

CERN LIBRARIES, GENEVA



SCAN-9804136

IPNO 98-04

**Neutrons produits dans des cibles épaisses de Be et ^{238}U par
des deutons de 100 MeV/A et de C par des ^{36}Ar de 95 MeV/A.
Débit de dose résultant de l'activation de l'uranium**

N.Pauwels, J.Proust, F.Clapier, P.Gara, M.Mirea, J.Obert
et le groupe R&DA/FE/SIS (IPNO)
T.Granier, G.Bélier, T.Ethvignot (CEA/BIII/SPN), C.F.Liang (CSNSM),
A.C.C.Villari, M.Bajard, R.Leroy et le groupe SIRa (GANIL)

Neutrons produits dans des cibles épaisses de Be et ^{238}U par des deutons de 100 MeV/A et de C par des ^{36}Ar de 95 MeV/A. Débit de dose résultant de l'activation de l'uranium

N.Pauwels, J.Proust, F.Clapier, P.Gara, M.Mirea, J.Obert et le groupe
R&DA/FE/SIS
Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay cedex, France

T.Granier, G.Béliier, T.Ethvignot
C.E.A., Service de Physique Nucléaire BP n°12, 91680 Bruyères-Le-Châtel, France

C.F.Liang
C.S.N.S.M., bât.104-108, 91406 Orsay cedex, France

A.C.C.Villari, M.Bajard, R.Leroy et le groupe SIRa
G.A.N.I.L., B.P. 5027, 14021 Caen cedex, France

-1- Introduction

La production de faisceaux d'ions radioactifs est un sujet qui intéresse de nombreux laboratoires. Actuellement, la construction de SPIRAL [1] (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne) est très avancée et de nouveaux projets tels que SPIRAL II et PARRNE [2] (Production d'Atomes Radioactifs Riches en NEutrons) sont déjà lancés : leur but est de prévoir des développements futurs pour la production de faisceaux d'ions radioactifs riches en neutrons. Il est envisagé de compléter la fragmentation d'ions lourds par l'utilisation de neutrons issus de l'interaction de particules légères avec des cibles épaisses pour induire de la fission.

Dans le cadre de ces projets de nombreux sujets sont étudiés notamment les aspects de radioprotection et de sûreté. Plusieurs expériences ont déjà été réalisées avec diverses combinaisons projectile-cible dans un domaine d'énergie allant de 10 à 200 MeV/A (projectiles: protons, deutons, ^3He , ^{13}C , ^{20}Ne , ^{36}Ar et ^{78}Kr - cibles: Be, C, Al, Ta, W, et U). Ces études couvrent les domaines suivants:

- inventaire des produits de réaction formés dans la cible.
- potentiels de contamination contenus dans les matières à manipuler (mesures d'activation des cibles et de sections efficaces de production de radioéléments).
- débits de dose dus aux photons émis par la matière activée [3, 4, 5].
- mesures de flux ($d^2n / dE d\theta$) de neutrons secondaires de 6 à 140 MeV par une méthode basée sur l'utilisation de diverses combinaisons de détecteurs à activation [6].
- activation par neutrons des matières entrant dans la construction d'appareillages expérimentaux [4] et dosimétrie des neutrons [7, 8]

Nous nous proposons dans ce compte-rendu de présenter des résultats obtenus lors de deux expériences, une réalisée au GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) autour

du dispositif SIRa (Séparateur d'Ions Radioactifs) avec des ions ^{36}Ar de 95MeV/A sur du carbone et l'autre au LNS (Laboratoire National Saturne) avec des deutons de 100MeV/A sur de l'uranium et du béryllium. Lors de ces expériences les faisceaux étaient totalement arrêtés dans les cibles. Le présent rapport a pour but d'établir des données sur l'activation d'une cible d'uranium par des deutons, et sur la production de neutrons et leur atténuation par du béton. Le schéma de principe des irradiations est représenté sur la figure 1 (les aspects physiques associés feront l'objet d'une publication ultérieure).

