

# Emission de neutrons par les réactions d'ions lourds (4,6-95 MeV/nucléon)

Ngoc Duy Trinh

#### ► To cite this version:

Ngoc Duy Trinh. Emission de neutrons par les réactions d'ions lourds (4,6-95 MeV/nucléon). Physique [physics]. Normandie Université, 2018. Français. NNT: 2018NORMC234. tel-02015253

## HAL Id: tel-02015253 https://theses.hal.science/tel-02015253

Submitted on 12 Feb 2019

**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.



## THÈSE

## Pour obtenir le diplôme de doctorat

### Spécialité PHYSIQUE

### Préparée au sein de l'Université de Caen Normandie

## Emission de neutrons par les réactions d'ions lourds (4,6-95 MeV/nucléon)

### Présentée et soutenue par Ngoc Duy TRINH

Thèse soutenue publiquement le 15/10/2018 devant le jury composé de				
M. FADI IBRAHIM	Directeur de recherche au CNRS, INSTITUT DE PHYSIQUE NUCLEAIRE D'ORSAY	Rapporteur du jury		
Mme BEATRIZ JURADO	Chargé de recherche au CNRS, Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux	Rapporteur du jury		
M. DOMINIQUE DURAND	Directeur de recherche au CNRS, 14 ENSI de Caen	Président du jury		
M. MANSSOUR FADIL	Ingénieur de recherche au CNRS, 14 GANIL de CAEN	Membre du jury		
Mme FANNY FARGET	Directeur de recherche au CNRS, Institut national de physique nucléaire	Membre du jury		
Mme SYLVIE LERAY	Ingénieur de recherche, CEA-SACLAY,GIF-SUR-YVETTE	Membre du jury		
M. DANAS RIDIKAS	Chercheur au CEA, Agence Internationale d'Energie Atomique	Membre du jury		
M. MAREK LEWITOWICZ	Directeur de recherche au CNRS, 14 GANIL de CAEN	Directeur de thèse		

Thèse dirigée par MAREK LEWITOWICZ, Grand accélérateur national d'ions lourds (Caen)







## Tables des matières

Re	mercien	nents	6		
1.	. Introduction				
2.	Produ	action de neutrons par des faisceaux d'ions lourds			
	2.1 M	Aécanismes des réactions induites par des ions lourds			
	2.1.1	Introduction			
	2.1.2	Faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon			
	2.1.3	Faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon			
	2.2 N	Aesure de neutrons			
	2.2.1	Principe de détection de neutrons	16		
	2.2.2	Différentes méthodes de mesure des neutrons	17		
	2.3 D	Données de production de neutrons par les réactions générées par les ion	ns lourds . 18		
	2.3.1 inférie	Données expérimentales de production de neutrons par faisceaux d'ic eure à 10 MeV/nucléon	ons d'énergie 18		
	2.3.2 supérie	Données expérimentale de production de neutrons par faisceaux d'ic eure à 10 MeV/nucléon	ons d'énergie 20		
	2.3.3	Divergences entre données expérimentales			
	2.4 M	Aodélisation des réactions générées par les ions lourds			
	2.4.1	Introduction			
	2.4.2	Modèle de section efficace totale			
	2.4.3	Modèles dynamiques			
	2.4.	3.1 Modèle cascade			
	2.4.	3.2 Modèle BME			
	2.4.	3.3 Modèle QMD			
	2.4.4	Critère de transition entre modèles dynamiques et statistiques			
	2.4.5	Modèles statistiques			
	2.4.:	5.1 Modèle d'évaporation statistique			
	2.4.	5.2 Modèle de fragmentation			
	2.4.:	5.3 Modèle de fission			
	2.4.6	Divergences entre différentes prédictions théoriques			
	2.5 D	Divergence entre données expérimentales et prédictions théoriques			
3.	Neutro	ons dans l'environnement des accélérateurs d'ions lourds			
	3.1 U	Jtilisation des accélérateurs d'ions lourds			
	3.1.1	Pour la recherche			
	3.1.2	Pour les applications			

	3.2 Sc	purces de production de neutrons	
	3.2.1	Arrêts de faisceau	
	3.2.2	Perte de faisceau	
	3.3 Ra	dioprotection dans des accélérateurs	
	3.3.1	Effets biologiques des neutrons	
	3.3.2	Activation neutronique	
	3.3.3	Blindage de neutrons	
	3.3.4	Mesure de neutrons avec les dosimètres conventionnels	41
	3.4 Do	ommage des matériaux induit par les neutrons	
	3.5 Pc	ourquoi le programme expérimental TTNY au GANIL ?	
4.	Faiscea	nux et dispositif d'irradiation	
	4.1 Fa	isceaux d'ions incidents	
	4.1.1	Choix des faisceaux	
	4.1.2	Mesure d'intensité	
	4.1.2.1	Mesure d'intensité avec un transformateur d'intensité (TI)	
	4.1.2.2	Mesure d'intensité avec une cage de Faraday (CF)	47
	4.1.2.3	Différences entre deux mesures d'intensité avec le TI et la CF	
	4.1.2.4	Monitorage relatif de l'intensité du faisceau	
	4.2 Ci	bles et brides	50
	4.2.1	Cibles	50
	4.2.2	Brides	51
5.	Mesur	e du spectre de neutrons par la méthode d'activation	
	5.1 Di	spositif de mesure par activation	
	5.1.1	Feuilles d'activation	
	5.1.2	Support des feuilles (Plateau)	53
	5.1.3	Écran pour arrêter des particules chargées	
	5.1.4	Détecteurs HPGe	
	5.2 M	éthode expérimentale	60
	5.2.1	Réactions à seuil utilisées	60
	5.2.2	Analyse du spectre γ	61
	5.2.2	.1 Mesure d'activité	61
	5.2.2	.2 Contribution des états métastables	
	5.2	2.2.2.1 ${}^{209}\text{Bi}(n,9n){}^{201}\text{Bi}$ (Seuil=61,7 MeV)	63
	5.2	2.2.2.2 $^{209}$ Bi(n,10n) $^{200}$ Bi (Seuil=70,9 MeV)	64
	5.2.3	Calcul du taux de réaction	66

	5.2.4	Méthode de déconvolution	67
	5.2.4	4.1 Algorithme de déconvolution	67
	5.2.4	4.2 Interface GanUnfold	72
	5.2.4	4.3 Choix des sections efficaces	
	5.	.2.4.3.1 Réactions à seuils de moins de 20 MeV	73
	5.	.2.4.3.2 Réactions à seuils de plus de 20 MeV	74
	5.2.4	4.4 Validation de la méthode de déconvolution	77
6.	Mesur	re de neutrons par la technique du temps de vol	
6	.1 D	Dispositif de mesure par temps de vol	
	6.1.1	Détecteur de neutrons	
	6.1.2	Détecteur véto de particules chargées	
	6.1.3	Électronique FASTER	
6	.2 Méth	ode d'analyse	
	6.2.1	Réponse en lumière	
	6.2.2	Discrimination neutron/γ	
	6.2.3	Reconstruction et calibration du spectre du temps de vol	89
	6.2.3	3.1 Reconstruction du temps de vol brut	89
	6.2.3	3.2 Anti-coïncidence	
	6.2.3	3.3 Reconstruction du spectre net du temps de vol	91
	6.2.4	Calcul de l'énergie cinétique	
	6.2.5	Résolution en énergie	
	6.2.6	Efficacité de détection de neutrons	
7.	Métho	ode de simulation des réactions d'ions lourds et transport de neutrons a	vec des
cod	es Mont	te-Carlo	
7	.1 C	Codes de calculs	
	7.1.1	FLUKA	
	7.1.2	PHITS	
	7.1.3	MCNP	
	7.1.4	Autres codes	100
	7.1.4	4.1 Geant4	100
	7.1.4	4.2 MARS et SHIELD-HIT	100
7	.2 R	Reconstitution des sources de neutrons	101
	7.2.1	Objectif de la reconstitution	101
	7.2.2	Méthode de correction des effets de distorsion du spectre de neutrons	101
8.	Résult	tats expérimentaux	104

8.1 Co	mparaison entre les mesures d'activation et du temps de vol	
8.1.1	Faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon	
8.1.1.	1 Spectre de neutrons	
8.1.1.	2 Validation de la méthode de déconvolution	
8.1.1.	3 Analyse de la forme du spectre	
8.1.2	Faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon	
8.1.2.	1 Spectre de neutrons	
8.1.2.	2 Validation de la méthode de déconvolution	
8.1.2.	3 Analyse de la forme du spectre	
8.2 Co	mparaisons entre mesures	
8.2.1	Comparaisons avec les mesures existantes	
8.2.2	Systématique de productions de neutrons	
8.2.2.	1 En fonction de l'énergie du faisceau	
8.2.2.	2 En fonction de la masse du faisceau	
8.2.2.	3 En fonction de la cible	
9. Compar	raison des résultats expérimentaux avec les prédictions théoriq	ues119
9.1 Co	mparaison avec les codes de transport	
9.1.1	Faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon	
9.1.1.	1 Réactions sans fission	
9.1.1.	2 Réactions avec fission	
9.1.2	Faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon	
9.1.2.	1 Constats	
9.1.2.	2 Interprétations	
9.2 Co	mparaison avec le modèle du SPR/GANIL	
9.2.1	Description du modèle SPR	
9.2.2	Taux d'émissions total de neutrons	
9.2.3	Distribution angulaire	
9.2.4	Calcul de doses	
9.2.5	Atténuation de neutrons	
9.2.6	Bilan de la comparaison	
10. Conc	lusions et perspectives	
10.1 Co	nclusions	
10.2 Per	spectives	
10.2.1	Expériences	
10.2.2	Techniques de mesures	

	10.2.3	Techniques de calculs	. 149	
	10.2.4	Modèle physique	. 150	
Anr	nexe. N	Aéthode de simulation de transport de neutrons	. 152	
1	. Méth	ode de reconstruction « Tranches sphériques »	. 152	
2	. Mod	élisation de la salle d'expérience	. 154	
Bib	Bibliographie156			

#### Remerciements

"Frodo: I can't do this. Sam. Sam: I know. It's all wrong By rights we shouldn't even be here. But we are. It's like in the great stories Mr. Frodo. The ones that really mattered. Full of darkness and danger they were, and sometimes you didn't want to know the end. Because how could the end be happy? How could the world go back to the way it was when so much bad happened? But in the end, it's only a passing thing, this shadow. Even darkness must pass. A new day will come. And when the sun shines it will shine out the clearer. Those were the stories that stayed with you. That meant something. Even if you were too small to understand why. But I think, Mr. Frodo, I do understand. I know now. Folk in those stories had lots of chances of turning back only they didn't. Because they were holding on to something. Frodo: What are we holding on to, Sam? Sam: That there's some good in this world, Mr. Frodo. And it's worth fighting for!"

#### The Lord of the Rings, J. R. R. Tolkien

Je n'aurais jamais pu être là aujourd'hui sans vos aides, vos soutiens et vos encouragements continus pendant ces trois ans et demi passés au GANIL comme Frodo n'aurait jamais pu détruire l'anneau sans la présence permanence de Sam à son côté.

J'aimerais tout d'abord commencer par les deux personnes déterminantes de la thèse qui sont mon directeur de thèse et mon encadrant : Marek Lewitowicz et Manssour Fadil. Je vous remercie de votre confiance pendant toutes ces années. J'aimerais réserver à Marek toute mon admiration pour sa connaissance à la fois large et profonde en physique nucléaire. Ses directives et ses idées m'ont permis d'avancer sûrement dans mon travail ainsi que son soutien pour le temps faisceau des expériences TTNY. Pour Manssour, je vous réserve ma grande amitié. Vous êtes la personne qui a suivi du plus près mon avancée et mon évolution pendant tout ce temps. Je pense qu'il y a peu d'encadrants qui voient leurs thésards autant de fois que vous par jour. Vous étiez toujours là chaque fois que j'avais besoin d'aide. J'ai appris de vous énormément de choses. Vous avez joué le rôle d'un « oncle » pour moi pendant ces temps-là. Je vous remercie beaucoup et je peux dire haut et fort que je suis fier d'avoir été votre premier thésard. L'expérience que l'on a faite ensemble pendant la thèse est unique. Je ne l'oublierai jamais. J'espère finalement que nous pourrons continuer à collaborer ensemble, nous trois dans l'avenir pour bien d'autres projets (pas que pour l'article de la thèse).

Ensuite, j'aimerais exprimer mes grands remerciements à l'ensemble des membres de mon jury de soutenance d'avoir bien voulu examiné mes travaux et d'avoir mené une intéressante discussion lors de la soutenance. Je remercie particulièrement Dominique Durand d'avoir accepté d'être le président du jury. Un grand merci également aux deux rapporteurs Béatriz Jurado et Fadi Ibrahim d'avoir étudié ma thèse et de m'avoir fait part de leurs corrections et de leurs suggestions intéressantes pour éclaircir encore plus le contenu du manuscrit. Je tiens à remercier aussi les trois examinateurs : Fanny Farget, Danas Ridikas (merci encore pour les chocolats) et Sylvie Leray pour les échanges que l'on a eus ensemble.

Je tiens à remercier sincèrement la direction du GANIL : Navin et Héloïse, de m'avoir bien accueil au sein d'un bel et grand laboratoire tel le GANIL. Merci pour les discussions que l'on a pu avoir de temps en temps.

J'aimerais maintenant réserver quelques mots à l'ensemble de la collaboration TTNY. Sans vos conseils, vos instructions, vos corrections et vos réponses à toutes mes questions, ce manuscrit n'aurait jamais pu voir le jour. Au GANIL, je remercie tout particulièrement Xavier, Jean-Charles, Marc-Olivier (merci d'avoir accepté de discuter régulièrement avec moi des questions scientifiques), Vincent et l'ensemble de l'équipe SPR (Thierry, Antoine, Mathieu), le STP (Samuel, Vincent), le G2I (Florent, Nicolas : merci pour vos aides dans les codes de calculs ainsi pour les dépannages informatiques !). Ensuite, je tiens à remercier le trio du LPC Caen (Frank, Marian, Lynda). Vous m'avez enseigné la technique du temps de vol dans toutes ses étapes. Merci beaucoup à Benoît de la DAM de nous avoir prêté tes scintillateurs pour toutes nos expériences. Au final, j'espère bien pouvoir continuer d'une façon ou d'une autre à travailler avec vous dans l'avenir.

Je remercie également les physiciens et les ingénieurs du GANIL avec lesquels j'ai eu l'opportunité de parler et de discuter : Abdou, Dieter, Christelle, David, Olivier, Gilles, Pierre, Pascal, Laurent, Ketel ... Un grand merci aussi à Sabrina, Sandrine, Virginie, Marie Laure, Catherine ... d'avoir m'aidé à régler les démarches administratives parfois pas faciles à comprendre.

Je réserve également quelques mots pour mes anciens professeurs et pour les autres personnes qui m'ont beaucoup soutenu dans mes études. Merci à mes deux professeurs du Bachelor au Vietnam : Canh Viet et Hoang Oanh avec qui j'ai fondé ma première base en physique. Merci également à Claire Michelet et à Philippe Moretto qui m'ont accepté et qui m'ont beaucoup aidé lors de mon séjour en Master à Bordeaux. Merci à l'Ambassade de France au Vietnam et à l'Université de Caen Normandie pour le financement respectif de mon Master et de mon Doctorat.

Je tiens à remercier l'ensemble des thésards et des post-doc au GANIL avec lesquels j'ai eu l'opportunité de discuter, de parler et de m'amuser non seulement dans le domaine de la physique mais également dans d'autres sujets de société. Je ne vous oublierai jamais : Benoît, Aldric, Simon, Adrien, oppa Yung-Hee, Hongjie, Valérian, Simone, Quentin, Pierre, Vivek, Amer, ... et tant d'autres aussi. Merci aussi aux stagiaires que j'ai eu l'occasion de travailler et de discuter avec (Pierre (merci pour GanUnfold), Manon, Medhy, Mateusz ...)

Je réserve quand même un remerciement particulier à certains étudiants avec qui j'ai partagé le plus de temps. Mon collègue du bureau pendant trois ans Venkateswarlu (King of India, son of Baahubali, chief of the future Michelin 3 starts restaurant), le finlandais Ville (j'irai te voir en Finlande même si tu te caches dans une tente dans une forêt en hiver à la

Laponie), god Sayani of Kolkata, prêtre Arun, roi de la Yougoslavie Predrag. Je vous souhaite tous une bonne continuation pour votre avenir et je souhaite de vous revoir très bientôt.

Je remercie également mes amies vietnamiennes (je ne me suis pas rendu compte mais mes meilleurs amis sont toutes des filles, mais peu importe), qui m'ont bien soutenu et encouragé pendant toute ma thèse et notamment pendant la dernière année. Merci à Minh Chau (avec mes meilleurs vœux, ma grande « sœur », bon courage pour la fin de ta thèse), à Yen Hai (Je reviendrai te voir au Vietnam, ne t'inquiète pas. Prends soins de toi, la vie de comptable n'est pas facile), à Tuyet Huong (vas-y, commence ta thèse !!!), à Thuy Duong (bon courage pour la rédaction de ton manuscrit, je viendrai sûrement à ta soutenance, fais quand même attention à ton « visage » =))), à Thanh Hang (avec toutes mes félicitations et bonne continuation pour ton CDI, je suis heureux que l'on reste encore amis après toutes ces années et tous les changements que l'on a subis), à Thanh Huyen (c'est promis pour une bouteille de champagne pour fêter ton premier appartement), à Minh Loan (sois-courageux pour ta prochaine soutenance), aux deux « avocates » Dieu Thuy (courage pour ta dernière année de thèsea) et Ngoc Tran, à Thi Phuong (à bientôt l'astronome !!!), à Hong Hanh (courage pour la fin de thèse, merci beaucoup pour ton soutien au début de cette année 2018), ... Sinon, j'ai aussi quelques mots pour mes quelques amis « masculins », bonne continuation à vous tous : Dinh Tuan, Van Thanh, Hoang Vu, Tien Phong, Ngoc Anh...

Je remercie également Thu Hong, avec laquelle j'ai partagé 2,5 ans ensemble. Je te remercie quand même d'avoir été là pour moi. Merci de m'avoir appris pleines de choses qui m'ont rendu plus mature. Je te souhaite une bonne continuation pour la suite.

Merci également à mes parents, à ma sœur et à mes trois chats au Vietnam qui sont toujours là pour moi et qui ont compris ou ont essayé de comprendre mes décisions dans la vie. Merci beaucoup, je vous aime tous !

Et en terminant ces mots de remerciements, je vous souhaite une bonne et agréable lecture et n'hésitez pas à m'écrire si vous avez la moindre question !

"Frodo: I wish the Ring had never come to me. I wish none of this had happened. Gandalf: So do all who live to see such times, but that is not for them to decide. All we have to decide is what to do with the time that is given to us." The Lord of the Rings, J. R. R. Tolkien

Ngoc Duy TRINH, Caen, octobre 2018

#### 1. Introduction

Les accélérateurs d'ions lourds sont un outil performant et incontournable pour la recherche moderne en physique nucléaire. Grâce aux caractéristiques des faisceaux (énergie, moment angulaire, nombre de masse), on peut produire des noyaux exotiques que l'on ne peut produire par d'autres méthodes (faisceau d'ion légers, spallation ou fission dans des réacteurs).

Les faisceaux d'ions lourds sont également utilisés pour répondre aux besoins de la société et de l'industrie comme par exemple l'hadronthérapie, la production des isotopes médicaux, l'irradiation des matériaux et des composants électroniques.

