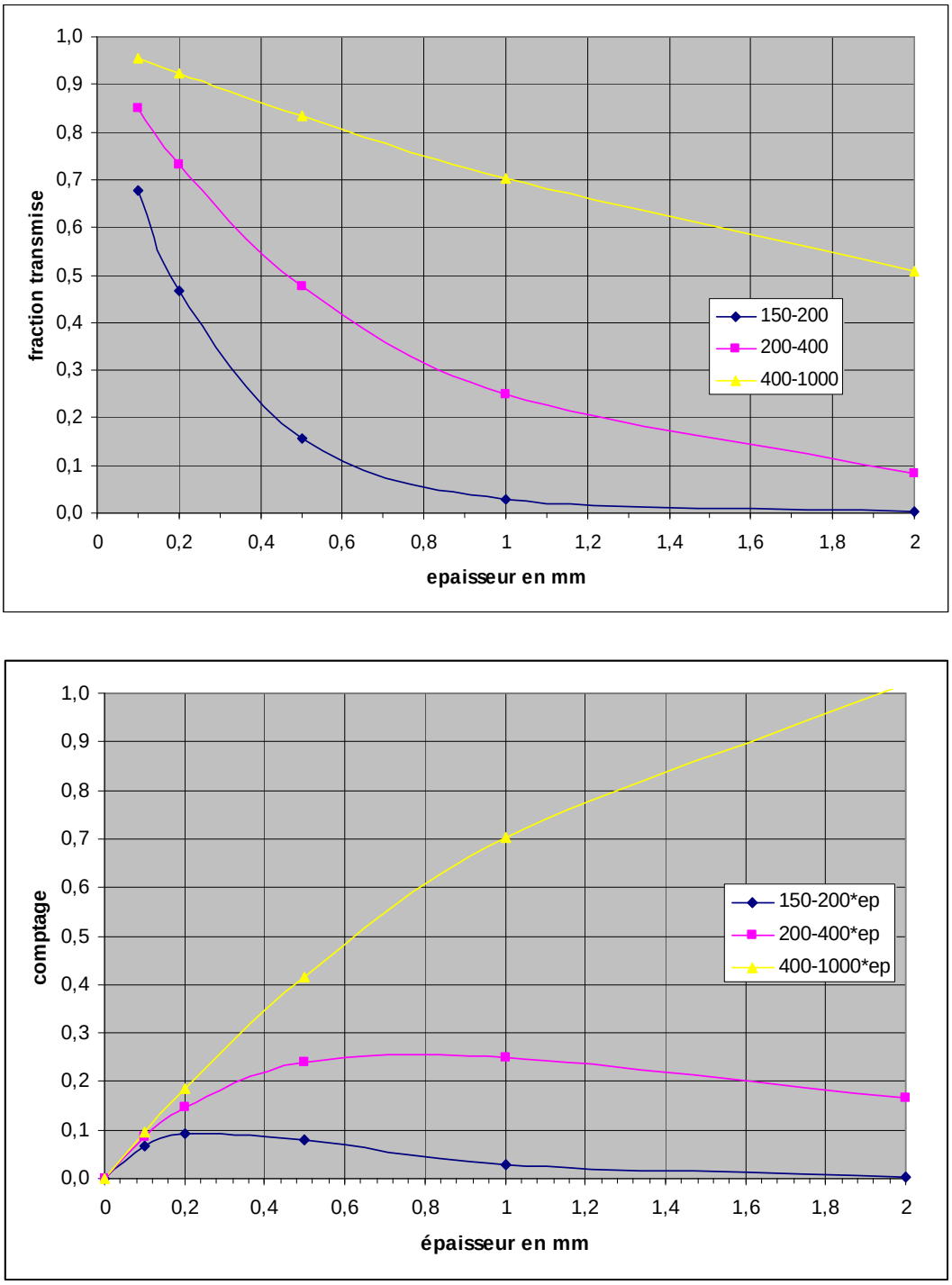


Figure 7. Variations de la fraction transmise pour des paires d'énergies en coïncidence choisies en fonction de l'épaisseur du disque source (les autres paramètres étant comme décrits sur la figure 5). En haut la fraction transmise, en bas le produit des courbes du haut par l'épaisseur du disque pour montrer la statistique de comptage en unités arbitraires. Il est clair qu'une feuille très épaisse n'est pas la meilleure en dépit d'un plus grand nombre de noyaux produits, sauf pour de hautes énergies qui sont assez improbables d'etre émises en coïncidence. Une épaisseur maximale de 0.5 mm d'uranium métallique est suggérée par ce diagramme.

6. Conclusions et perspectives

Le très bon accord entre 2 calculs que l'on peut considérer faits indépendamment l'un de l'autre, malgré de nombreuses concertations entre les auteurs, nous laisse espérer que le problème a été correctement traité. Il serait quand même souhaitable de vérifier les calculs en utilisant une source épaisse dans laquelle l'activité est répartie uniformément : Celle-ci pourrait être un liquide contenant une substance radioactive ou un solide irradié par des neutrons.

Les résultats suggèrent qu'une épaisseur optimale pour l'expérience projetée serait de l'ordre de 0.5 mm pour une feuille métallique, ou 3 mm pour de l'UCx de densité normale, ce qui correspond bien aux pastilles (1 ou 2) fabriquées actuellement.

En dernière remarque, une étape intermédiaire du calcul est la correction pour une seule raie gamma. Cela trouve une application lors de comptages plus communs comme une méthode par activation classique si l'échantillon a un certain volume. Une autre application serait de remonter à la production de noyaux produits dans les éléments de ligne du faisceau irradiés par accident. Il faut cependant noter que, à la différence des neutrons, les particules chargées ont une perte d'énergie et ne produisent pas l'activité de façon uniforme à l'intérieur des matériaux. Il faudrait alors moduler les fonctions intégrées par une section efficace variant le long d'une coordonnée comme z. Ceci apparait assez difficile puisque c'est précisément l'intégrale de cette section efficace qui est mesurée. Il faudrait donc faire appel à un modèle pour en décrire la variation avec l'énergie du projectile. Une méthode alternative serait de découper la cible épaisse en tranches suffisamment minces pour pouvoir considérer que la section efficace est constante dans chaque tranche.

7. Références

[1] Spiral 2 Project APD report, january 2005 (p. IV-25)
[2] About the production rates and the activation of the uranium carbide target for SPIRAL 2. M.Fadil et al. EDMS I-011465 : article EMIS 2007.
[3] Simulation de l'expérience IGISOL par M.Fadil (Ganil), communication privée.
[4] Mesure des flux de neutrons par deutons de 40 MeV sur convertisseurs de carbone, eau et eau lourde ; G.Lhersonneau et al. NIMA 603 (2009), 228
[5] Mesures de sections efficaces de produits de fission par neutrons rapides en détectant les raies gamma des fragments excités ; P.Casoli , Thèse Bordeaux, Nr. 2710 (2003)
[6] Mesures de sections efficaces de produits de fission par neutrons rapides en utilisant la décroissance des fragments séparés par la méthode du guide d'ions ; G.Lhersonneau et al., EPJA 9 (2000), 385
[7] Rapport du test de coïncidences de raies gamma produites par la fission du californium 252 par G.Lhersonneau,T.Malkiewicz, G.Simpson, M.Randhame au LPSC-Grenoble, disponible sur demande
[8] Coefficients d'absorption massiques des raies gamma pour tous les éléments stables ; http:www.nist.gov/physlab/data/xraycoef/index.cfm
[9] Modélisation d'une cible pour produits de fission; M.Mirea et al., EPJA 11 (2001), 59