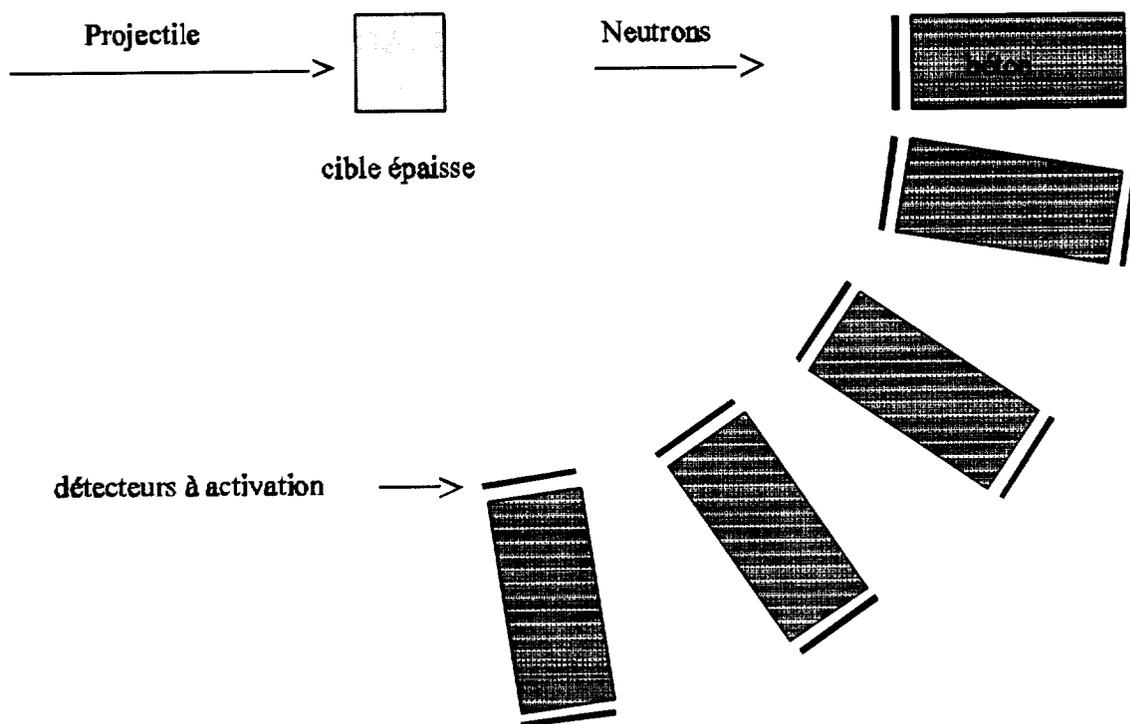


Figure 1 : schéma de principe des expériences

-2- Mesure du débit de dose d'un barreau d'uranium 238

L'emploi éventuel d'une cible épaisse d'uranium pour convertir des deutons de 200MeV en neutrons justifiait une détermination expérimentale du niveau de radiation induit afin d'estimer les risques. Par ailleurs, dans une cible épaisse de béryllium il y a production de ^7Be et de quelques radioéléments induits dans les impuretés mais qui n'engendrent pas de contraintes particulières de radioprotection.

Au LNS, le débit de dose γ du barreau d'uranium ayant servi de cible a été suivi pendant plusieurs heures après la fin de l'irradiation. Pour cette mesure, nous avons utilisé une chambre d'ionisation (à paroi de 300mg/cm^2) du tableau de contrôle des radiations.

A.H.Sullivan [9] a établi deux équations pour extrapoler le débit de dose γ produit par une cible épaisse irradiée par des protons. L'une de ces formules s'applique aux cibles de densité moyenne et l'autre aux cibles de densité élevée. Des mesures réalisées lors de diverses expériences en ions lourds [3, 5] ont montré que les résultats expérimentaux sont reproduits correctement. Dans le cas de l'uranium, nous avons utilisé la formule pour les cibles denses qui s'écrit:

$$D = D_0 \phi (t^{-0.4} - (T + t)^{-0.4}) \text{ Sv/h à 1m} \quad (1)$$

ϕ est le flux de particules incidentes (en p.p.s.), T le temps d'irradiation, t le temps écoulé après la fin de l'irradiation et D_0 un paramètre qui caractérise le couple projectile-cible. Les résultats présentés figure 2 montrent un bon accord entre expérience et calcul. Pour des deutons de 100MeV/A sur de l'uranium (tableau 1) nous avons trouvé $D_0 = 1.28 \cdot 10^{-14} \text{ Sv/h/pps}$ à 1m. Il est donc possible de prévoir le débit de dose γ pour des expériences au cours desquelles de l'uranium serait irradié avec un faisceau de deutons de 100MeV/A .

L'utilisation de ces résultats reste quand même délicate car pour cette expérience la cible d'uranium avait une épaisseur de 25mm et d'un diamètre de 30mm. Dans ce cas, les photons γ de basse énergie sont auto-atténués dans l'échantillon, la mesure du débit de dose comprend donc essentiellement des photons de haute énergie. L'interaction des photons dans l'uranium a été déterminée à l'aide d'un programme de type Monte-Carlo. Celui-ci modélise l'émission et l'atténuation des photons à l'intérieur de l'échantillon et calcule la transmission en fonction de l'énergie pour la géométrie du système échantillon-détecteur. La transmission s'écrit :

$$T = I / I_0 = 0.683 \exp(-1071.1 / E + 60737 / E^2) \quad (2)$$

où I_0 est le nombre de photons émis, I le nombre sortant et E l'énergie en keV. Pour une cible différente irradiée dans des conditions identiques la valeur du débit de dose trouvée ne sera pas la même. La formule de A.H.Sullivan est une représentation de la variation du débit de dose en fonction du temps, pour une épaisseur de cible donnée.