Cela explique pourquoi le nombre de projets concernant les d'accélérateurs d'ions lourds (construction de nouvelles installations, amélioration et rénovation de celles existantes) ne cesse d'augmenter. On peut citer trois grands projets en cours ou qui viennent d'être achevés dans le campus Jules Horowitz dans le plateau Nord de Caen:

- Upgrade du Système de Production des Ions RAdioactifs en Lignes de 1<sup>ère</sup> génération (SPIRAL1) au sein du Grand d'Accélérateur National d'Ions Lourds. Ce projet consiste à une transformation technique importante de SPIRAL1 (installation de nouveaux ensembles cible-source et d'un nouveau système de booster de charge). Il permet au GANIL de produire de nouvelles gammes de faisceaux radioactifs avec les cyclotrons existants.
- Construction du Système de Production des Ions RAdioactifs en Lignes de 2<sup>ème</sup> génération (SPIRAL2) Phase 1. Pour ce projet, un nouvel accélérateur supraconducteur de type LINAC est construit. Cet accélérateur, en plus des ions légers (proton, deuton, α), peut également fournir des ions lourds d'une énergie allant jusqu'à 14,5 MeV/nucléon et une masse jusqu'à A=58. Les faisceaux d'ions lourds fournis par le LINAC du SPIRAL2 ont une intensité nettement plus importante que ceux des cyclotrons du GANIL. Les faisceaux d'ions légers ou lourds seront envoyés dans des nouvelles salles d'expériences de SPIRAL2 (NFS, S<sup>3</sup>).
- Construction du Advanced Resource Centre for Hadrontherapy in Europe (ARCHADE). Le projet ARCHADE consiste à construire un centre de recherche et de soins en hadronthérapie. Il possèdera deux cyclotrons dont un (Cyclone 400) permettra d'accélérer les ions de <sup>12</sup>C jusqu'à 400 MeV/nucléon.

L'utilisation des faisceaux d'ions lourds s'accompagne en même temps des risques importants au niveau de la radioprotection, de la sûreté nucléaire et du démantèlement dans les accélérateurs. En effet, lors des interactions entre le faisceau avec de la matière (ligne de faisceau, gaz résiduel, cible...) une quantité importante de particules secondaires (neutrons, protons,  $\alpha$ ,  $\gamma$ , ions légers et ions lourds) est produite. Ces particules ont parfois une énergie élevée et représentent ainsi des conséquences radiologiques non négligeables.

Parmi les particules et les rayonnements, les neutrons secondaires sont les plus problématiques. En effet, à cause de leur charge électrique neutre, les neutrons peuvent traverser très facilement les murs de protection biologique, activer les matériaux présents dans l'installation, produire des gaz radioactifs et représenter notamment un impact important en interagissant avec les cellules biologiques (facteur de conversion flux-dose équivalente élevé).

Dans les contextes actuels en France, les exigences de l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) imposées aux installations nucléaires sont de plus en plus élevées. Le GANIL doit donc faire face à cette nouvelle culture de sûreté, notamment dans ses nouveaux projets et la rénovation de son parc d'accélérateurs existants.

Les données liées aux neutrons secondaires générés par les faisceaux d'ions lourds (taux de production, spectre en énergie, distribution angulaire...) sont donc nécessaires pour répondre aux exigences de la part de l'ASN concernant l'optimisation du fonctionnement des installations.

Cependant, ces données sont très rares et parfois inexistantes pour une gamme importante d'ions accélérés. L'exemple le plus parlant concerne les données des faisceaux d'ions lourds d'une énergie inférieure ou égale à environ 10 MeV/nucléon. On remarque également certaines divergences non-négligeables entre les données expérimentales obtenues par des différentes équipes.

Pour pallier à ce manque de données, on utilise souvent des codes de calcul pour estimer, grâce aux modèles de physiques nucléaires qui y sont implémentés, le rendement neutronique des réactions générées par les ions lourds. Ces codes de calcul sont souvent stochastiques (FLUKA ([Ferrari-05] et [Böhlen-14]), PHITS ([Sato-13], [Iwamoto-17] et [Sato-18]), MCNP ([Goorley-12])) mais on peut aussi rencontrer des codes locaux basés sur un développement empirique (C'est le cas du code dit « SPR » employé par le Service de Protection Contre les Rayonnements du GANIL pour l'exploitation de l'installation et notamment dans le calcul des intensités maximales autorisées dans les expériences délivrées par les accélérateurs aux expérimentateurs).

Cependant, à cause des approches différentes de modélisation des réactions, on trouve des divergences importantes entre les prédictions théoriques des différents codes concernant le spectre de neutrons émis. Cette divergence touche notamment les combinaisons ion incident/noyau-cible très lourdes où les mécanismes de réaction sont nombreux et compliqués à modéliser.

Actuellement, les codes de calcul nucléaire ne permettent pas de reproduire systématiquement toutes les données expérimentales disponibles et représentent dans certains cas des écarts importants avec la mesure. Cet écart peut concerner à la fois la forme et le flux du spectre.

Il est ainsi nécessaire d'évaluer les performances des codes en comparant le résultat de la simulation avec les données expérimentales et d'en déduire ainsi les incertitudes associées. Cette comparaison permet également de tester les modèles physiques adoptés dans ces codes pour modéliser les réactions d'ions lourds.

Afin de résoudre les problématiques ci-dessus, le GANIL a élaboré en 2015 le programme expérimental Thick Target Neutron Yields (TTNY) qui fait l'objet de cette thèse. Ce programme consiste à étudier expérimentalement les spectres de neutrons doublement différentiels (énergie, angle) générés par les réactions d'ions lourds sur cibles épaisses. Les quatre objectifs principaux de ce programme sont les suivants :

- Produire de nouvelles données nucléaires : nous avons mesuré pour la première fois les spectres de neutrons doublement différentiels de sept combinaisons ion incident/noyaucible. Ces combinaisons représentent une indication importante pour caractériser l'environnement neutronique au GANIL/SPIRAL2. Il s'agit de sept expériences
  - $^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/nucléon}) + ^{nat}Cu$
  - <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu
  - $^{78}$ Kr(10,5 MeV/nucléon)+ $^{nat}$ Cu
  - ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$
  - ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$
  - <sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb
  - <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb
- Valider les données expérimentales existantes en réalisant l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C. Cette réaction est utilisée dans l'hadronthérapie (ce sera bientôt le cas sur Caen avec ARCHADE). Il est donc d'un grand intérêt de connaitre avec précision la production de neutrons de cette réaction. Ainsi, on pourra déterminer les effets secondaires de ce genre de traitement sur le corps des patients. Le choix de cette réaction est également justifié par la forte divergence qui a été observée dans le rendement de neutrons entre les données expérimentales existantes.
- Comparer avec les codes de calcul : La comparaison entre mesures et calculs permet d'apprécier la qualité des prédictions théoriques en fonction des réactions d'ions lourds simulées. Elle nous aide aussi à déterminer les erreurs systématiques de chaque code.
- Étudier des modèles physiques : En étudiant la forme et le flux des spectres de neutrons simulés et mesurés, on peut déduire le comportement des modèles physiques implémentés dans les codes. Cette étude permet de déterminer leurs limites et de réfléchir en même temps aux origines de ces limites. Une fois les limites connues, on pourra proposer des pistes d'évolution des modèles.

Pour parvenir à répondre à ces objectifs, nous avons mis en place au GANIL un dispositif expérimental qui permet de réaliser l'irradiation des cibles épaisses par des faisceaux d'ions lourds fournis par les cyclotrons (CSS1 et CSS2) du GANIL. La mesure neutronique est effectuée en utilisant deux méthodes de mesure indépendantes : Activation et Temps de vol (ToF). Pour la première technique, nous mettons en place un algorithme de déconvolution permettant de remonter au spectre en énergie à partir des mesures intégrales. La seconde technique est une technique conventionnelle, elle permet de déduire directement le spectre en énergie à partir des mesures du temps de vol de neutrons.

Nous avons également étudié et utilisé quatre codes de calculs dont trois de type Monte-Carlo (PHITS, FLUKA et MCNP) et un empirique (Code SPR) pour prédire le spectre de neutrons produits (pour les codes Monte-Carlo) et le flux intégré en énergie à chaque angle pour le code empirique SPR.

Cette thèse se compose en dix chapitres qui se divisent en trois grandes parties. La première partie (chapitres 2 et 3) présente diverses études bibliographiques concernant l'émission de neutrons secondaires par les réactions d'ions lourds (mécanismes de réactions d'ions lourds en fonction de l'énergie incidente, modèles physiques des réactions, généralité de la détection de neutrons...). On discute également de l'état des données expérimentales

concernant la production de neutrons par les faisceaux d'ions lourds. On note en même temps les divergences entre différents codes de calculs, entres les mesures existantes et entre calculs et mesures.

La deuxième partie (chapitre 4 à 7) présente les détails des techniques expérimentales (conception, mise en place, mesure, analyse...) développées et adoptées dans la thèse. Elle traite également des motivations des choix de la combinaison ion incident/noyau-cible des expériences réalisées pour cette thèse. Elle présente et décrit aussi les codes de transport Monte-Carlo utilisés pour simuler les réactions d'ions lourds ainsi que les techniques de calcul adoptées.

Les résultats obtenus sont présentés et discutés dans la troisième partie (Chapitre 8 et 9). Cette partie traitera tout d'abord de la comparaison entre les deux méthodes de mesures, Activation et ToF. Cette comparaison permettra de comprendre la validité ainsi que les limites expérimentales de chaque méthode. Ensuite, nous comparons systématiquement tous les spectres de neutrons mesurés avec les prédictions théoriques des codes de transports Monte-Carlo, ce qui permet d'évaluer le comportement de chaque code en fonction de la réaction simulée. On montrera que ce comportement peut être expliqué par les modèles physiques implémentés dans ces codes. On utilise également les données expérimentales obtenues pour évaluer et valider le code empirique « SPR » utilisé traditionnellement au GANIL pour estimer la dose neutronique relative à l'exploitation de l'installation.

Finalement, une conclusion résumera les travaux effectués dans la thèse ainsi que les analyses des résultats les plus importants obtenus. On présentera également plusieurs perspectives pour faire évoluer le programme TTNY au GANIL. Ces perspectives se composent de recommandations et de réflexions servant à améliorer l'ensemble des dispositifs expérimentaux, les méthodes d'analyse et de calculs ainsi que des modèles physiques adoptés par les codes de transport. De plus, on exposera aussi une liste non-exhaustive des expériences intéressantes à réaliser dans l'avenir.

#### 2. Production de neutrons par des faisceaux d'ions lourds

#### 2.1 Mécanismes des réactions induites par des ions lourds

#### 2.1.1 Introduction

Dans cette partie, les divers mécanismes de réactions induites par les ions lourds sont présentés. La rédaction est faite en s'appuyant sur les quatre références principales suivantes : [Durand-98], [Gibouin-03], [Ferraton-11] et [Valdré-15].

La collision entre l'ion incident et le noyau cible peut être traitée de manière semiclassique en considérant les deux noyaux comme deux balles chargées positivement. Ils interagissent selon la loi Coulombienne. La trajectoire du projectile suit en effet une forme hyperbolique (cf. figure 2.1). Le facteur d'impact b est défini comme étant la distance entre la trajectoire de l'ion incident et le noyau-cible. Avec ce facteur, on peut calculer la distance minimale d'approche  $r_{min}$  entre l'ion incident et le noyau-cible (c.f figure 2.1).



Figure 2.1 : Cinématique de collision. Cette figure est extraite et modifiée de [Gade-03].

La réaction nucléaire commence à avoir lieu quand la distance minimale d'approche  $r_{min}$  est égale à la somme du rayon de projectile et celui de la cible  $r_i$  (les deux ions commencent à se toucher).

La barrière Coulombienne  $B_c$  est définie comme étant l'énergie de l'ion projectile pour que la distance minimale d'approche  $r_{min}$  soit égale au rayon d'interaction nucléaire  $r_i$ . L'ion incident provoque des réactions nucléaires seulement dans le cas où son énergie initiale  $E_{projectile}$ est supérieure à la barrière Coulombienne  $B_c$ .

Les interactions entre l'ion incident et le noyau-cible peuvent être traitées via deux approches différentes : champ moyen et interaction entre deux corps. Ces deux approches sont plus ou moins importantes en fonction de l'énergie de l'ion incident. La section efficace de différents mécanismes de réactions dépend également du paramètre d'impact b qui définit les régimes de collisions (cf. figure 2.2).

L'approche dominante pour les ions de basse énergie (inférieure à 10 MeV/nucléon) est celle du champ moyen. Les nucléons des ions de cette énergie entrent en même temps en interaction nucléaire avec tous les nucléons de la cible et du projectile, d'où vient l'approche de traitement de réactions par l'interaction avec le champ moyen des nucléons présents. Une

autre approche consiste à étudier l'interaction entre chaque nucléon de façon individuelle. Les différentes expériences ont observé une faible contribution de ce type de collisions directes nucléon-nucléon autour de 10 MeV/nucléon. Cependant, elle ne devient non-négligeable qu'à partir de 20 MeV/nucléon.

Au régime d'énergie de Fermi (20-100 MeV/nucléon), les deux approches champ moyen nucléaire et interaction individuelle nucléon-nucléon sont en compétition pour décrire les réactions. Ce régime se compose donc de nombreuses voies de réaction due à la mixité entre ces deux approches. Au-delà de 100 MeV/nucléon, ce sont les collisions nucléon-nucléon qui dominent. À plus haute énergie (supérieure à quelques centaines de MeV/nucléon), d'autres mécanismes de réaction peuvent avoir lieu telle que l'émission des pions. Ce régime de très haute énergie ne figure pas dans le cadre de cette thèse.



Figure 2.2 : Différents mécanismes de réactions nucléaires. Cette figure est extraite de [Valdré-15].  $\lambda$  est le longueur d'onde de Broglie de l'ion incident.  $\rho$  est la densité nucléaire,  $\rho$ 0 est la densité à condition normale. E<sub>b</sub>/A est l'énergie par nucléon de l'ion incident

#### 2.1.2 Faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon

Dans le cas où la distance minimale d'approche  $r_{min}$  est égale au rayon d'interaction nucléaire  $r_i$ , l'interaction entre les ions incidents et les noyaux-cibles est minime, l'énergie cinétique du système est conservée. La zone de recouvrement entre deux noyaux étant petite, la probabilité d'échange de nucléons entre le noyau projectile et celui de la cible est faible. L'énergie d'excitation transférée aux noyaux n'est donc pas importante. À la fin de ces émissions, les noyaux conservent une grande partie de caractéristiques du noyau incident avant la réaction : énergie, composition.... Ils sont respectivement appelés quasi-projectile et quasicible.

La collision dont la distance minimale d'approche  $r_{min}$  est entre 0 (fusion du noyau composé) et r<sub>i</sub> (quasi-élastique) est nommée « diffusion profondément inélastique ». Pour ces collisions, puisque la zone de recouvrement des fonctions d'ondes nucléaires devient plus

importante, l'échange de nucléons entre le noyau-projectile et le noyau-cible est plus fort. Cependant, ils conservent toujours une partie de mémoire avant la réaction, il est donc possible de les considérer comme quasi-projectile et quasi-cible. Ces deux noyaux se séparent après la collision. Les deux noyaux quasi-projectile et quasi-cible atteignent l'équilibre avant la phase de désexcitation. Pour cette gamme de basse énergie, plus le système ion incident/noyau-cible est lourd plus la probabilité de diffusion profondément inélastique est importante par rapport à la fusion totale des deux noyaux.

Pour le cas de fusion complète entre l'ion incident et le noyau-cible, le noyau composé est formé avec tous les nucléons de l'ion incident et du noyau-cible.

Une fois le noyau composé ou les noyaux quasi-projectile et quasi-cible formés en atteignant l'équilibre, ils commencent à se désexciter en émettant des  $\gamma$  et des particules secondaires (proton, neutron ...). Cela se réalise quand l'énergie d'excitation est plus élevée que celle de séparation de nucléons. Les particules émises sont essentiellement de basse énergie. Ce mécanisme s'appelle « évaporation ».

Par ailleurs, la fission peut avoir lieu lorsque le nombre atomique du noyau composé ou des noyaux quasi-projectile et quasi-cible est important (Z $\geq$ ~70). La fission génère deux fragments de fission excités. Ils se désexcitent ensuite en évaporant des particules et/ou des rayonnements  $\gamma$ .

Ces procès d'évaporation et de fission correspondent à l'état liquide de la matière nucléaire. Ils peuvent être traités selon un scénario statistique où l'évolution du noyau composé suit plusieurs voies dont chacune possède sa propre probabilité.

#### 2.1.3 Faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon

Lorsque l'énergie de l'ion incident est supérieure à 10 MeV/nucléon les noyaux formés se trouvent plus excités. L'énergie d'excitation de certains nucléons est plus élevée qu'à l'énergie de liaison du noyau. Ces nucléons sont émis dans le continuum avant que l'équilibre ne soit atteint. Ces nucléons émis sont appelés « particules de pré-équilibre ». La masse du noyau composé dans le cas de fusion totale n'est plus la somme de celle de l'ion incident et du noyau-cible.

La probabilité d'émission des particules de deux noyaux en cours de diffusion inélastique est plus forte. La zone de recouvrement entre deux noyaux peut aussi émettre des fragments de masse intermédiaire. Après l'interaction, deux noyaux quasi-projectile et quasicible sont formés. Ces deux noyaux se désexcitent suivant les scénarios de désexcitations statistiques.

Plus l'énergie du faisceau est élevée (autour de 100 MeV/nucléon) plus nombreux sont les nouveaux phénomènes de réaction observés. Dans les collisions périphériques, trois noyaux sont formés : le fragment du projectile, le fragment du noyau cible et le noyau composé. Le noyau composé emporte la majorité de l'énergie d'excitation du système, il est donc appelé « fireball ». Il se désexcite en émettant un nombre important de particules légères et/ou des fragmentations de masse intermédiaires, c'est ce que l'on appelle le processus de vaporisation et de multi-fragmentation. Les deux fragments produits ne gardent qu'une énergie d'excitation assez faible. Dans le cas des collisions centrales, seul un noyau composé très excité « fireball » est formé et se désexcite avec les processus de vaporisation et de multi-fragmentations. Ces deux mécanismes correspondent à l'état du gaz de la matière nucléaire.

Les particules émises par des processus de pré-équilibre, vaporisation et multifragmentation peuvent avoir une énergie beaucoup plus élevée que celles issue des mécanismes de désexcitation statistiques.

#### 2.2 Mesure de neutrons

#### 2.2.1 Principe de détection de neutrons

Le neutron est une particule neutre. Il ne peut être détecté qu'indirectement grâce aux produits secondaires des réactions nucléaires qu'il induit. Chaque réaction est adaptée pour la détection de neutrons d'une gamme d'énergie donnée.

Comme exemple, on considère la figure 2.3 qui présente la section efficace de la réaction  ${}^{56}$ Fe(n,p) ${}^{56}$ Mn. C'est une réaction à seuil de 3 MeV avec un pic autour de 13 MeV. Par ailleurs, la section efficace commence à diminuer nettement à partir de 20 MeV. Cette réaction est apte à détecter les neutrons de la gamme d'énergie autour du pic de la section efficace, c'est à dire entre 10 MeV et 20 MeV. Elle est inefficace en dehors de cette gamme.



Figure 2.3 : Section efficace de la réaction  ${}^{56}$ Fe(n,p) ${}^{56}$ Mn. Cette figure est extraite du site de NDS-IAEA. La librairie de section efficace utilisée est EAF-2010 [Sublet-10]

Les produits des réactions nucléaires induites par les neutrons sont souvent directement et facilement détectables. Les particules chargées sont par exemple détectées avec des chambres à ionisation ou des détecteurs silicium. Les  $\gamma$  émis sont mesurés avec des détecteurs HPGe. En mesurant les particules et les noyaux radioactifs secondaires et en connaissant d'autres informations telles que la section efficace de réaction et l'efficacité de détection des particules/noyaux radioactifs secondaires, il est possible de remonter à l'information sur les neutrons entrant dans les détecteurs à savoir son énergie initiale et son flux. Le choix de la méthode de détection de neutrons dépend donc du flux et de la gamme d'énergie du neutron incident.

#### 2.2.2 Différentes méthodes de mesure des neutrons

Le tableau 2.1 ci-dessous présente un résumé des différentes méthodes de mesure des neutrons en fonction de la réaction utilisée, de la méthode de détection des particules secondaires, de la méthode d'analyse pour obtenir l'information sur les neutrons incidents, de la gamme d'énergie du neutron ainsi que des avantages et des inconvénients.