L'emploi d'un échantillon massif d'uranium métallique irradié à forte intensité devrait engendrer un débit de dose γ très important même après des temps de décroissance de plusieurs semaines. Ce scénario pourrait éventuellement se justifier si la fission induite par un tel procédé se révélait appropriée à une production d'isotopes particuliers. En l'absence de modèles de simulation une simple paramétrisation avec le modèle de A.H.Sullivan rend possible des prédictions du niveau d'irradiation externe.

-3- Mesure du flux de neutrons secondaires

3.1 Principe de la méthode

Le principe de la méthode est d'utiliser un jeu de détecteurs à activation comme spectromètre à neutrons. L'interaction des neutrons incidents avec les détecteurs génère des

réactions de type A(n,X)B. L'activité des isotopes radioactifs ainsi formés est mesurée par spectrométrie γ (il est tenu compte de l'auto-atténuation des photons dans les échantillons). Une équation [6] relie ces activités aux sections efficaces $\sigma(E_n)$ des réactions considérées et au flux de neutrons incidents $\phi(E_n)$:

$$A_{stat} = k \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \sigma(E_n) \phi(E_n) dE_n \quad (3)$$

E_n est l'énergie des neutrons et k est le nombre de noyaux du détecteur. Nous disposons donc pour chaque réaction d'une équation dont l'inconnue est le flux. Il est possible de remonter au flux de neutrons par diverses méthodes. Nous avons choisi de chercher une fonction qui permette de reproduire au mieux les résultats expérimentaux. Pour cela, différentes fonctions ont été testées par une méthode de minimisation de χ^2 et les résultats obtenus ont été validés en comparant les activités mesurées expérimentalement à celles calculées à partir des fonctions trouvées. La meilleure fonction trouvée est de la forme suivante :

$$f(E) = a \exp(-E/b) + c(1 + \exp[(E-d)/g])^{-1} \quad (4)$$

Les détecteurs à activation utilisés pour ces expériences étaient en aluminium, nickel, cobalt et bismuth car pour ces éléments plusieurs sections efficaces de réaction (n, X) sont connues. Les seuils des réactions considérées s'étendent de 1MeV pour la réaction $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ [11] jusqu'à 70MeV pour la réaction $^{209}\text{Bi}(n, 10n)^{200}\text{Bi}$ [10] et pour chacune d'entre elles nous disposons des fonctions d'excitation jusqu'à 140MeV. Les spectres de neutrons seront donc calculés sur une gamme d'énergie allant de 1 à 140MeV.

3.2 Conditions expérimentales

Les mesures de flux de neutrons produits par l'interaction d'un faisceau de particules avec une cible ont été réalisées pour deux ions et trois cibles différents. Le tableau 1 résume les conditions expérimentales pour chacun des couples projectile-cible (l'ajout du cobalt permet d'affiner la méthode) :

Faisceau incident	Energie (MeV/A)	Intensité (p.p.s)	Cible	Temps d'irradiation	Détecteurs à activation	Position des détecteurs
^{36}Ar	95	$6.42 \cdot 10^{11}$	Carbone	88 min	Al, Ni, Bi	$0^\circ, 20^\circ, 45^\circ, 90^\circ$
deutons	100	$7 \cdot 10^{10}$	Béryllium	373 min	Al, Ni, Co, Bi	$0^\circ, 11^\circ, 36^\circ, 60^\circ, 84^\circ$
deutons	100	$7 \cdot 10^{10}$	Uranium	376 min	Al, Ni, Co, Bi	$0^\circ, 11^\circ, 36^\circ, 60^\circ, 84^\circ$

tableau 1 : conditions expérimentales

Les dimensions des détecteurs à activation étaient de 2.5x2.5x0.1 cm pour le nickel, le cobalt et le bismuth et de 2.5x2.5x0.5 cm pour l'aluminium. Ils étaient empilés à 30 cm de la cible. A la fin de chacune des irradiations les échantillons furent récupérés le plus rapidement possible afin de pouvoir mesurer le ^{200}Bi qui est l'élément formé dont la période est la plus courte (36min) [12].

3.3 Résultats : les spectres de neutrons

Les réactions dans les détecteurs en aluminium, cobalt et nickel ont des seuils en énergie inférieurs à 30 MeV, les radioéléments correspondant à ces réactions ont donc été facilement produits. Dans le cas du bismuth, les réactions (n, xn) ont des seuils en énergie plus élevés [9] (jusqu'à 70 MeV pour x=10), il est par conséquent moins probable de les former, notamment à grand angle. Les bismuths 202 à 207 ont pu être détectés dans tous les cas, les bismuths 200 et 201 n'ont pas été observés dans les détecteurs en Bi situés à 90° lors de l'expérience avec l'argon.

Les spectres relatifs aux irradiations avec des deutons montrent l'effet du break-up et la variation des énergies avec l'angle (figure 3 et 4). On remarque aussi une diffusion du deuton plus importante dans l'uranium que dans le béryllium. Dans les régions de plus basse énergie l'évaporation (et la fission ?) génère plus de neutrons avec l'uranium tandis que les neutrons de break-up d'énergie supérieure à 30MeV sont plus importants dans le cas du convertisseur en Be, notamment vers l'avant (0° et 11°).

En ce qui concerne l'expérience avec l'argon 36 comme projectile et le carbone comme cible les spectres peuvent être divisés en deux parties (figure 5), une partie basse énergie qui est dominée par les neutrons produits par la cible et une partie haute énergie qui provient des neutrons issus du projectile. A nombre d'ions incidents égal on notera que les deutons sur des cibles de béryllium et d'uranium produisent environ 10 fois plus de neutrons que des ions ³⁶Ar sur du carbone.

-4- Atténuation des neutrons dans du béton

Lors de l'expérience au LNS, pour les deux types de convertisseurs utilisés, des détecteurs à activation (Bi et Al) ont aussi été placés à 0° derrière 15cm de béton (additionné d'hématite) de densité 3.4 g/cm³ provenant du GANIL. Ceux-ci nous ont permis de déterminer les longueurs d'atténuation λ et le flux après béton.

4.1 Longueur d'atténuation

La longueur d'atténuation est calculée à partir de la formule suivante :

$$\lambda = \xi / \ln (N_{av} / N_{ap}) \quad (5)$$

N_{av} et N_{ap} sont le nombre de noyaux de l'isotope considéré produit avant et après le béton et ξ l'épaisseur de béton traversée.

La mesure des isotopes de bismuth produits par les réactions (n, xn) avant et après le cylindre de béton donnent les valeurs N_{av} et N_{ap} . La dépendance en énergie de λ est estimée en se basant sur l'hypothèse que les neutrons contribuant à la réaction (n, xn) ont une énergie égale à celle correspondant au maximum de la section efficace de la réaction. Le résultats donne une augmentation de λ avec l'énergie (figures 6 et 7). H.W.Patterson [13] a montré que la variation de λ en fonction de l'énergie est une courbe sigmoïde. Nos courbes s'étendent sur une gamme allant de 20 à 100MeV et dans cet intervalle elles sont comparables à celle de Patterson. Les valeurs de λ sont différentes puisque les spectres de neutrons et la composition des bétons ne sont pas identiques.

4.2 Transformation du flux de neutrons par du béton

La mesure du flux de neutrons a été réalisée par la méthode que nous avons indiquée précédemment. Seulement deux détecteurs à activation (Al et Bi) étaient placés derrière le cylindre en béton à 0° car il ne nous était matériellement pas possible d'augmenter le nombre de détecteurs à compter. Etant donné que seul le bismuth et l'aluminium ont été utilisés pour calculer les flux derrière le béton, les spectres de neutrons obtenus ne débutent qu'à 6MeV au lieu de 1MeV. Afin de s'assurer que les résultats obtenus avec l'aluminium et le bismuth étaient cohérents nous avons calculé le flux de neutrons à 0° avant le béton de deux façons. D'abord avec tous les détecteurs (Al, Ni, Co et Bi) puis, seulement avec les détecteurs d'aluminium et de bismuth. La comparaison des deux spectres nous fait conclure que les résultats sont tout à fait similaires.

Les spectres du flux de neutrons avant et après le béton à 0° sont sur la figure 8 pour la cible de béryllium et 9 pour celle en uranium. On voit que le nombre de neutrons de haute énergie, c'est à dire supérieure à 10MeV, est diminué d'un facteur 2 en moyenne par le béton et cela pour les deux types de cible. Par contre, pour des énergies de neutrons inférieures à 10MeV, le flux derrière le béton devient supérieur : les neutrons rapides ayant été ralentis, ceux-ci contribuent à la partie basse énergie du spectre.

-5- Conclusion

Pour le projet SPIRAL II on peut considérer, sauf nouvel argument, qu'une cible de faible nombre de masse n'a que des avantages tant pour le nombre de neutrons vers l'avant que pour le risque d'exposition externe et la radiotoxicité. Par ailleurs, les blindages calculés pour des faisceaux d'ions lourds peuvent être réévalués par des calculs prenant en compte les distributions de neutrons et les atténuations présentées dans ce travail.

A ces résultats on peut ajouter et comparer des données obtenues lors des expériences précédentes pour diverses combinaisons projectile-cible (tableau 2). A nombre de particules par seconde égal, les deutons de 100MeV/A produisent de 3 à 10 fois plus de neutrons par rapport aux autres projectiles.