Méthode	Particule secondaire	Gamme d'énergie	Avantages	Inconvénients	
Compteur proportionnel	Proton de recul Uniquement du proton de recul	~keV-5 MeV	Bonne efficacité	Difficile d'obtenir les spectres énergétiques	
Scintillateur organique	Proton de recul+Temps de vol	1 MeV- centaines de MeV	Bonne efficacité+Discrimination n/γ	Système électronique complexe, fonctionne seulement avec des faisceaux pulsés	
Télescope	Proton de recul	>1 MeV	Insensible au photon + mesure du spectre énergétique	Faible efficacité (10 <sup>-</sup> <sup>5</sup> ), système encombrant	
<sup>6</sup> Li	Particules			Pas possible obtenir les	
<sup>3</sup> He	chargées	Thermique– quelques MeV	Bonne efficacité pour détecter les neutrons thermiques	spectres énergétique, Insensible aux	
Chambre à fission	Fragments de fissions			neutrons de haute énergie Déconvolution est nécessaire	
Sphère de Bonner	Particules chargées	Thermique- GeV			
Activation	γ émises par des radio- isotopes produits par l'activation neutronique	Thermique- ~100 MeV	Pas d'électronique en ligne, dispositif simple	pour remonter au spectre différentiel, Incertitude concernant la fonction de réponse (section efficace) pour détecter les neutrons à haute énergies	

Table 2.1 : Différentes méthodes de mesure des neutrons

## 2.3 Données de production de neutrons par les réactions générées par les ions lourds

Les mécanismes de réaction nucléaire comme expliqué dans la section 2.1 dépendent de l'énergie du faisceau de l'ion incident et du nombre de nucléons présents dans la combinaison ion incident/noyau-cible. La production des particules secondaires, dont le neutron, dépend donc également de ces propriétés de réactions. Dans cette partie, le bilan des données nucléaires disponibles dans la littérature pour diverses combinaisons ion incident/noyau-cible sera présenté. Ensuite, la divergence entre les expériences elles-mêmes sera également discutée.

## 2.3.1 Données expérimentales de production de neutrons par faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon

Dans les années 60, la production de neutrons induite par les réactions des ions <sup>12</sup>C, <sup>14</sup>N et <sup>20</sup>Ne avec l'énergie de 5,7-10,4 MeV/nucléon sur diverses cibles épaisses et minces (C, Al, Cu, Ag, Ta, Pb, Th, U) a été mesurée [Hubbard-60]. La détection de neutron est effectuée avec la méthode d'activation.

Les mesures de dose en fonction d'angle ont été effectuées pour un grand nombre de combinaisons ion incident/noyau-cible (6<A<238) pour une énergie du projectile allant de 0,9 MeV/nucléon à 15 MeV/nucléon. Ces mesures ont servi à réaliser des formules empiriques pour estimer la dose induite par les neutrons [Fulmer-78], [Clapier-83] et [Guo-87]. Ces mesures ont utilisé des dosimètres de type <sup>3</sup>He ou <sup>6</sup>Li même s'ils ne sont pas sensibles aux neutrons de haute énergie. Or, ces derniers sont bel et bien produits dans certaines réactions d'intérêt. Ces neutrons peuvent avoir une contribution non négligeable à la dose totale de neutrons.

À partir des années 1980, une série d'études expérimentales sur la production de neutrons a été réalisée par [Holub-83]. Cela a permis de mesurer les spectres de neutrons produits par les réactions  $^{165}$ Ho (11, 14,6 et 20,1 MeV/nucléon) +  $^{20}$ Ne (cible mince) en utilisant la technique du temps de vol à différents angles (de 12,5° à 160°). Des neutrons quatre fois plus énergétiques que l'énergie par nucléon de l'ion incident ont été observés. Ces neutrons de haute énergie contribuent de 5 % à 15 % au flux total de neutrons émis. Cette contribution devient de plus en plus importante en fonction de l'énergie de l'ion incident. Cependant, les mesures de Holub ont été faites en coïncidence avec l'émission des fragments. Les valeurs absolues du flux de neutrons mesurés ne sont donc pas exploitables.

Le spectre de neutrons de la réaction <sup>58</sup>Ni (6,6 MeV/nucléon) + <sup>nat</sup>Cu a été mesuré par V. E. Aleinikov [Aleinikov-85] avec les détecteurs de <sup>6</sup>LiI(Eu) placés dans des modérateurs de polyéthylène de différentes épaisseurs et avec des feuilles d'activation en carbone. Les spectres de neutrons à trois angles 0°, 45° et 90° sont obtenus par déconvolution.

K. Shin et al ont effectué une campagne de mesures avec les ions <sup>12</sup>C et <sup>16</sup>O de 6,25 MeV/nucléon à 10 MeV/nucléon sur différentes cibles : C, Al, Cu, Pb [Shin-95]. Des neutrons de haute énergie jusqu'à 40 MeV ont été mesurés. L'exemple d'un spectre de neutrons de la réaction <sup>12</sup>C(10 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu est illustré dans la figure 2.4 ci-dessous.



Figure 2.4 : Spectre de neutrons doublement différentiel de l'expérience  ${}^{12}C(10 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ . Les points sont des mesures expérimentales. Les lignes continues sont des fonctions d'ajustement. Cette figure est extraite de [Shin-95]

La collaboration indienne dirigée par M. Nandy, V. Suman et C. Sunil a effectué des campagnes de mesures et d'études de spectres de neutrons doublement différentiels avec diverses combinaisons de l'ion incident et du noyau-cible [Sunil-04], [Sunil-06], [Sunil-08-a], [Sunil-08-b], [Sunil-10], [Sunil-12], [Sunil-13], [Nandy-01], [Nandy-07], [Nandy-10], [Maiti-05], [Suman-15] et [Paul-17]. Les ions incidents utilisés sont des ions légers: <sup>7</sup>Li, <sup>11</sup>B, <sup>12</sup>C, <sup>16</sup>O et <sup>19</sup>F avec une énergie allant de 3,5 MeV/nucléon à 12 MeV/nucléon. Les ions sont envoyés vers différentes cibles : <sup>nat</sup>Al, <sup>nat</sup>Ni, <sup>nat</sup>Cu, <sup>nat</sup>Ti et <sup>nat</sup>Ag. Les neutrons sont mesurés en utilisant la technique du temps de vol et de télescope à proton de recul. Les neutrons de haute énergie jusqu'à quatre fois l'énergie initiale de l'ion incident par nucléon ont été observés (50 MeV).

Le tableau 2.2 résume les données expérimentales disponibles sur la production de neutrons par des faisceaux d'énergie autour et inférieure à 10 MeV/nucléon. Selon le tableau 2.2, les spectres doublement différentiels sont principalement mesurés avec les ions lourds de faible masse. Il y a seulement deux mesures disponibles pour un ion plus lourd (A $\geq$ 20).

Les faisceaux d'ions plus lourds sont largement utilisés auprès des installations de recherche comme le GANIL. À titre d'exemple, les faisceaux des ions lourds sont utilisés pour produire des noyaux exotiques (riches en neutrons ou en protons) et super lourds. Une intensité importante du faisceau primaire est souvent nécessaire. Les données neutroniques pour des réactions induites par des ions plus lourds que A=20 sont donc utiles pour l'exploitation des accélérateurs. En outre, les interactions des ions légers ne sont pas tout à fait comparables avec celles des ions très lourds même si l'énergie initiale par nucléon est la même. L'étude de la production de neutrons est donc importante pour comprendre les mécanismes de réactions et les modèles physiques.

Table 2.2 : Données expérimentales disponibles des spectres de neutrons doublement différentiels générés par des réactions des faisceaux d'ions lourds de moins de 10 MeV/nucléon

Ion incident	Énergie (MeV/A)	Cible	Auteur	
<sup>12</sup> C	6,25	C ; Al ; Cu ; Pb		
	10	C ; Al ; Cu	Shin-95	
<sup>16</sup> O	9,56	C; Al; Cu; Pb		
<sup>7</sup> Li	3,14 ; 4 ; 4,86 ; 5,71 ; 6,57	Al ; Cu		
<sup>11</sup> B	3,82;4;4,73;5,64; 6,54	Al ; Cu		
	3,5 ; 4,5 ; 5,42 ; 6,25 ; 7	Al ; Ni		
<sup>12</sup> C	4;5;6,25;7	Cu		
	9,58	Al	Collaboration	
	12	C; Ti;Ag	indienne	
<sup>16</sup> O	7,2	Та		
	7,5 ; 8,8	Al		
<sup>19</sup> F	2,37 ; 2,89 ; 3,95 ; 4,47 ; 4,74 ; 5 ; 5,53; 5,79 ; 7,63	Al		
	2,37 ; 2,89 ; 3,95 ; 4,47 ; 4,74	Cu		
<sup>58</sup> Ni	6,6	Cu	Aleinikov-85	
<sup>165</sup> Ho	11 ; 14,6 ; 20,1	<sup>20</sup> Ne	Holub-83	

## 2.3.2 Données expérimentale de production de neutrons par faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon

Les données nucléaires de production de neutrons par des ions incidents de plus de 10 MeV/nucléon sont plus abondantes que celles des faisceaux de basse énergie. Cependant, il y a encore très peu de mesure de production de neutrons par l'interaction de faisceaux de masse plus élevé que 20.

L'équipe de T. Kurosawa, Y. Iwata et de D. Satoh et al., avec la technique du temps de vol, a mesuré le spectre doublement différentiel de neutrons induits par les ions de He, Ne, C, Si, Ar, Fe, Xe dans une large gamme d'énergie (100-800 MeV/nucléon) sur des cibles épaisses de C, Al, Cu, Pb [Kurosawa-98], [Kurosawa-00], [Iwata-01] et [Satoh-07].

R. Bedogni et al ont utilisé la technique de sphère de Bonner pour mesurer le spectre de neutrons allant de thermique jusqu'à 100 MeV issus de la réaction  ${}^{12}C(62 \text{ MeV/nucléon})+PMMA (C_5O_2H_8)n$  à deux angles 0° et 90° [Bedogni-12]. Le spectre de cette mesure est présenté dans la figure 2.5. On peut constater que la résolution énergétique de cette expérience n'est pas très nette (large d'intervalle d'énergie).



Figure 2.5 : Spectre de neutrons doublement différentiel de  ${}^{12}C(62 \text{ MeV/nucléon})+PMMA à deux angles 0° et 90°. Cette figure est extraite de [Bedogni-12]$ 

La section efficace doublement différentielle de production de neutrons par la réaction  ${}^{12}C(100-290 \text{ MeV/nucléon})+C$  a été mesurée par N. Shigyo et al de  $15^{\circ}$  à 90° par la technique du temps de vol [Shigyo-14].

F. Deak et al ont mesuré le spectre de neutron de la réaction  $^{14}N(35 \text{ MeV/nucléon})+$  $^{165}$ Ho en coïncidence avec les fragments du projectile. Les neutrons sont mesurés par la technique du temps de vol de 10° jusqu'à 110° [Deak-87].

H. R Schelin et al ont mesuré la section efficace de production de neutrons avec les réactions :  ${}^{14}$ N,  ${}^{36}$ Ar(35-50 MeV/nucléon)+ ${}^{nat}$ Ag. Les neutrons sont détectés par la technique du temps de vol de 15° à 120° [Schelin-92].

N. Pauwels et al, ont étudiés la production de neutrons sur cible épaisse de la réaction <sup>36</sup>Ar(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C. Les techniques d'activation et du temps de vol ont été utilisées pour mesurer les neutrons allant de 1 MeV à 200 MeV et de 0° à 90° [Pauwels-00-a].

L'équipe de L. Heilbronn a mesuré le spectre de neutrons dans des cibles minces et épaisses de divers ions dans l'objectif d'études de radioprotection pour l'industrie spatiale. On peut en citer : Nb(272-435 MeV/nucléon)+Nb, <sup>27</sup>Al), <sup>12</sup>C(155 MeV/nucléon)+Al [Heilbronn-96] [Heilbronn-98-a], [Heilbronn-98-b].

La production de neutrons par l'interaction d'un ion très lourd <sup>238</sup>U (1 GeV/A) sur une cible de <sup>nat</sup>Fe a été mesurée à GSI par l'équipe d'O. Yordanov et al [Yordanov-05].

La distribution des données expérimentales existantes en fonction de la masse et de l'énergie de l'ion incident est présentée dans la figure 2.6 ci-dessous. Cette figure montre également la limite d'opération des accélérateurs de plusieurs installations dans le monde.



Figure 2.6 : Distribution des données expérimentales existantes

#### 2.3.3 Divergences entre données expérimentales

La mesure de production de neutrons ne dépend pas seulement des caractéristiques physiques de la réaction mais aussi de la technique de mesure et de la méthode d'analyse des données. Il arrive que pour une même réaction ou entre deux réactions similaires, le spectre de neutrons mesuré par des équipes différentes montre des divergences. Dans cette section, deux exemples sont donnés : le premier concerne un faisceau à basse énergie (10 MeV/nucléon) et le second met en évidence une différence à haute énergie (95 MeV/nucléon).

La figure 2.7 représente la comparaison entre deux mesures, [Shin-95] et [Suman-15], pour la réaction <sup>12</sup>C(~10 MeV/nucléon+Al) à différents angles (0°; 30°; 60°; 90° et 120°). Pour faciliter la comparaison entre deux mesures, on multile le flux de neutrons à chaque angle par un facteur (1 à 0°; 1E-1 et 30°; 1E-2 et 60°; 1E-3 à 90° et 1E-4 à 120°). Dans ces deux mesures, les incertitudes ne sont pas disponibles dans la littérature. Les deux cibles sont épaisses. Il y a seulement 0,4 MeV/nucléon d'écart entre l'énergie des deux faisceaux incidents. Les deux mesures sont effectuées avec la même méthode du temps de vol. La différence entre les valeurs absolues présente un facteur d'environ 0,75 à 0° et atteint un facteur de 2 à 3 aux angles plus élevées.



Figure 2.7 : Spectre de neutrons doublement différentiel de l'expérience <sup>12</sup>C(10 MeV/nucléon+<sup>nat</sup>Al) ([Shin-95], [Suman-15])

Les deux expériences mesurent directement le courant déposé par le faisceau sur la cible afin de déterminer l'intensité du faisceau. La cible est enveloppée par une grille polarisée à -300 V pendant l'expérience de [Shin-95], ce qui permet d'empêcher les électrons secondaires de sortir de la CF. Ce dispositif de grille polarisée n'étant pas mentionné dans [Suman-15], l'intensité mesurée serait plus élevée que la vraie valeur. La différence entre les deux mesures pourrait être issue de la normalisation avec l'intensité du faisceau incident. Toutefois, elle n'explique pas le fait qu'aux grands angles la différence entre les deux mesures devient plus importante.

La figure 2.8 montre deux mesures très proches en énergie par nucléon pour deux ions incidents différents : ( $^{36}$ Ar(95 MeV/nucléon)+C – utilisant la méthode d'activation [Pauwels-00-a]) et ( $^{12}$ C(100 MeV/nucléon)+C – utilisant la méthode du temps de vol [Satoh-07]). La cible en carbone est épaisse.



Figure 2.8 : Spectre de neutrons doublement différentiel de l'expérience de <sup>12</sup>C(100 MeV/nucléon+<sup>12</sup>C) [Satoh-07] et de <sup>36</sup>Ar(95 MeV/nucléon+<sup>12</sup>C) [Pauwels-00-a]

Le flux mesuré par Pauwels est moins important que celui de Satoh. À 0°, l'écart entre les flux des deux mesures peut atteindre deux ordres de grandeurs. Les formes étant également très différentes, notamment à moins de 10 MeV où la mesure de Pauwels prévoit un pic de neutron centré vers les énergies faibles. À 90°, même si les formes des spectres obtenus par deux mesures sont plus proches, l'écart entre les deux flux est toujours d'un facteur 10. Cette divergence ne pourrait pas être expliquée par la différence de l'énergie et de la masse de l'ion incident. La normalisation avec l'intensité du faisceau ne peut pas non plus à elle seule expliquer cette grande différence du flux.

Le spectre de Satoh est obtenu directement à partir des mesures directes du temps de vol. La mesure de Pauwels est une mesure indirecte. La qualité de la reconstruction du spectre dépend donc de celle de l'algorithme de déconvolution. Par ailleurs, il est à remarquer que la mesure de Satoh a éliminé la contribution des particules chargées avec les détecteurs vétos, ce qui n'est pas le cas pour celle de Pauwels.

À travers les deux exemples présentés ci-dessus, on montre que la divergence entre des mesures du même spectre peut être considérable. Il n'est pourtant pas possible de trouver systématiquement l'origine exacte de ces divergences et de savoir quelle est la meilleure mesure.

#### 2.4 Modélisation des réactions générées par les ions lourds

#### 2.4.1 Introduction

Les ions lourds entrent en réaction nucléaire avec le noyau-cible selon plusieurs mécanismes qui dépendent de sa masse, de son énergie ainsi que de son paramètre d'impact, comme expliqué dans la section 2.1. La complexité et le caractère probabiliste des mécanismes

de réactions nucléaires en général et ceux des ions lourds en particulier font que la méthode probabiliste Monte-Carlo est le meilleur outil pour simuler les processus de réactions nucléaires et de transport de particules. Les réactions nucléaires et le transport de particules peuvent donc être simulés en se basant sur deux approches: données nucléaires et modèles physiques.

La première approche consiste à modéliser l'interaction des particules selon les données nucléaires de sections efficaces totales et différentielles. Cette approche a l'avantage d'avoir une bonne qualité de modélisation ainsi qu'un temps de calcul réduit. Elle n'est applicable qu'à un nombre réduit de cas. L'exemple le plus connu est le transport de neutrons de basse énergie ( $E_{neutron} \leq 20$  MeV) où les données de différentes libraires tels que Evaluated Nuclear Data File (ENDF) [Chadwick-11], Joint Evaluated Fission and Fusion File (JEFF) [OECD-17], Japanese Evaluated Nuclear Data Library (JENDL) [Shibata-11], TALYS Evaluated Nuclear Data Library (TENDL) [Rochman-16] sont largement disponibles.

La deuxième approche consiste à modéliser les réactions nucléaires non en se basant sur des données nucléaires mais sur des modèles physiques. Cette approche est plus universelle car elle permet de simuler une large gamme de réactions nucléaires dont les données ne sont préalablement pas connues. Cependant, la qualité de la simulation dépend fortement des modèles utilisés. C'est pourquoi, il est essentiel de comparer et étudier les résultats de simulation des modèles avec les données expérimentales disponibles avant toute application.

L'interaction nucléaire entre un ion lourd avec un noyau-cible peut être divisée en deux phases : Dynamique et Statistique. Pendant la phase dynamique, la trajectoire, la formation du noyau composé, la distribution énergétique entre les nucléons lors de l'interaction et l'émission des particules et des fragments de haute énergie sont modélisés. Pendant la phase statistique, le noyau composé atteint l'équilibre et commence à émettre des particules,  $\gamma$  voire des noyaux légères de basse énergie (A<~20) selon des distributions statistiques.

#### 2.4.2 Modèle de section efficace totale

L'ingrédient le plus important pour simuler l'interaction entre les ions lourds et les noyaux-cibles est la section efficace totale d'interaction. La section efficace totale permet de calculer le parcours et la probabilité d'interaction des ions lourds dans la matière. De plus, tous les résultats de simulation des modèles physiques : dynamique et statistique sont normalisés par rapport à la section efficace totale. Par ailleurs, puisqu'il est impossible de mesurer expérimentalement les sections efficaces totales pour toutes les combinaisons ion incident/noyau-cible, plusieurs modèles semi-empiriques sont développés pour calculer les sections efficaces totales des réactions d'ions lourds.

Parmi les modèles existants, celui de Tripathi-NASA [Tripathi-96], [Tripathi-97-a], [Tripathi-97-b] et [Tripathi-99] est souvent considéré comme le meilleur pour reproduire les données expérimentales [Sihver-12], [Sihver-14]. Il donne un meilleur résultat que des modèles de Shen et de Dostrovsky par exemple. C'est pourquoi, il est employé largement dans différents codes de transport Monte-Carlo dans sa version originale ou modifiée. La formule originale de Tripathi est ainsi:

$$\sigma_{R} = \pi r_{0}^{2} \left( A_{projectile}^{\frac{1}{3}} + A_{cible}^{\frac{1}{3}} + \delta_{E} \right)^{2} \left( 1 - \frac{B_{C}}{E_{CM}} \right)^{2}$$

Où r<sub>0</sub>=1,1 fm ; A<sub>projecile</sub> et A<sub>cible</sub> sont respectivement les nombres de masse du projectile et du noyau-cible ;  $\delta_E$  est un paramètre dépendant en énergie (il permet de prendre en compte l'effet de transparence et de blocage de Pauli notamment à moyenne et à haute énergie) ; E<sub>CM</sub> est l'énergie du faisceau en référentiel du centre de masse ; B<sub>C</sub> est la barrière coulombienne. Les détails de calcul de  $\delta_E$  et de B<sub>C</sub> sont présentés dans [Tripathi-97-b].

#### 2.4.3 Modèles dynamiques

#### 2.4.3.1 Modèle cascade

Il s'agit d'une des approches pour simuler la phase dynamique des réactions des ions lourds et des cascades intranucléaires. Les modèles de type INC (Intra-nuclear Cascade) assument que [Sharma-15] et [Borne-98] :

- 1. Les collisions individuelles nucléon-nucléon dominent les autres modes d'interaction. L'interaction entre deux noyaux est en effet celle entre leurs nucléons individuels.
- 2. Les effets d'interférences soient négligés. La cascade nucléon-nucléon est traitée de façon classique.
- 3. La section efficace de collision nucléon-nucléon dans les noyaux soit considérée égale à celle entre deux nucléons libres.
- 4. Le principe de Pauli soit adopté pour interdire les transferts d'énergie sur des états d'énergie déjà occupés par d'autres nucléons.
- 5. Les effets de réflexion et transmissions d'un nucléon à travers la surface du noyau soient calculés en prenant en compte la présence des autres nucléons.

La figure 2.9 présente une illustration d'une réaction de cascades nucléaires. Même si les principes de modélisation de réaction sont les mêmes il existe plusieurs modèles INC tels que Liège Intra-nuclear Cascade (INCL) [Boudard-13], Los Alamos version of the Quark-Gluon String Model (LAQGSM) [James-06], Binary Intra-nuclear Cascade (BIC) [Folger-04]... Les différences entre eux trouvent l'origine dans plusieurs points :

- 1. Distribution spatiale et du moment des noyaux.
- 2. Critère de collisions.
- 3. Critère d'arrêt de réaction.
- 4. Sections efficaces de collision nucléon-nucléon.



Figure 2.9 : Illustration des cascades nucléaires. Cette figure est extraite de [Musiol-88]

Pendant la cascade nucléaire, des nucléons sont émis en particules secondaires. Certains modèles INC tels que LAQGSM simule l'émission des particules plus lourdes que les nucléons (d, t, <sup>3</sup>He et  $\alpha$ ) grâce à son modèle de coalescence. Une fois les cascades terminées, dans certains modèles comme LAQGSM les noyaux formés ne se trouvent pas directement à l'équilibre mais à un état intermédiaire. L'émission des particules dans cet état est simulée avec une version du Modificed Exetension Model (MEM) [Sharma-15] et [Borne-98].

Les modèles INC conviennent pour simuler les réactions des nucléons et des ions incidents de faible masse et de haute énergie. Toutefois, leurs applications pour les réactions induites par les ions lourds, notamment à basse énergie, sont discutables pour les raisons cidessous :

- Seule l'interaction individuelle entre les nucléons est prise en compte. Cependant, la longueur d'onde d'un nucléon individuel pour le cas d'un ion incident de 10 MeV/nucléon est de 9 fm. Cette longueur d'onde est supérieure à la distance moyenne entre deux nucléons dans un noyau (1,3 fm). Cela implique que, pour les ions de basse énergie, chaque nucléon individuel peut interagir non seulement avec des nucléons individuels mais aussi avec le champ moyen nucléaire. Ce mode d'interaction n'est pas pris en compte dans les modèles INC.
- Le nombre de nucléons des ions lourds n'est pas négligeable par rapport à celui du noyau-cible. Dans certains cas, lorsque le nombre de nucléons de l'ion incident est bien plus élevé que celui du noyau cible, cela conduit lors de la réaction à une modification radicale du champ moyen nucléaire, de la forme de noyau composé, de la distribution énergétique... Ce phénomène n'est pas pris en compte dans les modèles INC.

#### 2.4.3.2 Modèle BME

Pour simuler les réactions des ions lourds de moins de 100 MeV/nucléon, le modèle Boltzmann Master Equation (BME) est également développé par [Cavinato-96], [Cavinato-01] et [Cerutti-06]. Le modèle BME considère la formation des noyaux composés/fragments lors de l'interaction entre l'ion incident et le noyau-cible. La distribution initiale de l'impulsion de nucléon lors de la première collision ion incident/noyau-cible est calculée selon le prescription nommé « translational-internal momentum coupling (TIMC) ».

Les énergies d'excitation à la fin de la phase dynamique dépendent de la distribution des impulsions de nucléons. Cette distribution est le résultat des collisions individuelles entre les nucléons dans le noyau et l'émission des nucléons et des fragments dans le continuum. BME considère ce processus comme la thermalisation des noyaux/fragments excités.

Ce modèle suit le principe des équations maîtresses : chaque nucléon du noyau chaud formé lors de la collision entre l'ion incident et le noyau-cible est classé selon son énergie. Un nucléon d'une énergie i peut passer à une autre énergie j selon une probabilité n<sub>i</sub>. Lors de la thermalisation, un nucléon ou un fragment peut être également émis du noyau si leur énergie est plus élevée que la somme de l'énergie de Fermi et celle de liaison. La section efficace de collision nucléon-nucléon dans le noyau est considérée égale à celle entre deux nucléons libres (comme la considération des modèles INC). Cependant, contrairement aux modèles INC, la collision nucléon-nucléon dans FLUKA (décrite par des équations maîtresses) dépend non seulement de la section efficace de collision nucléon-nucléon mais également d'autres facteurs.

Les détails des équations de BME sont présentés dans [Cavinato-96] et [Cavinato-01]. Le modèle BME ne prend pas en compte l'interaction d'un nucléon avec le champ moyen nucléaire lors de la thermalisation mais seulement lors de la première collision. Cet effet serait pourtant non négligeable à basse énergie de faisceau.

Pendant la phase dynamique, des particules ou des fragments de pré-équilibre sont émis. Le taux d'émission dépend de l'énergie du faisceau et de la masse du noyau formé. Les développeurs de BME utilisent cette théorie pour calculer le taux de multiplicité ainsi que des spectres doublement différentiels de particules secondaires de plusieurs systèmes représentatifs (cf. figure 2.10) selon le principe de balance détaillé. À partir des études de ces systèmes, BME extrapole ou interpole les données nécessaires pour simuler des réactions qui ne figurent pas dans la base de données représentatives.

Les réactions représentatives adoptées dans la version actuelle de BME sont :





60

E [MeV/A]

00

100

120

80

Combinaison

40

20

Ion incident-Noyau cible

Même si les systèmes représentatifs dans BME couvrent une large gamme d'énergies du faisceau et de masses de noyau composé ils connaissent deux limites :

- 1. L'énergie minimale des réactions représentatives est à 12 MeV/nucléon tandis que les réactions nucléaires continuent jusqu'à la barrière coulombienne B<sub>C</sub>.
- 2. Les noyaux composés représentatifs ne sont en général pas assez massifs pour couvrir toute la gamme possible du noyau formé.

Ces limites sont reconnues par les développeurs du BME. Les travaux en cours concernent l'extension de la gamme des réactions représentatives du BME vers les systèmes plus massifs (<sup>40</sup>Ca+<sup>120</sup>Sn; <sup>56</sup>Fe+<sup>28</sup>Si, <sup>40</sup>Ca, <sup>48</sup>Ca, <sup>120</sup>Sn) et la revue des fonctions d'ajustements.

#### 2.4.3.3 Modèle QMD

La phase dynamique des réactions nucléaires induites par ions lourds est également simulée par des modèles QMD (Quantum Molecular Dynamics-Dynamique quantique moléculaire). Les modèles QMD sont développés à partir de l'idée de modèle moléculaire dynamique classique et de la mécanique hamiltonienne [Niita-95], [Furihata-01] et [Sharma-15].

Les modèles QMD considèrent que l'évolution de la distribution spatiale et de moment de chaque nucléon de l'ion incident et du noyau-cible en fonction de temps suit une fonction gaussienne  $f_i(r,p,t)$ .

Selon la mécanique hamiltonienne, l'énergie totale du système (somme des énergies cinétique et potentielle) est décrit par une Halmiltonienne H=H(r,p,t). L'évolution de position et de moment en fonction de temps est définie par les deux équations ci-dessous :

$$\frac{d_r}{d_t} = \frac{\delta_H}{\delta_p}$$
$$\frac{d_p}{d_t} = -\frac{\delta_H}{\delta_r}$$

La fonction Halmiltonienne adoptée dans les modèles QMD prend en compte plusieurs facteurs : énergie libre des nucléons, interaction nucléon-nucléon de type Skyrme, interaction coulombienne et l'énergie symétrique.

En adoptant l'interaction de type Halmiltonien, l'interaction d'un nucléon individuel avec le champ moyen nucléaire peut être décrite. En effet, l'évolution d'un nucléon (position, moment) dépend de son interaction avec un champ Halmiltonien qui varie au cours de l'interaction, ce qui permet de prendre en compte plusieurs phénomènes qui ne peuvent pas être décrits pas des collisions individuelles tels que : déformation de densité, changement de forme du noyau...

Les modèles QMD présentent donc un avantage par rapport aux autres modèles, notamment pour les faisceaux de basse énergie (où l'interaction avec le champ moyen nucléaire domine). En parallèle avec l'interaction avec le champ moyen, les modèles QMD prennent également en compte l'interaction individuelle des nucléons (dominant à haute énergie). Pour les collisions individuelles, le facteur de blocage de Pauli est aussi pris en compte pour éviter que les nucléons se retrouvent dans un même état.

Il existe plusieurs modèles QMD pour la simulation de réactions nucléaires telles que JQMD, AMD, IQMD et CoQMD. Les différences entre les modèles QMD concernent des paramètres et des hypothèses tels que la largeur du paquet d'onde Gaussienne, les critères de collisions, la probabilité d'occupation des états, la probabilité de blocage de Pauli... Les détails sur la comparaison entre différents modèles QMD sont présentés et discutés dans [Xu-16].

#### 2.4.4 Critère de transition entre modèles dynamiques et statistiques

Les réactions nucléaires sont simulées par la combinaison de deux modèles : dynamique et statistique. Il existe donc un critère de transition entre les deux modèles. Ce critère détermine l'arrêt de calcul avec le modèle dynamique et le début de calcul avec le modèle statistique. Il est différent d'un modèle à l'autre mais il suit deux principales approches [Sharma-15]:

- Énergie : Selon cette approche, le calcul dynamique s'arrête lorsque l'énergie des nucléons devient moins élevée qu'un seuil E<sub>coupure</sub>. C'est l'approche adoptée dans Bertini et ISABEL, par exemple.
- Temps : Autres modèles tels qu'INCL, BME et JQMD considèrent que la phase dynamique s'arrête lorsque le temps de réaction dépasse un temps donné (temps de basculement t<sub>basculement</sub>). Ce temps peut être fixé pour toutes les réactions (JQMD, BME) ou varier en fonction de chaque combinaison ion incident/noyau-cible (INCL).

En général, le critère de transition est un paramètre arbitraire qui est sélectionné en fonction des études de données expérimentales disponibles. Un critère adapté pour décrire la réaction à une énergie donnée peut ne plus l'être pour une autre énergie. La figure 2.11 cidessous présente l'impact du choix de ce critère sur le spectre de neutrons de l'expérience <sup>12</sup>C(10 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu (épaisse) [Iwamoto-10]. Dans cet exemple, trois temps de basculement t<sub>basculement</sub> entre le modèle dynamique (JQMD) et statistique (GEM) du code de transport PHITS sont étudiés et comparés avec les valeurs expérimentales. Cette comparaison montre que le spectre de neutrons simulé varie nettement en fonction de la valeur du t<sub>basculement</sub> sélectionnée, notamment concernant la partie haute énergie du spectre (E<sub>neutron</sub>>20 MeV). Dans cet exemple, la valeur t<sub>basculement</sub> =100 fm/c semble être la plus adaptée pour reproduire les mesures expérimentales.



Figure 2.11 : Spectre de neutrons doublement différentiel de  ${}^{12}C(10 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ . Cette figure est extraite de [Iwamoto-10]

#### 2.4.5 Modèles statistiques

#### 2.4.5.1 Modèle d'évaporation statistique

Les modèles d'évaporation sont souvent basés sur le formalisme d'évaporation de Weisskopf-Ewing. Le formalisme de Weisskopf-Ewing est basé sur le principe de la balance détaillée et de micro-réversibilité [Borne-98] et [Sharma-15].

$$\rho_1 P_{12} = \rho_2 P_{21}$$

Où  $P_{12}$  et  $P_{21}$  sont respectivement la probabilité de transition de l'état 1 à 2 et 2 à 1,  $\rho_1$  et  $\rho_2$  sont respectivement les densités de niveaux de l'état 1 et 2.

Selon ce formalisme, la probabilité d'émission  $P_j$  d'une particule j d'un noyau mère m avec une énergie cinétique dans l'intervalle [ $\epsilon;\epsilon+d\epsilon$ ] dans la référence de centre de masse est :

$$Pj(\varepsilon)d\varepsilon = g_j\sigma_{inv}(\varepsilon)\frac{\rho_d(E-Q-\varepsilon)}{\rho_i(E)}\varepsilon d\varepsilon$$

Où

- E : Énergie d'excitation du noyau mère
- Q : La valeur Q de la réaction

 $\rho_d$ ,  $\rho_i$ : densité de niveau (1/MeV) des noyau fils et mère respectivement.

 $\sigma_{inv}$ : Section efficace inverse (section efficace d'émettre des particules) (calculée pour chaque particule).

g<sub>j</sub>: Facteur prenant en compte le spin et la masse de particule émis

En intégrant la probabilité différentielle (énergie) d'émission d'une particule sur toute la gamme d'énergie (de l'énergie potentielle coulombienne V jusqu'à E-Q), la largeur d'émission de cette particule est déterminée.

La probabilité d'émission d'une particule j est donnée par :

$$P_j = \frac{\Gamma_j}{\sum_j \Gamma_j}$$

La différence entre les différents modèles basés sur le formalisme de Weisskopf-Ewing vient des modalités de calcul des paramètres tels que les densités de niveaux, les sections efficaces inverses, la masse des noyaux ainsi que la gamme des particules secondaires considérées. Certains modèles d'évaporation statistiques se basent sur un autre formalisme: celui de Hauser-Feschbach. Le formalisme de Hauser-Feschbach est assez similaire à celui de Weisskopf-Ewing. Cependant, le formalisme de Hauser-Feschbach permet de mieux simuler les noyaux excités avec un spin élevé car il prend en compte les couplages de moments angulaires entre les états initiaux et finaux.

#### 2.4.5.2 Modèle de fragmentation

Les modèles d'évaporation statistiques basés sur le formalisme de Weisskopf-Ewing et de Hauser-Feschbach ne sont pas très bien adaptés pour simuler la désexcitation des noyaux composés légers (A $\leq$ 20) et des noyaux composés dont l'énergie d'excitation est élevée ( $\epsilon$ >~2,5 MeV/nucléon). Ces noyaux ont plus tendance à se désexciter en se cassant en plusieurs fragments que de suivre le schéma d'évaporation des particules secondaires, comme le veulent les modèles d'évaporation statistiques [Sharma-15] et [Borne-98].

Parmi les modèles de fragmentation, les modèles Fermi break-up sont spécialement développés pour simuler la fragmentation des noyaux légers pour toutes les énergies d'excitation. Les modèles de type Statistical Multi-Fragmentation (SMM) modélisent, quant à eux, le processus de fragmentation pour tous les noyaux composés, mais seulement s'ils ont une énergie d'excitation élevée [Ogawa-13]. Par ailleurs, les deux modèles se diffèrent également par le traitement des fragments formés. Selon le modèle Fermi break-up, les fragments formés sont stables, ce qui est compréhensible car l'énergie d'excitation après la fragmentation d'un noyau composé légers reste faible. Les modèles de SMM sont plus généraux car ils calculent l'énergie d'excitation des fragments après leur formation. Les fragments continuent donc de se désexciter de cette énergie en évaporant des particules ou éventuellement fissionnant selon les modèles d'évaporation et de fission statistiques.

#### 2.4.5.3 Modèle de fission

Il existe plusieurs modèles de fission. La majorité d'entre eux sont des modèles semiempiriques (ABLA [Junghans-98] et [Benlliure-98], Atchison [Atchison-80],...). Parmi les différents modèles de fission, le modèle de fission d'Atchison est celui qui est le plus largement adopté dans les codes de simulation. Ce modèle considère que la probabilité de fission pour un noyau composé de Z $\geq$ 70 est calculée selon la formule ci-dessous :

$$P_f \approx \frac{\Gamma_f}{\Gamma_f + \Gamma_n}$$

Où :  $P_f$  : Probabilité de fission ;  $\Gamma_f$ : Largeur de la fission ;  $\Gamma_n$ : Largeur d'émission de neutrons. Les  $\Gamma_f$  et  $\Gamma_n$  sont calculés selon les formules empiriques proposées par Atchison. Ces formules dépendent de l'énergie, la masse A, la charge Z du noyau composé.

Ce modèle de prends pas en compte l'émission des neutrons prompts lors de la fission. Les neutrons sont donc émis seulement par l'évaporation des fragments de fission. Le modèle de fission d'Atchison est souvent couplé à un modèle d'évaporation pour simuler complètement la phase statistique de réaction nucléaire. Cependant, il est à remarquer que les valeurs des données nucléaires et les paramètres ne sont pas pareils dans ces deux modèles.

#### 2.4.6 Divergences entre différentes prédictions théoriques

Concernant les réactions induites par les ions incidents de basse énergie (<10 MeV/nucléon), les particules secondaires, comme les neutrons, sont essentiellement produites par l'évaporation et la fission du noyau composé et/ou des fragments lorsque l'équilibre est atteint. Dans l'exemple de l'émission de neutrons de la réaction <sup>19</sup>F (5,79 MeV/nucléon) + <sup>27</sup>Al (cible épaisse) de [Sunil-08-b], les données expérimentales sont comparées aux simulations de deux codes d'évaporation, PACE et EMPIRE (cf. figure 2.12). Ces deux codes ne simulent pas

la phase dynamique de la réaction, l'énergie incidente de l'ion incident est considéré comme étant conservée pendant la phase dynamique (pas d'émission de particules pré-équilibre).



Figure 2.12 : Spectre de neutrons doublement différentiel de l'expérience <sup>19</sup>F (5,79 MeV/nucléon) +  $^{27}$ Al. Cette figure est extraite de [Sunil-08-b]

Les spectres calculés par PACE et EMPIRE présentent des divergences. Cette différence vient de la probabilité d'émission des neutrons dans chaque modèle. Cette probabilité est influencée en partie par le choix des paramètres de densité de niveau nucléaire comme ce qui est expliqué par [Sunil-08-b].

La figure 2.13 montre le spectre de neutrons émis à  $30^{\circ}$  d'une réaction plus haute en énergie : <sup>238</sup>U (50 MeV/nucléon) + Be (Cible mince) [Lee-17]. À cette énergie, l'émission des neutrons directs avant la phase équilibre devient plus importante. Les spectres sont mesurés par la méthode d'activation. La ligne rouge est le résultat de la déconvolution de l'analyse d'activation de trois feuilles : Bi, Al et Co. La ligne bleu est celui de deux feuilles : Bi et Al.