Φ_n (n.cm ⁻² .s ⁻¹) à 30cm pour 10 ¹² pps		D + Be (1)	D + U (1)	³ He + Ta (1)	¹³ C + C (2)	²⁰ Ne + C (3)	³⁶ Ar + C (4)	⁷⁸ Kr + C (5)
0°	$\Phi_n > 45$ MeV	2,10.10 ⁹	8,56.10 ⁸	2,68.10 ⁷	2,59.10 ⁸	2,89.10 ⁸	2,16.10 ⁸	2,60.10 ⁸
	Φ_n 6-45 MeV	2,32.10 ⁸	1,23.10 ⁸	1,72.10 ⁷	8,36.10 ⁷	8,80.10 ⁷	4,24.10 ⁷	7,79.10 ⁷
80°	$\Phi_n > 45$ MeV	8,69.10 ⁶	3,83.10 ⁶	1,23.10 ⁶	8,03.10 ⁵	5,36.10 ⁵	5,24.10 ⁵	1,07.10 ⁶
	Φ_n 6-45 MeV	2,19.10 ⁷	1,64.10 ⁷	2,95.10 ⁶	4,52.10 ⁶	2,56.10 ⁶	2,55.10 ⁶	8,47.10 ⁶

tableau 2 : comparaison des flux de neutrons pour différentes combinaisons projectile - cible
(1) LNS à 100 MeV/A, (2), (3), (4) et (5) SIRa respectivement à 75, 94, 95 et 73 MeV/A

Les spectres de neutrons déterminés ici constituent des données expérimentales nouvelles et nécessaires aux projets en cours. Le développement de la méthode de spectrométrie de neutrons est suffisamment au point pour envisager son application à d'autres projectiles d'énergie intermédiaire.

Remerciements

Nous tenons à remercier P.Roussel, R.Bimbot, A.C.Mueller et les SPR du LNS et du GANIL qui nous ont apporté une aide précieuse dans divers domaines (conseils, discussions enrichissantes, aide technique...).

Références

- [1] A.C.C.Villari et al. Nuclear. Physics A 588 (1995) 267c-272c
- [2] F. Clapier et al. Exotic beams produced by fast neutrons. IPNO-DRE 97-27 (1997).
- [3] F. Clapier et al. Activation of thick targets by energetic heavy ions and the resultant radiation levels. Radiat. Environ. Biophys. Vol. 34, n°4 Nov. (1995).
- [4] F. Clapier, N. Pauwels, J. Proust. Neutrons créés par ions lourds et activation induite dans divers matériaux. IPNO - 95 -02 (1995).
- [5] F. Clapier, N. Pauwels, J. Proust. Neutron induced activation and transmutation, heavy ion induced isotope production with C, Ne, Ar, Kr at 100 MeV/u. Communication presented at the 2nd Specialists' Meeting SATIF, OECD/NEA/NSC, October 12-13 1995, CERN, Geneva, Switzerland.
- [6] N. Pauwels, F. Clapier, J. Proust. Test of activation detectors as neutron spectrometer in the range 6 to 140 MeV. Communication presented at the 3rd Specialists' Meeting SATIF, OECD/NEA/NSC, 12-13 May 1997, Tohoku University, Sendai, Japan.
- [7] J.Collot et al. NIM A 350 (1994) 525-529
- [8] K.Bernier et al. Fast neutron irradiation facilities in Louvain-la-Neuve, UCL-IPN-96-R02 (1996)
- [9] A.H.Sullivan. A guide to radiation and radioactivity levels near high energy particles accelerators, Nuclear Technology Publishing Ashford, Kent, TN23 1JW, England, (1992).
- [10] T.Nakamura et al. Activation cross section measurements using quasi-monoenergetic neutrons fields from 20 to 150MeV, Communication presented at the 2nd Specialists' Meeting SATIF, OECD/NEA/NSC, October 12-13 1995, CERN, Geneva, Switzerland.
- [11] V.McLaine, C.L.Dunford, P.F.Rose. Neutron Cross Sections, NNDC, BNL, Academic Press, Inc.
- [12] G.Erdtmann, W.Soyka, Verlag Chemie. The gammas rays of the radionuclides, New-York (1979).
- [13] H.Wade Patterson and R.H.Thomas. Accelerator Health Physics, Academic Press, New-York (1973).