Les deux prédictions théoriques de FLUKA et de PHITS donnent la même forme du spectre de neutrons jusqu'à 100 MeV mais avec une différence de flux jusqu'à un facteur 3. La divergence est encore plus importante pour les neutrons plus énergétiques (E<sub>neutron</sub>>100 MeV). Les détails sur les modèles de FLUKA et de PHITS seront présentés dans le chapitre 9.


Figure 2.13 : Spectre de neutrons doublement différentiel de l'expérience  $^{238}$ U (50 MeV/nucléon) + Be. Cette figure est extraite de [Lee-17]

### 2.5 Divergence entre données expérimentales et prédictions théoriques

En comparant les spectres de neutrons mesurés et calculés dans l'expérience <sup>19</sup>F (5,79 MeV/nucléon) + <sup>27</sup>Al cf. figure 2.12, une surestimation de la production de neutrons de basse énergie ( $E_{neutron} < 15$  MeV) par le code PACE est observée. Ce code n'arrive pas à reproduire la partie de plus haute énergie à partir de 15 MeV. Les mesures expérimentales sont très bien reproduites par le code EMPIRE à 0°. Cependant, plus l'angle est grand plus la différence entre calcul et mesure devient importante (jusqu'à un facteur 3). Les modifications des paramètres des modèles tels que la section efficace totale de fusion et les densités de niveau nucléaire n'améliorent pas suffisamment le résultat de la simulation [Sunil-08-b].

La figure 2.14 montre une mesure de production de neutrons avec un faisceau <sup>12</sup>C de haute énergie (400 MeV/nucléon) sur diverses cibles épaisses (C, Al, Cu et Pb). Les données expérimentales sont mesurées par la méthode de ToF. Le seuil de la mesure présenté est de 10 MeV. Les mesures ont été comparées avec le code PHITS. En général, les calculs de PHITS reproduisent bien les mesures, notamment pour les angles intermédiaires (7,5°-30°). Cependant, des écarts plus importants sont observés aux angles avant (0°) et à plus de 60°.

Le modèle dynamique JQMD de PHITS ne prend pas en compte la dépendance en quantité de mouvement du champ potentiel nucléaire. Cette dernière favorise l'impulsion entre les nucléons de cascade dans le noyau et donc l'émission de neutrons. L'origine de la surestimation de la production de neutron d'environ 100 MeV à des grands angles n'est pas expliquée dans l'article [Satoh-07].



Figure 2.14 : Spectre de neutrons doublement différentiel de l'expérience  ${}^{12}C$  (400 MeV/nucléon)+C, Al, Cu, Pb. Les points sont des mesures expérimentales. Les lignes sont des calculs de PHITS. Cette figure est extraite de [Satoh-07]

# 3. Neutrons dans l'environnement des accélérateurs d'ions lourds

## 3.1 Utilisation des accélérateurs d'ions lourds

### 3.1.1 Pour la recherche

Les faisceaux d'ions lourds peuvent produire des noyaux exotiques auxquels il est difficile voire impossible d'accéder avec d'autres moyens (faisceaux légers ou fission dans les réacteurs nucléaires) comme par exemple des faisceaux superlourds ou très exotique (proche des limites de stabilité). Les noyaux formés par les réactions d'ions lourds peuvent avoir différences caractéristiques exotiques : énergie d'excitation élevée, riches en neutron ou en proton, super lourds... Ils font l'objet des études de la physique nucléaire moderne : structure nucléaire, dynamique des réactions, astrophysique nucléaire et interaction fondamentale.

De nos jours, la nouvelle génération d'accélérateurs est en train d'être mise en place avec la modernisation des infrastructures traditionnelles et la construction de nouvel accélérateur. Parmi les différents projets, on peut citer à titre exemple le GANIL avec le projet de modernisation du SPIRAL1 (Système de Production d'Ions Radioactifs en Ligne de 1<sup>ère</sup> génération) et de construction de SPIRAL2 (Système de Production d'Ions Radioactifs en Ligne de 2<sup>ème</sup> génération). La nouvelle génération d'accélérateur a une intensité du faisceau incomparable, ce qui permet d'élargir les zones de la carte nucléaire accessible pour la recherche.

## **3.1.2** Pour les applications

En parallèle avec la recherche fondamentale, les accélérateurs d'ions lourds sont également utilisés dans divers domaines de la société de la médecine jusqu'à des applications industrielles. On peut citer quelques exemples comme l'étude de l'irradiation des composants électronique et la hadronthérapie.

Les composants électroniques utilisés dans l'industrie aéronautique et spatiale sont irradiés en permanence par des rayons cosmiques. Les conséquences peuvent être graves si ces composants sont en défaillance pendant leurs utilisations. Il est nécessaire d'évaluer la résistance des composants avant leurs applications. On utilise donc les faisceaux d'ions lourds pour simuler les conditions d'irradiation dans l'espace et tester le fonctionnement de composants étudiés.

La méthode de traitement de cancer par radiothérapie consiste à irradier les tumeurs cancéreuses avec des rayonnements ionisants ( $\gamma$ , électron et particules chargées). La technique d'hadronthérapie utilise des faisceaux de particules chargées (proton, <sup>12</sup>C) d'une énergie allant jusqu'à 400 MeV/nucléon. Cette technique permet de mieux cibler les cellules cancéreuses que des méthodes conventionnelles tout en limitant les conséquences sur les cellules saines autour de la tumeur (cf. figure 3.1). Par ailleurs, certaines tumeurs sont également plus sensibles biologiquement à l'irradiation par les particules chargées.



Figure 3.1 : Illustration du dépôt de dose en fonction d'épaisseur pour différents types de particules. Cette figure est extraite de [IPNL-18]

## **3.2** Sources de production de neutrons

Les neutrons sont produits volontairement ou involontairement dans plusieurs endroits de l'installation d'accélérateurs.

## 3.2.1 Arrêts de faisceau

Pendant le fonctionnement de l'accélérateur, il est très compliqué et parfois impossible d'éteindre et de redémarrer ensuite tout le système d'accélérateur (sources d'ions, cyclotrons, ligne de transport...). Or, dans les conditions réelles de fonctionnement, on a souvent besoin d'éteindre le faisceau dans la salle d'expérience pour réaliser des réglages et des calibrations auprès de la ligne de faisceau ou des détecteurs. Le système d'accélérateur n'est pas éteint dans cette période puisque le faisceau est envoyé sur un arrêt de faisceau.

Par ailleurs, pendant les expériences effectuées avec des cibles minces, le faisceau incident n'est pas arrêté dans la cible. Il continue sa trajectoire et sera arrêté plus loin dans un arrêt de faisceau, placé directement dans la salle d'expérience.

Les faisceaux sont également volontairement arrêtés dans des cibles épaisses. Les cibles épaisses sont utilisées directement pendant une expérience de physique ou pour produire des noyaux radioactifs comme le cas de SPIRAL1.

Les arrêts de faisceaux répondent à plusieurs contraintes :

- > Thermiques : ils doivent pouvoir supporter une puissance élevée du faisceau incident.
- Radiologiques (radioprotection): le blindage autour des arrêts de faisceaux doit fortement atténuer le flux de rayonnements et de doses à l'extérieur des cases mates et des salles d'expériences

## 3.2.2 Perte de faisceau

En dehors des endroits spécifiquement développés pour arrêter le faisceau, le faisceau entre en interaction avec de la matière de la ligne de faisceau tout au long de son parcours. Il y a deux raisons principales pour lesquelles le faisceau est arrêté partiellement ou totalement :

- Mauvais réglages: une partie de faisceau est perdu en tapant les différents composants (cyclotron, dipôle, quadrupôle...)
- Présences d'autres éléments dans la ligne de faisceau : Gaz résiduel, poussière...

Les pertes de faisceaux peuvent être limitées en optimisant les réglages tout en maintenant le niveau de vide requis dans la ligne de faisceau. Cependant, il est impossible de les éliminer complètement.

Quand il s'agit de perte de faisceaux, il s'agit également de réactions nucléaires et donc de production de neutrons tout au long de la ligne de faisceau. Ils contribuent donc à la problématique de la radioprotection dans des accélérateurs comme sera présentée dans la section 3.3. Il est nécessaire de prendre en compte cette contribution dans l'exploitation des accélérateurs.

## 3.3 Radioprotection dans des accélérateurs

## 3.3.1 Effets biologiques des neutrons

Le corps humain est composé essentiellement des éléments légers (62 % d'H, 12% de C et 24 % de l'O). Le neutron interagit avec ces éléments et produit ainsi les particules, noyaux et rayonnements secondaires.

Ce sont les particules chargées et les noyaux de recul qui ionisent ensuite principalement les cellules humaines. À cause de leurs parcours courts, ils peuvent déposer toutes leurs énergies à l'endroit où ils sont produits. Ce fort dépôt d'énergie provoque des lésions sur les cellules voisines. Les conséquences peuvent graves pour la santé. Les effets peuvent être à la fois immédiats (brûlures) et à long terme (cancers, leucémies).

La Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) évalue un facteur de conversion flux-dose équivalente afin de prendre en compte les différentes voies de réactions neutronique et les effets biologiques associés. La figure 3.2 présente ce facteur de conversion publié dans la recommandation CIPR-116 [Petoussi-Henss-10]. On trouve que ce facteur varie nettement en fonction de l'énergie de neutrons : en général, pour un même flux, plus le neutron est énergétique plus la dose est importante.



Figure 3.2 : Facteur de conversion Flux neutrons – dose équivalente CIPR-116.

### 3.3.2 Activation neutronique

Les neutrons secondaires activent les composants de l'accélérateur, de la ligne de faisceau et des différentes structures de l'installation (mur, plafond, sol par exemple). Tandis que la majorité des isotopes produits par l'activation neutronique décroît vite après l'arrêt du faisceau, il y a cependant ceux qui ont une demi-vie non négligeable tels que :

- >  ${}^{56}$ Fe(n,t) ${}^{54}$ Mn T<sub>1/2</sub> = 312,3 jours
- >  ${}^{59}Co(n,3n){}^{57}Co T_{1/2} = 271,8$  jours
- $\succ$  <sup>59</sup>Co(n,γ)<sup>60</sup>Co − T<sub>1/2</sub> = 5,3 ans
- > <sup>151</sup>Eu(n, $\gamma$ )<sup>152</sup>Eu T<sub>1/2</sub>=13,4 ans
- >  $^{133}Cs(n,\gamma)^{134}Cs T_{1/2} = 2,1$  ans

Parmi ces éléments, à titre d'information <sup>151</sup>Eu et <sup>133</sup>Cs sont présents dans du béton sous forme de traces. Ces isotopes sont accumulés au cours du fonctionnement de l'installation. Ils augmentent d'une part le niveau de dose ambiante et compliquent d'autre part l'opération et la gestion des déchets radioactifs lors de la fin de vie de l'installation.

Le neutron peut produire également des noyaux radioactifs à l'état gazeux. Les gaz radioactifs sont facilement diffusés dans l'atmosphère et posent donc un risque sérieux pour la santé des personnels et du public. La source de gaz radioactifs la plus importante produite par l'activation neutronique est le tritium. Il est produit par les réactions de type (n,t). Il est à remarquer également que puisque les neutrons peuvent traverser facilement la matière, le gaz tritium peut être produit dans des endroits qui ne sont pas équipés du système de ventilation nucléaire.

### **3.3.3** Blindage de neutrons

Le blindage de neutrons consiste à garantir un bon niveau de dose ambiante et de radioprotection autour des endroits susceptibles d'être producteurs de neutrons (salle d'expérience, salle d'accélérateur, ligne de faisceau...). Le neutron étant électriquement neutre, seules les réactions nucléaires de type  $(n,\gamma)$  et (n, particules chargées) permettent d'atténuer son flux. Or, les sections efficaces de ces réactions sont seulement significatives à basse énergie (Thermique-~quelques MeV). Il est donc nécessaire de ralentir préalablement les neutrons. D'un point de vue radioprotection, on doit prendre également en compte la contribution des rayonnements  $\gamma$  et particules secondaires produits lors de ces réactions.

Un des matériaux le plus utilisé comme blindage neutronique est le béton. Le ralentissement et l'absorption de neutrons dans du béton sont efficaces grâce à la présence de l'hydrogène. Le béton a aussi une densité plus élevée par rapport à d'autres matériaux hydrogénés comme de l'eau et le polyéthylène, ce qui facilite l'absorption des particules chargées et des  $\gamma$  secondaires et permet de réduire l'épaisseur de protection nécessaire. Par ailleurs, grâce à la caractéristique mécanique et le coût moins élevé, la construction, la modification et le démantèlement de l'installation nucléaire sont optimisés. Il est donc le matériel de protection biologique préféré auprès des installations d'accélérateurs.

De plus, il est à remarquer que contrairement aux réacteurs nucléaires où le spectre de neutron est bien défini, ce n'est pas le cas dans des installations d'accélérateurs. On a besoin de calculer l'atténuation pour l'interaction de chaque combinaison faisceau primaire-cible possibles afin de bien concevoir le blindage. Un exemple de calcul de l'atténuation de neutrons entre le modèle empirique du GANIL et le code FLUKA est présenté dans la figure 3.3 suivante pour la réaction <sup>12</sup>C(100 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C [Agosteo-04]. On y observe un écart non négligeable entre deux modèles. Cet écart s'explique par plusieurs facteurs : spectre initial de neutrons (issues de modèle de réactions d'ions lourds), calcul de transport de neutrons, facteur de conversion flux-dose....



Figure 3.3 : Dose de neutrons en fonction d'épaisseur du mur de béton [Agosteo-04].

### 3.3.4 Mesure de neutrons avec les dosimètres conventionnels

Les installations nucléaires sont équipées de dosimètres pour surveiller et contrôler le niveau de dose et garantir la radioprotection des employés. On utilise souvent deux types de dosimètres : Personnel et Ambiant.

Les dosimètres personnels sont portés par toutes les personnes travaillant dans un environnement de rayonnement ionisant. Les dosimètres personnels sont produits à base d'un film plastique ou d'un semi-conducteur. Les neutrons entrent en interaction avec le dosimètre et produisent des traces dans le film ou ionisent le semi-conducteur. En comptant le nombre de traces et le niveau d'ionisation, on peut estimer le flux intégré de neutrons incidents.

On utilise également des balises de neutrons pour mesurer la dose ambiante des neutrons. La balise de neutrons se compose d'une sphère modératrice de polyéthylène. Dans le centre de la sphère, il y a une chambre à ionisation dont le gaz est <sup>3</sup>He ou <sup>10</sup>BF<sub>3</sub>. Les neutrons entrent dans la sphère et sont modérés. Ils sont ensuite absorbés selon deux réactions : <sup>3</sup>He(n,p)T ou <sup>10</sup>B(n, $\alpha$ )<sup>7</sup>Li. Les particules chargées produites ionisent le gaz et créent un signal électronique. En mesurant ce signal, on peut estimer le flux total de neutrons entrant dans la balise.

Les dosimètres de neutrons sont toutefois confrontés à deux problématiques majeures :

- Les sections efficaces de détection et de modération de neutrons par les réactions utilisées par des dosimètres diminuent nettement en fonction de l'énergie de neutrons. Ces dosimètres sont inefficaces pour détecter les neutrons de haute énergie qui sont pourtant bel et bien présents auprès des accélérateurs (cf. figure 3.4).
- Les dosimètres mesurent le flux intégré de neutrons mais pas le spectre en énergie. La dose est estimée en appliquant un facteur de conversion. Ce facteur est souvent estimé avec des mesures des sources de neutrons de calibrations (AmBe) où seuls les neutrons de basse énergie sont présents. La dose estimée n'est donc pas exacte dans le cas où les neutrons de hautes énergies sont présents.



Figure 3.4 : Réponse des balises de neutrons calculés par Geant4 et MCNP. Cette figure est extraite de [Pioch-10]

## **3.4** Dommage des matériaux induit par les neutrons

Dans les réactions nucléaires, les neutrons transmettent une énergie cinétique aux noyaux collisionnées et produisent des particules chargées ou neutres et des rayonnements  $\gamma$ . Ces produits de réactions neutroniques ont une énergie assez élevée. Ils mettent en mouvement les atomes au voisinage du point où ils sont initialement produits. Puisque le seuil de déplacement des atomes dans des métaux est seulement de l'ordre de quelques dizaines d'eV, un nombre important d'atomes est déplacé en cascade lors d'une seule réaction neutronique. La recombinaison de ces atomes déplacés n'est pas toujours possible [Novion-97].

La grandeur souvent utilisée pour quantifier ces déplacements est le dpa. Le dpa est le nombre moyen de déplacements par un atome de la matière. On utilise souvent des codes de transport pour estimer ce facteur car il dépend de toutes les sections efficaces d'interaction des neutrons dans la matière.

Il est aussi à remarquer que les neutrons transmutent la matière.

L'effet du déplacement des atomes ainsi que de la transmutation de la matière peut être observé à l'échelle macroscopique. Les conséquences principales sont décrites dans [Novion-97]:

- Changement de dimensions (gonflements, croissance...),
- Diffusion atomique accélérée,
- Transformation de phase,
- Modification des propriétés mécaniques (fluage accélérée, durcissement, fragilisation...),
- Modifications des propriétés physiques (augmentation de la résistivité et de la conductivité...),
- Dommage sur des polymères (coupure de chaînes, réticulation...)

Ces conséquences peuvent être graves et nécessitent d'être prises en compte dans la conception des installations nucléaires. Les deux exemples les plus connues sont la dégradation de la cuve et des barres de combustibles dans les réacteurs nucléaires. Dans les installations d'accélérateurs, les dommages principaux concernent plutôt des composants électroniques et les détecteurs placés près des points d'interaction de faisceaux [Fadil-17].

## 3.5 Pourquoi le programme expérimental TTNY au GANIL ?

Les sections précédentes ont montré les utilisations intensives de l'accélérateur d'ions lourds pour la recherche et pour les applications. On y trouve des risques et des conséquences liées aux neutrons secondaires. Les problématiques pour la mesure et calculs de la dose de neutrons ont été démontrés. Il est donc nécessaire d'avoir des données nucléaires concernant la production de neutrons par les réactions d'ions lourds afin de bien garantir un niveau adéquat de l'exploitation et du démantèlement des accélérateurs.

Toutefois, comme ce que l'on a vu dans le chapitre 2, on est confronté actuellement à deux problématiques :

- Manque de données pour les différentes combinaisons faisceau incident-noyau cible,
- > Divergence entre les mesures, entre les calculs et entre les mesures et les calculs.

Ces deux problématiques peuvent présenter des conséquences graves ou gênantes pour la radioprotection et la sûreté nucléaire des accélérateurs notamment dans le contexte où les exigences de la part des autorités de suretés nucléaires sont de plus en plus contraignantes.

Le programme expérimental Thick Target Neutron Yields (TTNY) a donc été lancé au GANIL en 2015. Son objectif est de mesurer des spectres doublement différentiels (énergie, angle) des neutrons produits par les interactions des ions lourds sur des cibles épaisses. Jusqu'à ce jour, huit expériences ont été effectuées. La gamme d'ions incident et du noyau-cible étudiée dans nos expériences est assez large et est représentative des faisceaux du GANIL ( $12\leq A_{ion}$  incident $\leq 208$ ; 4,6 MeV/nucléon $\leq E_{ion}$  incident $\leq 95$  MeV/nucléon;  $12\leq A_{cible} \leq 93$ ). Plus de détails concernant les faisceaux et les cibles utilisés dans nos expériences sont présentés dans le chapitre 5.

Les données nucléaires produites dans le cadre de ce programme servent à deux objectifs :

- Évaluer les codes de calculs nucléaires utilisés au GANIL (Stochastique: MCNP, FLUKA, PHITS et Déterministe : Code SPR).
- > Optimiser l'exploitation (radioprotection, sûreté nucléaire, démantèlement) du GANIL.

Elles sont également utiles pour les développeurs des modèles physiques concernant l'amélioration de la simulation des réactions d'ions lourds.