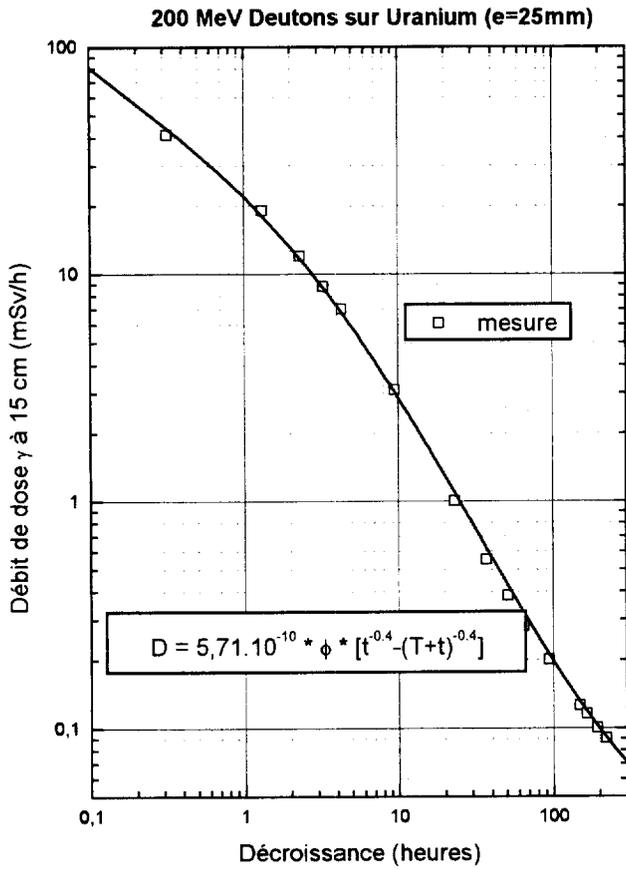


figure 2

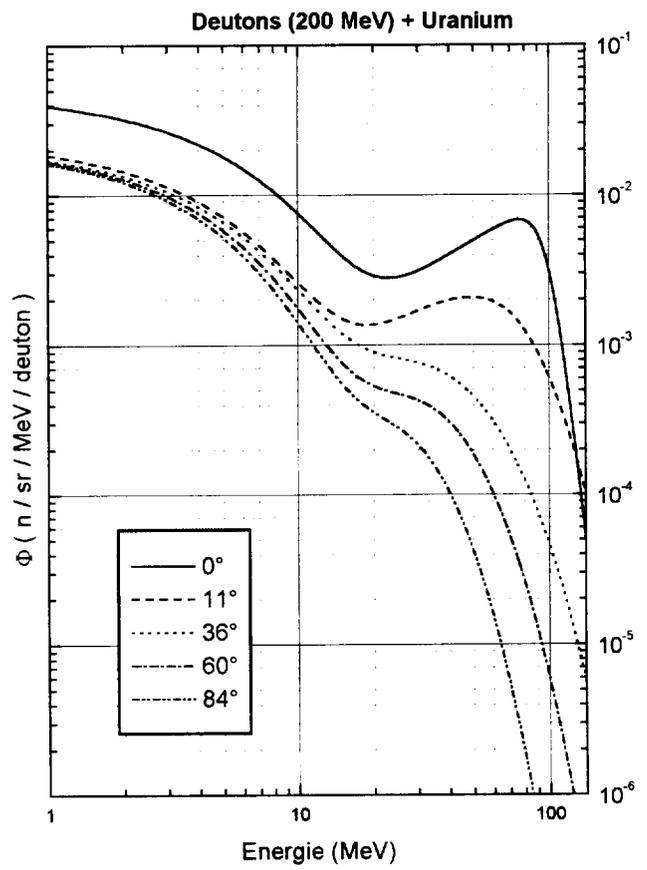


figure 3

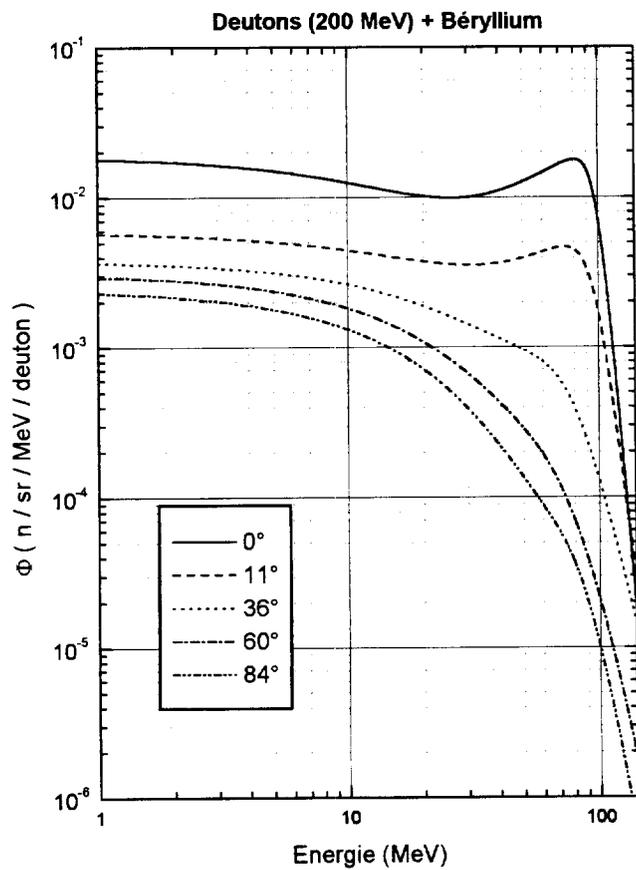


figure 4

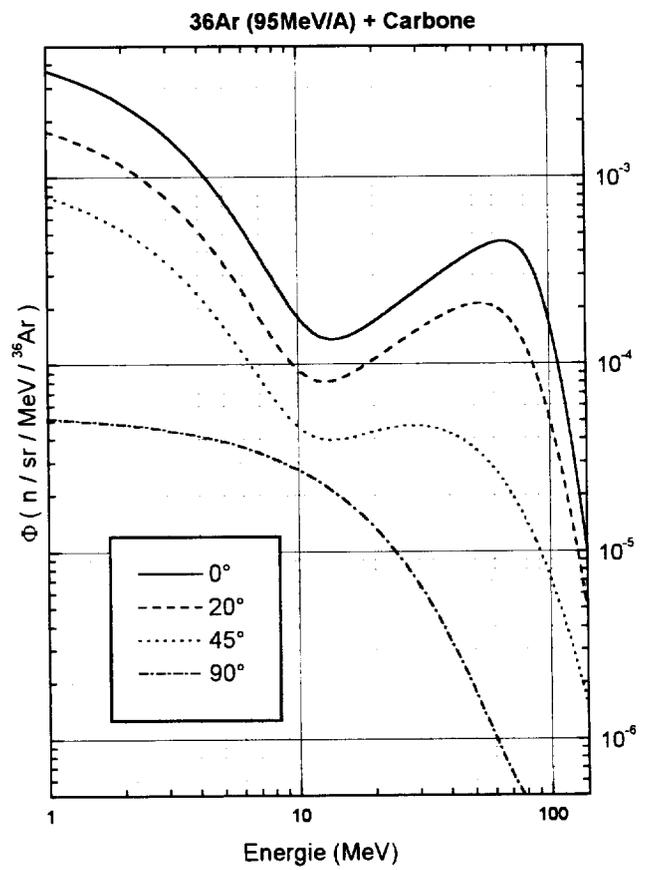


figure 5

Longueur d'atténuation pour du béton (l=15 cm, $\rho=3,4 \text{ g.cm}^{-3}$)