## 4. Faisceaux et dispositif d'irradiation

## 4.1 Faisceaux d'ions incidents

#### 4.1.1 Choix des faisceaux

Dans ce travail, les spectres de neutrons secondaires mesurés sont générés par l'interaction nucléaire de certains faisceaux d'ions lourds du GANIL avec des cibles épaisses. Ces faisceaux sont en effet largement utilisés dans différentes expériences de physique nucléaire au GANIL. En mesurant le flux de neutrons émis, il est possible d'avoir une idée globale et assez précise sur la production de neutrons pendant le fonctionnement des cyclotrons et du LINAC du GANIL/SPIRAL2. En outre, le choix des faisceaux utilisés dans ce travail est également motivé par l'intérêt pour la physique des ions lourds et pour les applications (hadronthérapie, applications industrielles). Comme ce qui est indiqué dans le chapitre 2, les données de production de neutrons des faisceaux d'ions lourds de masse élevée (A $\geq$ 20) sont très rares.

C'est pourquoi, on a étudié dans nos expériences pour la gamme d'énergie d'inférieur eet d'autour de 10 MeV/nucléon quatre faisceaux <sup>24</sup>Mg (4,6 MeV/nucléon), <sup>208</sup>Pb (6,25 MeV/nucléon), <sup>78</sup>Kr (10,5 MeV/nucléon) et <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon).

Les mesures de neutrons avec ces faisceaux permettront d'évaluer des modèles de physique existants adoptés dans des codes de transport. En outre, l'observation des neutrons de haute énergie serait également une indication du seuil énergétique de l'émission de pré-équilibre.

Les expériences effectuées utilisent également trois faisceaux dont l'énergie est bien supérieure à 10 MeV/nucléon: <sup>32</sup>S (50 MeV/nucléon), <sup>58</sup>Ni (74,5 MeV/nucléon) et <sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon). Les comportements du mélange des mécanismes de réactions de haute énergie et l'évaporation statistique seront observés avec ces faisceaux.

### 4.1.2 Mesure d'intensité

En physique des accélérateurs, l'une des grandeurs les plus importantes est l'intensité du faisceau incident. La connaissance de cette intensité est essentielle pour le diagnostic du faisceau. Elle est également importante pour l'expérience elle-même et son analyse, en l'occurrence pour la normalisation des taux d'émission des neutrons secondaires en ce qui nous concerne.

Dans les expériences effectuées dans le cadre de la thèse, les intensités de faisceaux sont mesurées avec deux instruments: Transformateur d'intensité (TI) et Cage de Faraday (CF). En outre, elles sont aussi monitorées par des balises de neutron à base d'<sup>3</sup>He empruntées au SPR (Service de Protection contre les Rayonnements) du GANIL. Chaque technique présente des avantages et des inconvénients qui seront détaillés dans ce qui va suivre.

### 4.1.2.1 Mesure d'intensité avec un transformateur d'intensité (TI)

Afin de mesurer l'intensité du faisceau et la contrôler en temps réel sans la perturber, les techniques de mesures non destructives sont adoptées. Parmi ces techniques, on trouve le transformateur d'intensité (TI) qui est l'une des méthodes utilisées au GANIL.

Le transformateur d'intensité se compose d'une bobine enroulée autour du tore. Le faisceau d'ions incidents passe dans un tube à l'intérieur du tore. Le faisceau génère un champ magnétique dans le tore. Ce champ magnétique crée un courant électrique dans les fils de la bobine. En mesurant ce courant, l'intensité du faisceau est déduite selon la formule suivante :

$$I_{mesureTI}(t) = \frac{I_{faisceau}}{N} + I_{résiduelle}$$

Où : I<sub>mesureTI</sub> est l'intensité mesurée par le TI, I<sub>fasisceau</sub> est l'intensité réelle du faisceau, N est le nombre de tours de fils de la bobine, et I<sub>résiduelle</sub> est la valeur résiduelle du TI en l'absence de faisceau.

Avec cette méthode de mesure, le TI est capable également de suivre l'évolution de l'intensité du faisceau au cours de l'expérience. Le principe de fonctionnement des transformateurs d'intensité est illustré dans la figure 4.1. Dans cette figure, le courant primaire et le conducteur primaire représentent le faisceau d'ions incidents dans le cas d'un accélérateur.



Figure 4.1 : Principe de fonctionnement du TI. Cette figure est extraite et modifiée de [Electronic-18]

L'intensité du faisceau ainsi que sa variation en fonction du temps est mesurée dans ce travail par le transformateur d'intensité TI44 au GANIL. Ce transformateur d'intensité est de type alternatif avec une bande passante à haute fréquence qui couvre la gamme de fréquence de faisceaux des cyclotrons du GANIL (~10 MHz). L'incertitude sur la mesure d'intensité du faisceau est estimée par le Secteur des Accélérateurs (SDA) au GANIL comme étant de l'ordre de 5 %.

Le TI44 est situé à la sortie du spectromètre alpha (cf. figure 4.2). Une équipe du GANIL avait effectué dans le passé des mesures d'intensité d'un faisceau de  $^{40}$ Ar<sup>16+</sup> (4,64 MeV/nucléon) par différents TI afin d'étudier la perte de faisceau entre ce spectromètre et une salle d'expérience [Thomas-14]. L'intensité a été mesurée par le TI44 et un autre TI à l'entrée de la salle D3 (TID3) (cf. figure 4.2). Le rapport entre les mesures d'intensité est présenté dans la figure 4.3.



Figure 4.2 : Positions des TI au GANIL



Figure 4.3 : Rapport entre deux mesures d'intensité avec le TI44 et le TID3. Cette figure est extraite de [Thomas-14]

Malgré la distance entre le spectromètre alpha et la salle d'expérience D3 (environ 40 m), la perte d'intensité de faisceau est très faible (de l'ordre de 3 %). Elle se situe dans les barres d'incertitude de 5 % sur la mesure d'intensité avec le TI du GANIL. La distance entre la salle D3 et le spectromètre alpha est comparable à celle entre la salle G3 et ce spectromètre (cf. figure 4.2). La perte de faisceau entre le spectromètre alpha et la salle G3 est donc considérée comme étant négligeable.

Cependant, les TI présentent une limite dans la mesure des faisceaux de faibles intensités (I<sub>faisceau</sub><~20 nA). En effet, pour les faibles intensités un TI est tout simplement inefficace. Le champ magnétique induit par le faisceau incident est très faible. Le courant I<sub>mesureTI</sub> créé n'est pas mesurable. C'est pour cette raison que le TI n'a pas été utilisé pour mesurer des faibles intensités. Les faibles intensités concernent les mesures de ToF de la plupart d'expériences et la mesure d'activation des expériences de haute énergie (avec les faisceaux  $^{58}$ Ni (74,5 MeV/nucléon) et  $^{12}$ C (95 MeV/nucléon)).

### 4.1.2.2 Mesure d'intensité avec une cage de Faraday (CF)

Dans nos expériences, l'intensité du faisceau a été également mesurée en utilisant une cage de Faraday (CF). Cette technique de mesure est destructive. En effet, le faisceau est arrêté dans la coupelle du dispositif de cage de Faraday, ce qui permet la mesure directe du courant du faisceau. La CF a l'avantage de pouvoir fonctionner avec des faisceaux de très basse intensité jusqu'à quelques dizaines de pA. Cependant, la CF n'est pas adaptée pour la mesure des intensités élevées (quelques  $\mu$ A) à cause de la saturation de l'électronique de comptage et du risque de fusion thermique d'une part ou de toute la cage.

La CF utilisée dans ce travail de thèse est placée dans la ligne de faisceau à environ 30 cm devant la cible. Sa conception est présentée dans la figure 4.4. La CF a été systématiquement polarisée à -300 V sauf dans l'expérience  ${}^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/nucléon}+{}^{nat}Cu)$  à cause d'une erreur humaine. La polarisation de la CF est importante. La haute tension appliquée est en effet utile pour empêcher les électrons secondaires de sortir de la CF. Si la CF n'est pas polarisée le courant mesuré peut être supérieur d'un facteur deux au courant réel. La cible de la CF (où le faisceau primaire s'arrête) est fabriquée en Tantale avec une épaisseur de 3 cm, ce qui permet d'arrêter complètement tous les faisceaux du GANIL.

La CF est utilisée pendant les mesures où l'intensité du faisceau est en-dessous de la limite de détection du TI44. Elle a été également utilisée pour mesurer l'intensité d'un faisceau de l'ordre de 100 nA pour comparer avec la mesure du TI44.



Figure 4.4 : Conception de la CF utilisée (gauche). Positions de la CF et de la cible dans la ligne du faisceau (droite)

### 4.1.2.3 Différences entre deux mesures d'intensité avec le TI et la CF

Pendant notre campagne de mesure, la comparaison entre la mesure du TI et de la CF a été uniquement réalisée pendant l'expérience <sup>32</sup>S (50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu. La figure 4.5 montre que la mesure d'intensité avec la CF est systématiquement plus élevée que celle effectuée avec le TI44. L'écart entre les deux méthodes reste constant pendant toute la durée de l'expérience et pour une large gamme d'intensité [27 nA:110 nA].





On calcule ensuite le rapport f<sub>I</sub> moyen entre l'intensité mesurée par le TI44 et la CF :

$$f_I = \frac{I_{CF}}{I_{TI44}} = 1,17$$

On a utilisé un même TI et une même CF dans toutes nos expériences. Il est donc raisonnable de considérer que ce rapport ne change pas. Il est utilisé pour normaliser la mesure d'intensité de la CF à la valeur du TI44.

### 4.1.2.4 Monitorage relatif de l'intensité du faisceau

La mesure de la valeur absolue de l'intensité du faisceau n'est pas suffisante pour les expériences de mesure de flux de neutrons. En effet, la variation de l'intensité au cours de l'irradiation est également à prendre en compte dans l'analyse, notamment pour la mesure d'activation. L'évolution de l'intensité en temps réel est systématiquement suivie par le TI44 pour les faisceaux où une haute intensité (à partir 20 nA) est possible. La fréquence de mesure du TI44 varie entre dix secondes et deux minutes en fonction de chaque expérience.

À des basses intensités, seule la CF fonctionne. Comme la mesure de la CF est destructive, des mesures ponctuelles sont faites par l'expérimentateur durant toute la période d'expérience. Le faisceau est coupé par la CF chaque quinze minutes pendant une courte période (quelques dizaines de secondes) pour mesurer l'intensité. L'évolution de l'intensité entre deux mesures CF successives ne peut donc pas être suivie.

C'est pourquoi, on utilise une balise de neutrons pour suivre indirectement cette évolution. La balise de neutrons se compose d'une sphère modératrice en polyéthylène (rayon 12,7 cm). Au milieu de cette sphère se trouve un compteur à gaz <sup>3</sup>He (cf. figure 4.6). Les neutrons incidents sont ralentis grâce au polyéthylène. Ils sont ensuite absorbés dans le gaz <sup>3</sup>He selon la réaction :  $n+^{3}He->p+^{3}H$ . Le signal est généré par l'ionisation crée par le recul du proton et du <sup>3</sup>H.





La balise de neutrons mesure le flux intégral de neutrons en temps réel. Elle la convertit ensuite en dose de neutron  $B_{neutron}$  en adoptant un facteur de conversion du fabriquant. La production de neutrons sur la cible est proportionnelle à l'intensité du faisceau. La variation de l'intensité du faisceau est donc considérée égale à celle de la dose donnée en temps réel par la balise de neutrons.

La fonction de réponse de la balise de neutrons employé au GANIL est linéaire pour une vaste gamme de dose mesuré (quelques dizaines de  $\mu$ Sv/h-10000  $\mu$ Sv/h) [C/INN32-80]. Cette gamme couvre l'environnement neutronique dans toutes nos expériences (mesures ToF et mesures Activation comprises).

On peut donc considérer que le rapport entre l'intensité du faisceau mesuré par le TI44 et la dose mesurée par la balise de neutrons  $\frac{I_{TI44}}{B_{neutron}}$  est constant pour chaque expérience. On peut donc l'utiliser pour estimer indirectement l'intensité du faisceau mesurée par le TI44 et des régions de basse intensités où celui-ci ne fonctionne pas.

Cependant dans certaines expériences avec des faisceaux de haute énergie, même l'intensité maximale de l'expérience n'est mesurable que par la CF. C'est pourquoi, on calcule le rapport  $\frac{I_{CF}}{B_{neutron}}$  pour estimer indirectement l'intensité de faisceaux à partir de la mesure par la balise de neutrons.

Les deux rapports  $\frac{I_{TI44}}{B_{neutron}}$  et  $\frac{I_{CF}}{B_{neutron}}$  sont mesurées plusieurs fois tout au longue de l'expérience. On calcule l'écart standard correspondant à chaque rapport, ce qui donne une indication sur l'incertitude de la mesure d'intensité du TI44 et de la CF. Cette incertitude est à

environ 5 % pour le TI44, ce qui est compatible avec la valeur fournie par le SDA du GANIL. Dans le cas de la CF, elle varie en fonction de l'expérience et peut atteindre une dizaine de pourcents.

# 4.2 Cibles et brides

# 4.2.1 Cibles

Trois éléments ont été choisis pour cibles dans nos différentes expériences: <sup>nat</sup>C, <sup>nat</sup>Cu et <sup>nat</sup>Nb.

Le cuivre est un élément prépondérant dans des composants d'accélérateurs. La mesure de la production de neutrons sur le cuivre permettrait donc d'estimer l'environnement neutronique auprès des cyclotrons du GANIL. Cinq faisceaux sont utilisés avec des cibles en cuivre: <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon), <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon), <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon), <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon) et <sup>32</sup>S (50 MeV/nucléon). Les quatre premiers faisceaux se figurent parmi la gamme d'opération du nouvel accélérateur LINAC du SPIRAL2.

La cible en <sup>nat</sup>C est utilisée pour l'expérience <sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C. Le choix de cette réaction a été fait pour permettre de comparer notre mesure par rapport à deux mesures existantes comme vu dans la section 2.3.3. D'autre part, il est utile de signaler que cette réaction a une autre importance : la mesure de la production de neutrons sur le carbone avec un faisceau de <sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon) est utile pour l'hadron-thérapie car elle permet d'estimer la dose supplémentaire due aux neutrons que le patient reçoit pendant des séances de traitement. Dans le campus Jules Horowitz à Caen, le traitement avec le faisceau de <sup>12</sup>C centre ARCHADE (Advanced Resource Center for HADrontherapy in Europe) sera bientôt disponible pour la recherche et pour le traitement du public.

Deux expériences sont réalisées avec la cible du <sup>nat</sup>Nb en utilisant deux faisceaux : <sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon) et <sup>58</sup>Ni (74,5 MeV/nucléon). La mesure de production de neutrons sur du Nb permet d'estimer l'environnement neutronique auprès de l'installation SPIRAL 1 Upgrade car le Nb est la cible au nombre atomique le plus élevé à être autorisée (par l'Autorité de sûreté nucléaire) pour la production de faisceaux radioactifs secondaires dans cette installation.

La cible utilisée dans l'expérience doit répondre à plusieurs critères : épaisse (arrêtant le faisceau incident) et supportant la puissance thermique déposée lors de l'irradiation. Le tableau 4.1 ci-dessous résume les dimensions des cibles utilisées dans chaque expérience.

Esissee insident	Élámont eible	Dimensions (cm)			
raisceau incluent	Element cible	Taille	Épaisseur		
<sup>24</sup> Mg(4,6 MeV/A)		Disque (R=2,5)			
<sup>208</sup> Pb(6,25 MeV/A)		Carré (5)			
<sup>78</sup> Kr(10,5 MeV/A)	<sup>nat</sup> Cu	Disque (R=2,5)	0,2		
$^{36}S(12 \text{ MeV/A})$		Carré (5)			
$^{32}S(50 \text{ MeV/A})$					
<sup>58</sup> Ni(74,5 MeV/A)	notNb	Discuss $(\mathbf{P}-2.5)$	1		
$12C(05 M_{\odot}V/\Lambda)$	nauno	Disque (K-2,3)	1		
C(93  MeV/A)	natC		2		

Tableau 4.1 : Dimensions des cibles irradiées

## 4.2.2 Brides

La bride sert à deux objectifs : fixer la cible et maintenir le vide dans la ligne de faisceau. Sa forme, sa taille et son épaisseur doivent répondre à deux critères : mécanique et thermique. La figure 4.7 présente l'ensemble cible/bride utilisé dans une de nos expériences. Dans nos expériences, l'épaisseur des brides variait entre 0,3 cm et 1,6 cm. Les brides sont fabriquées soit en acier soit en aluminium.



Figure 4.7 : Ensemble cible/bride utilisé dans une expérience dans les campagnes TTNY au GANIL

# 5. Mesure du spectre de neutrons par la méthode d'activation

# 5.1 Dispositif de mesure par activation

Le dispositif entier est illustré dans la figure 5.1. Dans les sections suivantes, chacun des composants du dispositif d'irradiation est présenté.



Figure 5.1 : Dispositif de mesure de neutrons par activation

# 5.1.1 Feuilles d'activation

Des feuilles de différents éléments sont utilisées pour détecter les neutrons avec des réactions d'activation à seuil. La taille des feuilles est de 2,5\*2,5 cm<sup>2</sup> avec une épaisseur de 0,1 cm (cf. figure 5.2).



Figure 5.2 : Photo d'une feuille d'activation

Les feuilles sont placées à deux positions : 10 cm et 15 cm de la cible. À chaque position, différentes feuilles sont empilées ensemble (cf. figure 5.1). Les feuilles se composent des matériaux de haute pureté (meilleure que 99%). La majorité des feuilles sont fabriquées par l'entreprise GoodFellow (In, Al, Fe, Nb, Ni, Co, Bi et Ta). Par ailleurs, certaines feuilles sont préparées dans l'atelier du GANIL (Au, Cu, Al, Ni, Nb). La masse de chaque feuille est mesurée par une balance numérique avec une incertitude de 10<sup>-4</sup> g.

Par ailleurs, en fonction de la durée de vie des radio-isotopes produits par les réactions d'activation, les feuilles sont réutilisées pendant plusieurs expériences. L'activité de chaque feuille est produite par plusieurs expériences. C'est pourquoi, la gestion des feuilles est très importante. Un inventaire des feuilles a été réalisé afin d'assurer la traçabilité de l'utilisation de chacune des feuilles.

## 5.1.2 Support des feuilles (Plateau)

Les feuilles sont mises à différentes positions de la cible (distance, angle) sur un support en aluminium que l'on appelle « plateau ». Le plateau a la forme d'un disque (rayon : 30 cm ; épaisseur : 1 cm). Une partie du plateau est coupée pour laisser passer la ligne de faisceau et la bride (cf. figure 5.3). Plusieurs trous sont creusés dans le plateau afin de fixer des feuilles d'activation.



### Figure 5.3 : Conception du plateau

Le poids du plateau étant faible, sa manipulation est donc facile et la pression mécanique sur la ligne de faisceau est également négligeable. Par ailleurs, parce que l'Aluminium est un élément assez léger, les voies de réaction d'activation neutronique produisent essentiellement des radio-isotopes de courtes durées ce qui limite les contraints de radioprotection liées à la manipulation des matériaux après irradiation.

## 5.1.3 Écran pour arrêter des particules chargées

Les réactions nucléaires générées par des ions lourds produisent non seulement des neutrons mais aussi des particules chargées. Les particules chargées peuvent produire les mêmes radio-isotopes que ceux d'intérêt pour l'activation neutronique. La figure 5.4 montre à titre d'exemple les courbes de section efficace de production de l'isotope <sup>200</sup>Bi sur une feuille de <sup>209</sup>Bi par différentes particules. On trouve que les sections efficaces de production par les particules chargées (proton et deuton) sont comparables avec celles par neutrons rapides.



Figure 5.4 : Section efficace de production de <sup>200</sup>Bi sur du <sup>209</sup>Bi. Les sections efficaces sont extraites de la bibliothèque TENDL-2017.

Il est impossible expérimentalement de séparer la contribution des particules chargées de celle des neutrons. La seule méthode d'élimination de ces contributions est d'arrêter ou de limiter le flux des particules chargées avant qu'elles atteignent les feuilles d'activation. Dans les expériences où l'énergie du faisceau est faible ( $E_{faisceau} \leq ~10$  MeV/nucléon), la majorité des particules chargées est arrêté dans la cible/bride. Le flux des particules chargées vues par les feuilles d'activation reste négligeable. Cela n'est pas le cas dans les réactions de haute énergie où les particules chargées traversent facilement l'ensemble cible/bride. C'est pourquoi dans ces expériences, pour arrêter des particules chargées, des écrans en cuivre et en acier sont placés entre la cible et les feuilles d'activation selon la configuration suivante (cf. figure 5.5) :

- Écran cylindrique collé sur la bride (Métaux : Cu, Rayon : 2 cm, Épaisseur 1,2 cm).
- Écran rectangulaire placé devant les feuilles d'activation (Métaux : Acier, 2,5\*2,5 cm<sup>2</sup>, Épaisseur 1,5 cm).

Plus le nombre d'écran utilisé est grand, plus les effets secondaires (atténuation, diffusion) du spectre de neutrons est. L'optimisation du nombre d'écran est donc nécessaire. À des angles avants ( $\theta \le 60^{\circ}$ ) et pour des expériences les plus haute en énergie ( $^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})$  deux écrans sont utilisés pour arrêter les particules chargées, tandis que pour les autres cas seul l'écran cylindrique en cuivre suffit.



Figure 5.5 : Écran en cuivre et en acier

Dans chaque expérience, en fonction des spectres en énergie des particules chargées estimées par le calcul, le nombre d'écrans utilisés est optimisé. Le tableau 5.1 montre l'énergie maximale  $E_{max}$  des particules chargées arrêtées par le dispositif d'irradiation (cible, bride) et les écrans avant d'atteindre la position d'une feuille à 0° en fonction de l'expérience. Le calcul est fait avec le programme SRIM [Ziegler-10]. Les particules plus énergétiques qu' $E_{max}$  ne sont pas arrêtées avant d'atteindre les feuilles d'activation. Néanmoins, elles perdent une fraction importante de leurs énergies, ce qui rend leurs impacts sur l'activation négligeable.

Fxnérience	E <sub>max</sub> (MeV)					
Experience	Proton	Deuton	Triton	<sup>3</sup> He	Alpha	
<sup>24</sup> Mg(4,6 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	55	75	90	195	220	
<sup>208</sup> Pb(6,25 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	115	155	180	400	450	
<sup>78</sup> Kr(10,5 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	55	75	90	195	220	
<sup>36</sup> S(12 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	115	155	180	400	450	
<sup>32</sup> S(50 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	105	145	170	380	430	
<sup>58</sup> Ni(74,5 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Nb	175	230	275	620	700	
<sup>12</sup> C(95 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Nb	165	220	260	590	650	
<sup>12</sup> C(95 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> C	155	210	245	550	620	

Tableau 5.1 :  $E_{max}$  des particules chargées vues par des feuilles d'activation à  $0^{\circ}$ 

## 5.1.4 Détecteurs HPGe

Les isotopes formés par l'activation neutronique décroissent par le mode béta en émettant en même temps des  $\gamma$ . La mesure commence directement après la période d'irradiation afin d'observer les isotopes de courtes durées de vie. La spectrométrie  $\gamma$  de chaque feuille d'activation est effectuée hors-ligne avec deux détecteurs HPGe coaxiaux dont l'efficacité relative est respectivement 20 % et 40 %. Les signaux de deux détecteurs HPGe sont traités avec les électroniques standards NIM (amplificateur et module de convertisseur analogique-numérique). Pour chaque mesure de spectrométrie  $\gamma$ , un spectre monodimensionnel énergétique de 4096 canaux est obtenu. Ce spectre couvre un intervalle d'énergie de 0 keV jusqu'à environ 2300 keV. Le seuil électronique se situe autour de 50 keV.

Le logiciel Interwinner et Gamma Vision est utilisé pour enregistrer des spectres  $\gamma$  ainsi que d'autres informations concernant le début, la durée et le temps mort de chaque mesure. Ces logiciels permettent également de convertir les données de mesure en fichier texte ASCII pour les analyses hors-ligne.

L'efficacité de détection joue un rôle important en mesure nucléaire en général et en spectroscopie  $\gamma$  en particulier. Elle définit le rapport entre le nombre de  $\gamma$  détectés et celui des  $\gamma$  émis par la source. Dans notre travail, l'efficacité de détection est à la fois mesurée et calculée. Les mesures sont effectuées avec quatre sources ponctuelles de calibration (<sup>133</sup>Ba, <sup>152</sup>Eu, <sup>137</sup>Cs et <sup>60</sup>Co). L'énergie des quatre sources radioactives couvrent une gamme d'énergie de 121 keV-1408 keV. L'incertitude sur l'activité des sources de calibration est de moins de 2 %. La mesure d'efficacité a été effectuée à plusieurs distances entre la source et le détecteur (1 cm, 3 cm, 5 cm et 10 cm).

L'efficacité de détection est également simulée avec le code de transport Geant4 de la version 10.01.p02 [Agostinelli-03], [Allison-06] et [Allison-16]. Le module G4RadioactiveDecayPhysics est utilisé pour simuler la décroissance des isotopes afin d'estimer les effets de somme où plusieurs  $\gamma$  arrivent en même temps au détecteur. L'interaction électromagnétique des  $\gamma$  ainsi que des particules secondaires comme l'électron et le positron est simulé par la liste physique G4EMStandardPhysics.

La géométrie des détecteurs Germanium joue un rôle important concernant la simulation de l'efficacité. L'efficacité de détection est en effet très sensible à la variation de la géométrie des détecteurs. Cependant, avec les données de géométries fournies par le fabriquant, les efficacités simulées ne sont pas en accord avec les valeurs expérimentales. On suppose qu'il y ait une différence entre la géométrie conçue et la géométrie réelle des détecteurs après fabrication.

La géométrie des détecteurs est donc ajustée dans la simulation afin de reproduire les efficacités expérimentales. Les modifications concernent la distance entre le cristal Germanium et le capot du détecteur ainsi que l'épaisseur des zones mortes comme illustré dans le tableau 5.2 et la figure 5.6.



Figure 5.6 : Différences dimensions du détecteur HPGe

Tableau 5.2 : Différences dim	ensions du détecteur HPGe
-------------------------------	---------------------------

Dimension	Taille conçue	Taille ajustée	Taille conçue	Taille ajustée
	(cm)	(cm)	(cm)	( <b>cm</b> )
	Détec	teur 1	Détecteur 2	
А	5,871	E+00	5,85]	E+00
В	3,921	E+00	7,841	E+00
С	1,031	E+00	0,98	E+00
D	2,671	E+00	6,57	E+00
Е	5,00	E-01	5,00E-01	
F	9,401	E+00	1,05E+01	
G	2,00E-01 4,00E-01		3,00E-01	5,00E-01
Н	3,00	E-03	3,00E-03	
Ι	1,00	E-01	1,00E-01	
J	8,00	8,00E-01		E-01
K	8,00E-03		8,00E-03	
L	1,00E-01		1,00	E-01
М	7,00E-03	1,40E-1	7,00E-03	1,30E-1
N	3,00E-05		3,00	E-05

Le rapport entre les efficacités mesurées et celles simulées avec la nouvelle géométrie est présenté dans le tableau 5.3. Globalement, exceptée pour Eu-152, les efficacités simulées à toutes les distances avec trois sources Ba-133, Cs-137 et Co-60 sont en bon accord avec les mesures. Pour la mesure à 1 cm du détecteur, la différence entre le calcul et la mesure est à environ 6 %. Elle est de 5 % pour 3, 5 et 10 cm. L'incertitude propre  $\sigma_{\epsilon-simu}$  du modèle de géométrie de deux détecteurs simulés est donc considérée égale à 6 %. Cette incertitude est due à l'incertitude sur la géométrie simulée des détecteurs.

Détecteur	Source	Energie	Eff <sub>mesurée</sub> Eff <sub>simulée</sub>			
		(keV)	1 cm	3 cm	5 cm	10 cm
	Ba-133	302,85	1,00	1,04	1,01	1,03
	<b>Du</b> 100	356,01	1,00	1,05	1,05	1,03
		121,78	0,97	1,00	1,02	1,02
		344,28	0,94	1,00	0,99	1,00
	Eu-152	778,90	0,96	0,99	0,97	0,98
GE20		964,08	0,97	1,00	1,02	1,00
		1112,08	0,99	1,02	1,02	1,02
		1408,01	0,96	0,96	1,01	0,99
	Cs-137	661,66	0,97	1,02	1,01	X
	Co-60	1173,49	1,00	1,02	1,03	1,01
		1332,49	0,95	1,03	0,99	1,00
	Ba-133	302,85	0,98	1,03	0,99	0,99
	Da-155	356,01	1,04	1,03	1,02	1,02
	GF40	121,78	0,96	0,97	0,99	1,04
GE40		344,28	1,01	0,99	1,00	1,01
Eu-152	778,90	0,99	0,98	1,00	1,02	
		964,08	1,06	1,03	1,00	1,00
		1112,08	1,06	1,04	1,03	1,00
		1408,01	1,01	1,01	1,00	0,99

Tableau 5.3 : Rapport entre les efficacités mesurées et simulées

Cs-137	661,66	1,05	1,03	1,04	Х
Co-60	1173,49	1,00	0,99	0,97	0,98
	1332,49	0,98	0,99	0,99	0,98

Avec la géométrie ajustée des deux détecteurs, les efficacités correspondant à chaque feuille d'activation sont calculées en fonction de quatre paramètres de chaque mesure :

- Taille de la feuille d'activation,
- Composition isotopique du matériau composant la feuille d'activation,
- > La décroissance de l'isotope d'intérêt ou à défaut l'énergie du  $\gamma$  d'intérêt,
- Distance entre la feuille et le détecteur.

La décroissance de l'isotope d'intérêt est simulée avec le module G4RadioactiveDecayPhysics du Geant4. La liste des isotopes d'intérêt est présentée dans la section 5.2.1.1. La décroissance de l'isotope influence l'efficacité de détection par ce que l'on appelle l'effet de somme des  $\gamma$  émis dans une cascade.

Pour les isotopes lourds, par exemple Bi, Au, Ta la correction de l'effet de somme lié à la transition cascade n'est pas possible parce que les schémas de décroissance de ces isotopes implémentés dans Geant4 s'avèrent inexacts. À titre d'exemple, l'intensité d'émission du  $\gamma$  de 984,0 keV du <sup>204</sup>Bi donnée par le site de NNDC est de 59,0 % tandis que celui de Geant4 est à seulement 11,1 %. Dans ces cas, les efficacités sont simulées avec des  $\gamma$  de même énergie que ceux émis par les isotopes d'intérêt. Les efficacités absolues calculées varient entre 0,4 % et 11,0 %.

Pendant la mesure réelle, due à la manipulation manuelle, la position de la feuille varie autour l'axe du détecteur. Afin d'estimer l'influence sur l'efficacité, la variation considérée de la distance autour de l'axe est de 0,5 cm pour le détecteur 1 et 1,0 cm pour le détecteur 2. Cette variation est due à la configuration de la position de mesure pour chaque détecteur (avec fixation pour le détecteur 1 et sans fixation pour le détecteur 2).

L'effet maximal de la variation de la position sur l'efficacité,  $\sigma_{\epsilon\text{-position}}$ , selon la simulation Geant4 est de 2 % pour le détecteur 1 et 7 % pour le détecteur 2.

L'incertitude finale de l'efficacité des feuilles est exprimée selon la formule suivante :

$$\sigma_{\varepsilon-total} = \sqrt{\sigma_{\varepsilon-simu}^2 + \sigma_{\varepsilon-pos}^2}$$

Le tableau 5.4 montre que plus la feuille est proche du détecteur plus l'effet dû à la variation de sa position sur l'efficacité est important. Elle peut atteindre 9 % pour le détecteur GE40 à 1 cm.

Détecteur	Distance	σε-total-relative (%)
	1	6,32
1	3	6,18
	5	6,08
	10	6,08
	1	9,22
2	3	7,81
	5	6,72
	10	6,08

Tableau 5.4 : Incertitude globale pour chaque distance de mesure

## 5.2 Méthode expérimentale

## 5.2.1 Réactions à seuil utilisées

Comme ce qui est indiqué dans le chapitre 2, chaque réaction induite par les neutrons est sensible à une gamme d'énergie de neutron donnée. Pour ce présent travail, les réactions à seuil sélectionnées pour détecter les neutrons répondent aux critères suivants :

- ▶ Les réactions couvrent la gamme d'énergie de neutrons produits dans l'expérience,
- Les sections efficaces sont présentes dans les librairies de données nucléaires et sont suffisamment élevées pour produire une activité mesurable (à partir d'environ 1 Bq) par les détecteurs disponibles,
- Les mesures de sections efficaces sont disponibles pour chaque réaction utilisée afin d'évaluer les courbes de sections efficaces fournies par des librairies de données nucléaires,
- > Les isotopes produits sont mesurables (la demi-vie n'est ni trop courte ni trop longue, les raies  $\gamma$  sont dans le domaine d'énergie mesurable par les détecteurs HPGe),
- > Les éléments sont bien disponibles sur le marché avec une bonne pureté.

Le tableau 5.5 montre la liste des éléments utilisés pour nos expériences. Les réactions sont sélectionnées en suivant les critères cités ci-dessus et en s'inspirant des expériences similaires dans la littérature [Pauwels-00-a,b], [Abe-07], [Lhersonneau-07,09,13], [Pyeon-08] et [Luciano-12].

Tableau 5.5 : Liste des réactions à seuil utilisées dans cette thèse. Les seuils de réactions sont issus de la librairie EAF-2010 pour les moins de 60 MeV et TENDL-2017 pour les plus de 60 MeV. Les données concernant les demi-vies, l'énergie et l'intensité des rayons- $\gamma$  émis par les produits de réactions sont issues du site de NNDC.

Élément	Réaction	Seuil (MeV)	<b>T</b> <sup>1</sup> / <sub>2</sub>	Ε <sub>γ</sub> (keV)	Ι <sub>γ</sub> (%)
In	<sup>115</sup> In(n,n') <sup>115m</sup> In	0,3	4,5 h	336,2	45,8
Fe	<sup>56</sup> Fe(n,p) <sup>56</sup> Mn	3,0	2,6 h	846,8	98,9
Al	$^{27}\mathrm{Al}(\mathrm{n},\alpha)^{24}\mathrm{Na}$	5,0	15,0 h	1368,6	100,0
Nb	$^{93}$ Nb(n,2n) $^{92m}$ Nb	8,9	10,2 j	934,5	99,0
Ni	<sup>58</sup> Ni(n,2n) <sup>57</sup> Ni	12,4	35,6 h	1377,6	81,7
Со	<sup>59</sup> Co(n,3n) <sup>57</sup> Co	19,4	271,8 ј	122,1	85,6
Au	$^{197}$ Au(n,4n) $^{194}$ Au	23,2	38,0 h	328,5	61,0
Та	<sup>181</sup> Ta(n,6n) <sup>176</sup> Ta	38,0	8,1 h	1159,0	25,0
	<sup>209</sup> Bi(n,4n) <sup>206</sup> Bi	22,6	6,2 j	803,1	99,0
	<sup>209</sup> Bi(n,5n) <sup>205</sup> Bi	29,6	15,3 j	703,4	31,0
	<sup>209</sup> Bi(n,6n) <sup>204</sup> Bi	38,1	11,2 h	984,0	59,0
Bi	<sup>209</sup> Bi(n,7n) <sup>203</sup> Bi	45,4	11,8 h	825,2	14,6
	<sup>209</sup> Bi(n,8n) <sup>202</sup> Bi	54,2	1,7 h	960,7	99,0
	<sup>209</sup> Bi(n,9n) <sup>201</sup> Bi	61,7	108,0 m	629,1	24,0
	<sup>209</sup> Bi(n,10n) <sup>200</sup> Bi	70,9	36,4 m	1026,5	100,0

### 5.2.2 Analyse du spectre $\gamma$

#### 5.2.2.1 Mesure d'activité

Les spectres de  $\gamma$  mesurés avec les détecteurs HPGe sont gérés et analysés avec une routine programmée à partir de la bibliothèque ROOT [Brun-97].

À cause de la contribution des  $\gamma$  du bruit de fond émis par les différents isotopes présents dans la feuille d'activation irradiée, seule la raie  $\gamma$  du plus haut taux d'embranchement est analysée pour chaque isotope d'intérêt.

Tout d'abord, le bruit de fond ambiant  $c(E)_{ambiant}$  mesuré hors ligne est soustrait du spectre mesuré pour chaque canal d'énergie  $g(E)_{mesure}$ .

$$g(E) = g(E)_{mesure} - c(E)_{ambiant}$$

Les détecteurs HPGe utilisés dans nos expériences n'ont jamais été exposés à d'autres sources de rayonnements que les  $\gamma$  et  $\beta$ . Les dommages induits sur le cristal Germanium dus à l'irradiation par les neutrons et les particules chargées sont donc négligeables. La collection de

charges produites par l'interaction des  $\gamma$  dans les détecteurs Germanium est considérée comme en bon état.

Dans la région autour du pic  $\gamma$ , selon l'observation dans des spectres  $\gamma$  expérimentaux, le bruit de fond Compton peut être considéré comme étant linéaire. Les pics de  $\gamma$  sont donc ajustés en utilisant seulement une fonction gaussienne sur un fond linéaire.

$$g(E) = \frac{S}{\sqrt{2\pi}\sigma_g} * \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{E-E_0}{\sigma_g}\right)^2\right) + a * E + b$$

Où *S*,  $E_0$  et  $\sigma_g$  sont respectivement l'aire, l'énergie moyenne et l'écart standard de la distribution du pic  $\gamma$ . *a* et *b* sont des paramètres du bruit de fond linéaire Compton autour du pic.

La méthode d'ajustement log likelihood est utilisée pour ajuster les pics. En outre, l'incertitude du pic est estimée avec l'algorithme MINOS [James-94]. L'information de l'aire du pic S et de l'incertitude associée est obtenue directement après la procédure de l'ajustement.

Par ailleurs, afin d'estimer l'incertitude systématique due à l'évaluation du bruit de fond Compton, chaque pic est ajusté avec quatre différents intervalles d'énergie de 4  $\sigma_g$  jusqu'à 10  $\sigma_g$  autour du centre du pic.  $\sigma_g$  est l'écart standard obtenu par le premier ajustement avec un intervalle d'énergie de ± 20 canal ou de ± 10 canal autour de la position d'énergie théorique du pic. L'aire moyenne du pic ainsi que son incertitude sont donc calculées selon les deux formules ci-dessous, inspirées de la thèse de [Bouzomita-Zran-15].

$$< S >= \frac{S_{4\sigma} + S_{6\sigma} + S_{8\sigma} + S_{10\sigma}}{4}$$
  
$$\sigma_{~~} = < S > \sqrt{\left(\frac{S_{max} - S_{min}}{< S >}\right)^{2} + \left(\frac{\sigma_{S_{4\sigma}} + \sigma_{S_{6\sigma}} + \sigma_{S_{8\sigma}} + \sigma_{S_{10\sigma}}}{4 < S >}\right)^{2}}~~$$

Où  $\langle S \rangle$  est l'aire moyenne du pic,  $S_{x\sigma}$  est l'aire du pic à un intervalle d'ajustement et  $S_{max}$  and  $S_{min}$  sont respectivement les aires maximale et minimale obtenues parmi les différents intervalles d'ajustement.

L'incertitude finale de l'aire du pic varie d'environ 1 % et peut atteindre jusqu'à 30 %. Cette incertitude dépend de plusieurs facteurs tels que le nombre de coups dans le pic, la forme du pic et du fond Compton autour du pic.