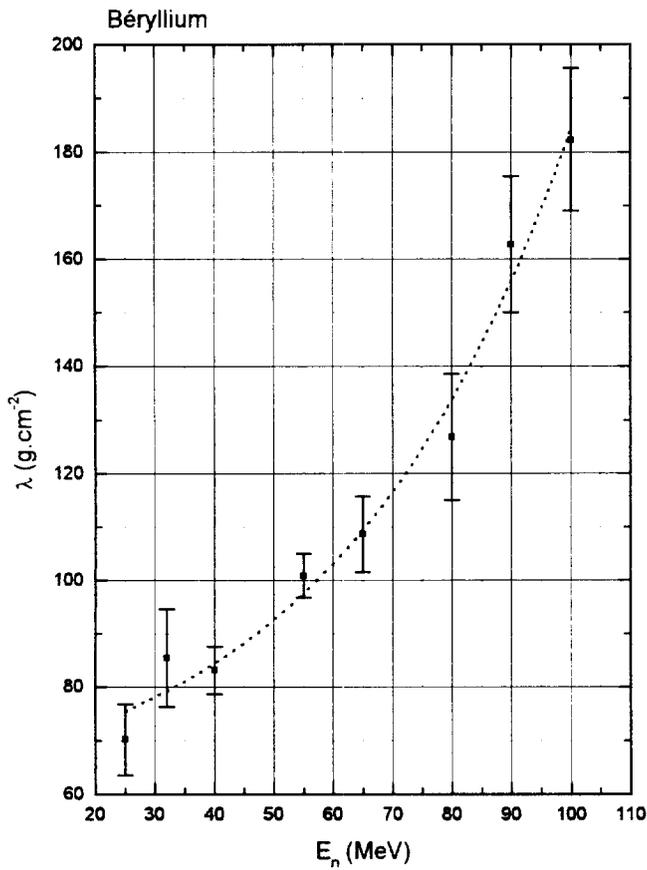


figure 6

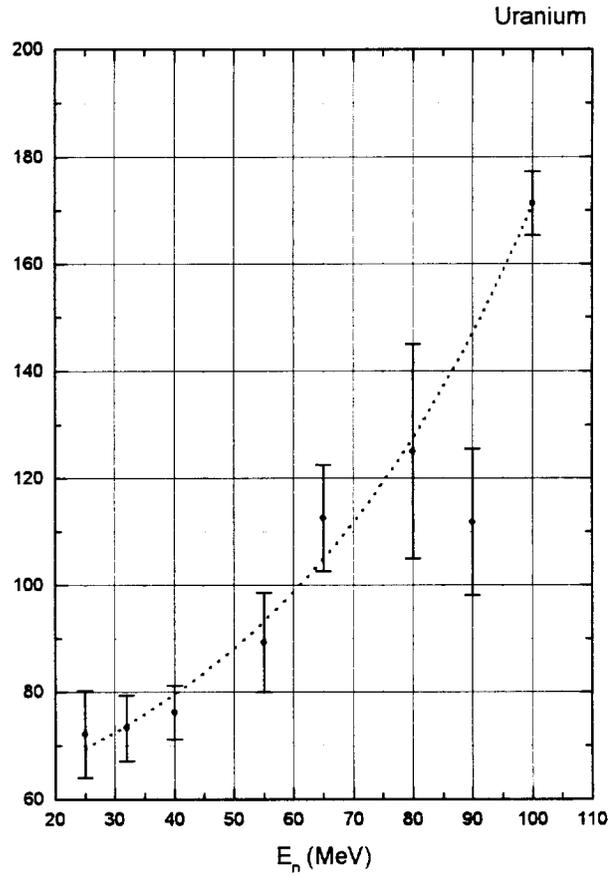


figure 7

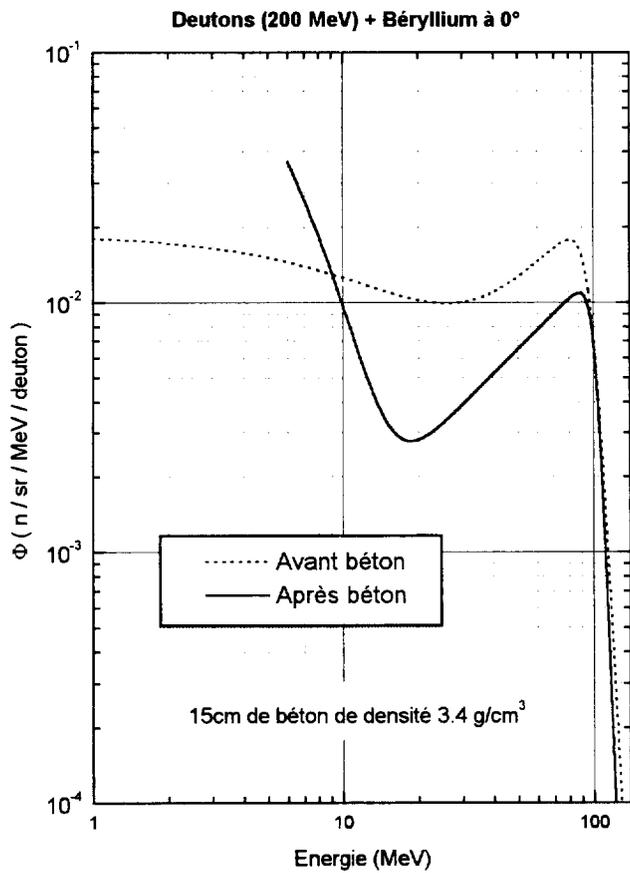


figure 8

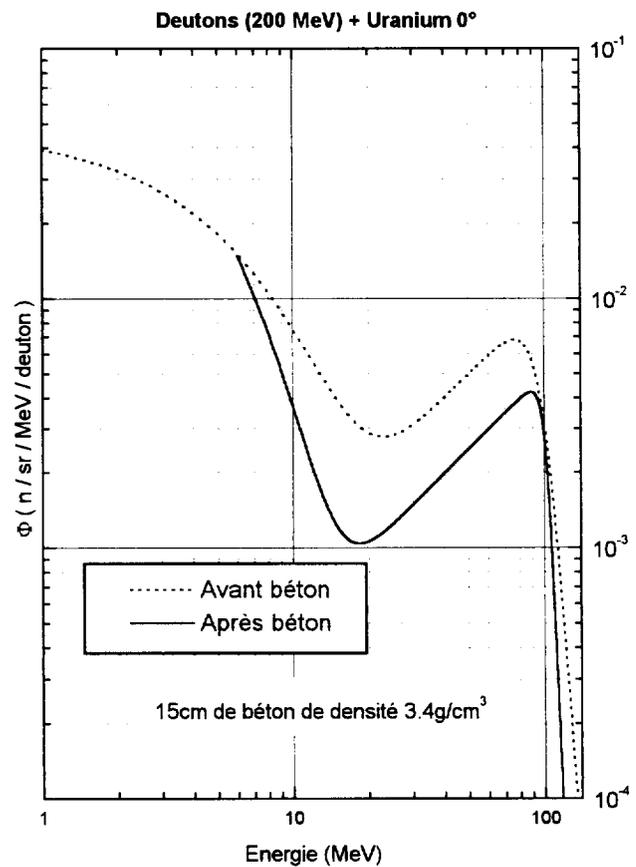


figure 9