L'aire du pic est corrigée par le temps mort d'acquisition en prenant en compte le rapport entre le temps réel et le temps net de chaque mesure donnée par les programmes InterWinner et Gamma Vision. Le temps mort est typiquement autour de quelques pourcents. Cependant, dans les expériences de haute énergie, le spectre  $\gamma$  des éléments lourds (Ta, Bi et Au) peut présenter un temps mort jusqu'à 30 % pour les mesures effectuées juste après la fin de l'irradiation à cause de l'activité importante des isotopes produits.

$$S_{r\acute{e}elle} = < S > \frac{t_{r\acute{e}el}}{t_{net}}$$

Où  $S_{réelle}$  est l'aire réelle du pic,  $t_{réel}$  est le temps réel de toute la mesure et  $t_{net}$  est la durée nette où l'acquisition fonctionne.

L'activité de l'isotope à la fin d'irradiation est calculée selon la formule ci-dessous.

$$A = \frac{S_{r\acute{e}elle}\lambda}{I_{\gamma}\varepsilon_{\gamma}(e^{-\lambda t_{attente}} - e^{-\lambda(t_{attente} + t_{r\acute{e}el})})}$$

Où  $\lambda$  est la constante de décroissance de l'isotope d'intérêt,  $I_{\gamma}$  est le taux d'embranchement du  $\gamma$  analysé,  $\epsilon_{\gamma}$  est l'efficacité de détection et t<sub>attente</sub> est le temps entre la fin d'irradiation et le début de la mesure.

L'activité de chaque feuille est mesurée plusieurs fois dans l'un ou l'autre des deux détecteurs et pour différentes distances entre le détecteur et la feuille. L'activité finale et son incertitude sont obtenues en calculant la moyenne pondérée de toutes les activités mesurées. Le poids de chaque mesure est proportionnel à l'inverse du carré de sa propre incertitude. Les activités mesurées se trouvent dans l'intervalle d'environ 1 Bq jusqu'à quelques milliers Bq.

L'incertitude  $\sigma_A$  de l'activité est largement dominée par l'incertitude des aires de pics et des efficacités de détection. Elle varie d'environ 6 % pour les isotopes produits par les réactions à bas seuil et peut atteindre jusqu'à 30 % pour les isotopes produits par les réactions à haut seuil dont les statistiques sont beaucoup moins importantes.

## 5.2.2.2 Contribution des états métastables

Les réactions à seuil peuplent à la fois des états métastables et des états fondamentaux des isotopes générés. Les états métastables peuvent avoir une durée de vie très courte ou très longues par rapport à l'état fondamental. Dans le premier cas, on considère que tous les états métastables ont décru vers l'état fondamental au moment de la mesure. Dans le deuxième cas, on mesure directement les  $\gamma$  émis par les états métastables de très longue vie.

Cependant, il existe, dans notre cas, deux isotopes d'activation où les demi-vies des deux états sont comparables :  ${}^{209}\text{Bi}(n,9n){}^{201}\text{Bi}$  et  ${}^{209}\text{Bi}(n,10n){}^{200}\text{Bi}$ .

# 5.2.2.2.1 <sup>209</sup>Bi(n,9n)<sup>201</sup>Bi (Seuil=61,7 MeV)

Le noyau <sup>201</sup>Bi existe dans deux états, fondamental et métastable :

- > <sup>201m</sup>Bi : T<sub>1/2</sub>=57,5 m
- > <sup>201g</sup>Bi : T<sub>1/2</sub>=103 m

Selon le site NNDC, la raie  $\gamma$  d'intérêt du <sup>201g</sup>Bi (E $\gamma$ =629,1 keV ; I $\gamma$ =24%) n'est pas émise par l'état métastable <sup>201m</sup>Bi. Par ailleurs, d'après la figure 5.7 et le tableau 5.6, l'état métastable <sup>201m</sup>Bi a moins de 8,6 % de chance de décroître selon le mode de conversion interne pour revenir à l'état fondamental <sup>201g</sup>Bi. Par ailleurs, selon la libraire TENDL-2017, la probabilité de production de l'état métastable <sup>201m</sup>Bi varie entre 4,9 %-15,3 % en fonction de l'énergie du neutron. Prenant en compte le mode de décroissance du <sup>201m</sup>Bi et son de taux production, on considère que la production du <sup>200g</sup>Bi par la décroissance du <sup>201m</sup>Bi est considérée comme étant négligeable. Le <sup>201g</sup>Bi est considéré comme étant complètement issu de la réaction directe (n,9n) sans qu'il soit alimenté par la décroissance de l'état métastable <sup>201m</sup>Bi.



Figure 5.7 : Niveau des états du noyau <sup>201</sup>Bi [NNDC-18]

Tableau 5.6 : Extrait des informations du noyau <sup>201</sup>Bi [NNDC-18]

Eniveau (keV)	T1/2
0	103  m  3 % ec $\beta$ + = 100
846.35 18	57.5 m 21 % $\alpha \approx 0.3$ % ec > 91.1 % IT $\leq 8.6$

## 5.2.2.2.2 <sup>209</sup>Bi(n,10n)<sup>200</sup>Bi (Seuil=70,9 MeV)

<sup>200</sup>Bi existe dans deux états, fondamental et métastable d'une demi-vie très proche :

- ➢ <sup>200m</sup>Bi : T<sub>0,5</sub>=31 m
- > <sup>200g</sup>Bi : T<sub>0,5</sub>=36,4 m

La raie  $\gamma$  d'intérêt de 1026,5 keV est émise par les deux états (<sup>200g</sup>Bi - I $\gamma$ =100 % ; <sup>200m</sup>Bi - I $\gamma$ =96 %) (cf. figure 5.7 et tableau 5.8). Par ailleurs, l'état métastable <sup>200m</sup>Bi ne décroît pas vers l'état fondamental <sup>200g</sup>Bi. Cet état fondamental <sup>200g</sup>Bi est produit donc complètement par la réaction directe (n,10n). C'est pourquoi, on considère qu'il est raisonnable de considérer que la raie  $\gamma$  d'intérêt de 1026,5 keV est émise par un noyau dont la durée de vie est la moyenne des deux états : <sup>200m</sup>Bi et <sup>200g</sup>Bi.



Figure 5.8 : Niveau des états du noyau <sup>201</sup>Bi [NNDC-18]

Tableau 5.7 : Extrait des informations du noyau <sup>201</sup>Bi [NNDC-18]

Elevel (keV)	T1/2
0	36.4  m  5 % ec $\beta$ + = 100
0+X	31  m  2 % ec $\beta$ + $\leq 100$

La durée de vie de ce noyau est calculée selon les raisonnements qui suivent : Considérant l'équation d'activation :

$$A_{200mBi}(t) = R_{200Bi} * (1 - B_{r200gBi}) * [1 - \exp(-\lambda_{200mBi}t)]$$
$$A_{200gBi}(t) = R_{200Bi} * B_{r200gBi} * [1 - \exp(-\lambda_{200gBi}t])$$

Dont :

N<sub>200gBi</sub>(t) : Nombre de noyaux du <sup>200g</sup>Bi en fonction du temps d'irradiation,

R<sub>200Bi-total</sub> : Taux de production total de tous les états du <sup>200</sup>Bi,

 $B_{r200gBi}$ : Taux de production de l'état fondamental <sup>200g</sup>Bi. Il est considéré comme étant la moyenne des taux donnés par la bibliothèque TENDL-2017 pour les neutrons d'énergie de moins de 100 MeV.

 $\lambda_{200gBi}$ : Constance de décroissance radioactive de l'état fondamental du <sup>200g</sup>Bi.

La demi-vie des deux états de <sup>200</sup>Bi est à environ 30 minutes, la saturation est rapidement atteinte pendant l'irradiation, les deux équations ci-dessus peuvent être simplifiées ainsi :

$$A_{200mBi}sat = R_{200Bi} * (1 - B_{r200gBi})$$
$$A_{200gBi}sat = R_{200Bi} * B_{r200gBi}$$

Selon la définition de la constance de décroissance radioactive :

$$\lambda = \frac{A}{N}$$

On a donc :

$$\lambda_{moyenne-200Bi} = \frac{\frac{R_{200Bi} * (1 - B_{r200gBi}) + R_{200Bi} * B_{r200gBi}}{\frac{R_{200Bi} * (1 - B_{r200gBi})}{\lambda_{200mBi}} + \frac{R_{200Bi} * B_{r200gBi}}{\lambda_{200gBi}}$$
$$\lambda_{moyenne-200Bi} = \frac{\lambda_{200mBi} * \lambda_{200gBi}}{(1 - B_{r200gBi}) * \lambda_{200gBi} + B_{r200gBi} * \lambda_{200mBi}}$$

L'incertitude sur  $\lambda_{moyenne-200Bi}$  est calculée en appliquant la loi de propagation de l'incertitude sur l'équation ci-dessus. On a donc  $\lambda_{moyenne-200Bi}=3,67*10^{-4}\pm2,67*10^{-5}$ .

### 5.2.3 Calcul du taux de réaction

Pendant la période d'irradiation, l'intensité du faisceau de l'ion incident fluctue. La fluctuation du profil du faisceau est suivie et mesurée pendant l'expérience. Les détails sur la mesure de l'intensité sont présentés dans le chapitre 4.

On rappelle que la production des isotopes d'activation est influencée non seulement par la valeur absolue de l'intensité du faisceau mais également de sa variation. En s'inspirant de la thèse de [Malkiewicz-09], on peut exprimer l'activité à la fin d'irradiation d'un isotope selon la formule ci-dessous :

$$A_{i} = \sum_{k=1}^{k=k_{\max}} \left[1 - e^{-\lambda_{i}(t_{k}-t_{k-1})}\right] e^{-\lambda_{i}(t_{k}\max-t_{k})} N_{A_{i}} \int_{E=0}^{E=E_{\max}} \phi_{neutron}(E) \sigma_{i}(E)$$
  
avec 
$$\phi_{neutron}(E) = I_{k}P_{neutron}(E)$$

Où

Ai est l'activité de l'isotope i à la fin d'irradiation,

 $\lambda_i$  est la constante de décroissance radioactive,

k est l'indice de l'intervalle de temps,  $k_{\text{max}}$  est le dernier intervalle de temps (la fin de l'irradiation).

 $t_k$  est le temps associé au déclenchement de l'intervalle de temps k.  $t_{kmax}$  est donc le déclenchement du dernier intervalle de temps  $k_{max}$ .

 $\phi_{neutron}$  est le flux de neutrons à la surface de la feuille.

 $\sigma_i(E)$  est la section efficace de production de l'isotope i en fonction de l'énergie E du neutron.

N<sub>Ai</sub> est le nombre d'atomes dans la feuille où l'isotope i est produit.

Ik est l'intensité moyennée du faisceau incident pendant l'intervalle de temps k (en pps).

 $P_{neutron}(E)$  est la probabilité qu'un neutron d'une énergie E émis arrive aux surfaces de la feuille d'activation. Cette probabilité est normalisée à un ion incident.

Le taux de production d'un isotope i est calculé selon la formule :

$$R_{i}\left(\frac{r\acute{e}action}{ion\ incident}\right) = N_{A_{i}}\int_{E=0}^{E=E_{max}} P_{neutron}(E)\sigma_{i}(E)$$

Le facteur f<sub>conversion-i</sub> est défini comme étant le rapport entre le taux de production et l'activité à la fin de l'irradiation.

$$f_{conversion-i} = \frac{R_i}{A_i} = \frac{1}{\sum_{k=1}^{k=k_{\max}} [1 - e^{-\lambda_i (t_k - t_{k-1})}] e^{-\lambda_i (t_{k\max} - t_k)} I_k}$$

Selon la formule ci-dessus, le rapport entre le taux de réaction et l'activité mesurée dépend seulement de la variation de l'intensité du faisceau et de la constante radioactive de chaque isotope. Il ne dépend pas de la section efficace et du nombre d'atomes dans la feuille. L'incertitude de  $f_{conversion-i}$  est dérivée des incertitudes de mesure de l'intensité du faisceau, du temps d'irradiation et du constant radioactif de chaque isotope. Sa valeur varie, en fonction de l'expérience, de 1 % à 20 %. Elle est dominée par l'incertitude de la mesure de l'intensité du faisceau.

Les taux de réaction R<sub>i</sub> sont donc déterminés selon la formule suivante :

$$R_i \left( \frac{r \acute{e}action}{ion \ incident} \right) = A_i * f_{conversion-i}$$

Les taux de réaction peuvent être également normalisés à une distance de référence et à la masse de la feuille d'activation :

$$R_{exp-i}\left(\frac{r\acute{e}action}{g*ion\ incident}\right) = \frac{R_i}{m_{feuille}} * \left(\frac{d_{exp}}{d_{nor}}\right)^2$$

Où

R<sub>exp-i</sub>: Le taux de réaction normalisé de la réaction i,

M<sub>feuille</sub>: La masse de la feuille d'activation (en gramme),

d<sub>exp</sub>: La distance entre la feuille et la cible (en cm),

d<sub>nor</sub>: La distance de référence (en cm),

L'incertitude finale  $\sigma_{Rexp-i}$  est calculée par propagation à partir de toutes les incertitudes composantes. Elle est dominée par l'incertitude du taux de réaction R<sub>i</sub>. Elle atteint 10 % pour les réactions à bas seuils et peut aller jusqu'à 40 % pour les isotopes produits seulement par les neutrons de haute énergie.

#### 5.2.4 Méthode de déconvolution

#### 5.2.4.1 Algorithme de déconvolution

La mesure d'activation est une mesure intégrale. En effet, les taux de réaction de chaque isotope sont produits par la convolution entre le spectre de neutron incident avec les fonctions de sections efficaces de chacune des réactions. Le calcul de déconvolution est donc nécessaire pour reconstruire le spectre de neutrons initial. Dans le cadre de cette thèse, un programme de déconvolution est développé. L'algorithme de ce programme est décrit dans la figure 5.9. Ce programme se compose de l'algorithme SAND-II [McElroy-69] et [Zsolnay-82] et de quelques techniques de Monte-Carlo pour la génération des données d'entrées, la correction de spectres et l'estimation des incertitudes (cf. figure 5.9).



Figure 5.9: L'algorithme de déconvolution développé dans ce travail. Les informations d'entrée sont marquées en vert, la partie Monte-Carlo en jaune, algorithme SAND-II en bleu, autres opérations en orange et le résultat final est en blanc.

Le but de l'algorithme SAND-II est de réaliser des calculs itératifs pour reconstruire un spectre de neutrons. Ce spectre, une fois convolué avec les sections efficaces de réactions,

permet de reproduire les taux de réaction expérimentaux. La méthode SAND-II a besoin d'un spectre de neutrons hypothétique que l'on appelle « spectre d'essai » comme donnée d'entrée. Avec cette donnée, les spectres successifs de neutrons sont générés par l'algorithme SAND-II jusqu'à la convergence entre les taux de réaction calculés avec ce spectre et les taux mesurés soit atteinte ou jusqu'à ce qu'un nombre prédéfini d'itérations soit atteint.

Selon les procédures de l'algorithme SAND-II expliquées dans les références [McElroy-69] et [Zsolnay-82], les deux spectres de neutrons successifs, désignés par l'indice k et k+1, sont connectés selon les formules ci-dessous :

$$\phi_i^{k+1} = \phi_i^k \exp(C_i^k)$$

$$C_{j}^{k} = \frac{\sum_{i=1}^{i=i_{max}} W_{ij}^{k} \ln\left(\frac{R_{exp-i}}{R_{i}^{k}}\right)}{\sum_{i=1}^{i=i_{max}} W_{ij}^{k}}$$
$$W_{ij}^{k} = \frac{R_{ij}^{k}}{R_{i}^{k}}$$
$$R_{ij}^{k} = \phi_{j}^{k} \sigma_{ij} N_{A_{i}}$$
$$R_{i}^{k} = \sum_{i=1}^{j=j_{max}} R_{ij}^{k}$$

Avec

 $\phi_i^k$ : le flux de neutron dans l'intervalle d'énergie j pour le spectre k<sup>ème</sup>,

 $C_j^k$  : le facteur de correction de l'intervalle d'énergie j pour le spectre k<sup>ème</sup>,

 $W_{ij}^{k}$ : la fonction de pondération de l'intervalle d'énergie j de la réaction i pour le spectre k<sup>ème</sup>,

R<sub>exp-i</sub> : le taux de réaction évalué pour la réaction i,

 $R_{ij}^k$  : le taux de réaction calculé induit par l'intervalle d'énergie j du spectre  $k^{\grave{e}me}$  pour la réaction i,

 $R_i^k$ : le taux total de réaction calculé avec le spectre k<sup>ème</sup> pour la réaction i,

 $\sigma_{ij}$ : section efficace à l'intervalle d'énergie j de la réaction i.

 $N_{A_i}$  :est le nombre d'atomes par une unité de masse dans la feuille dans laquelle la réaction i a eu lieu.

Les intervalles d'énergie j couvrent une gamme d'énergies de 0 MeV à  $E_{max}$ . L'énergie  $E_{max}$  est l'énergie maximale du spectre de neutrons attendu. C'est également la limite énergétique du calcul de déconvolution. Cette limite est supérieure au seuil le plus élevé des réactions d'activation neutronique observées dans l'expérience  $E_{seuil-max}$ . La valeur  $E_{max}$  est choisie de telle façon que le spectre de neutron déconvolué entre 0 MeV et  $E_{seuil-max}$  reste stable.
De plus, comme ce que montre la figure 5.9, à chaque itération de l'algorithme SAND-II, le spectre de neutron  $\phi_j^k$  est évalué. La procédure d'évaluation consiste à vérifier si la condition  $\phi_{j-\min} \leq \phi_j^k \leq \phi_{j-\max}$  est respectée et si le rapport entre les deux spectres de neutrons entre deux étapes d'itérations successives  $\phi_j^{k\pm 1}$  est dans une limite raisonnable.

Si le spectre  $\phi_j^k$  ne répond pas à ces deux conditions il est remplacé par un spectre généré automatiquement entre les deux valeurs  $\phi_{j-min}$  et  $\phi_{j-max}$ . Ces deux valeurs ainsi que la limite pour le rapport entre les spectres  $\phi_{j\pm 1}^k$  sont obtenus à la base des mesures similaires disponibles dans la littérature ou à défaut avec les spectres calculés par des codes de transport. Le rapport  $\phi_{j-max}/\phi_{j-min}$  est choisi de telle manière que l'impact sur le résultat final ne soit pas signifiant et que la convergence du processus d'itération puisse être atteinte. Plus le rapport  $\phi_{j-max}/\phi_{j-min}$  est grand moins important le biais est.

La génération Monte-Carlo est faite en utilisant le générateur de nombres pseudoaléatoires Mersenne Twister [Matsumoto-98] de haute qualité.

Afin de réduire les fluctuations pendant les processus d'itération, le spectre est traité par une technique de lissage mathématique après chaque itération. Pour cela, on utilise la méthode moyenne glissante sans pondération [O'Haver-18].

La figure 5.9 montre également que le spectre initial est généré par un calcul de Monte-Carlo et que le calcul SAND-II est répété jusqu'à ce qu'un nombre donné de « générations » soit atteint. Le but de la génération Monte-Carlo du spectre initial est de minimiser le biais induit par un choix spécifique du spectre initial sur le résultat final de l'algorithme SAND-II. De plus, pour calculer l'incertitude pour chaque intervalle d'énergie du spectre final, les valeurs d'entrées de R<sub>i</sub> et de  $\sigma_{ij}$  de chaque génération sont générées aléatoirement selon une distribution gaussienne autour de leurs valeurs moyennes selon la méthode de [Maeda-11] :

$$R_i = < R_i > \pm dR_i$$
  
$$\sigma_{ij} = < \sigma_{ij} > \pm d\sigma_{ij}$$

Chaque génération de SAND-II donne un spectre  $\phi_{j-m}$ . Avec ces spectres, le résultat final de la déconvolution  $\phi_{j-final}$  ainsi que son incertitude sont déterminés par les formules :

$$\phi_{j-final} = \sum_{m=1}^{m} \frac{\phi_{j-m}}{m_{max-1}}$$

$$\Delta \phi_{j-final} = \sqrt{\frac{1}{m_{max} - 1} \sum_{m=1}^{m=m_{max}} (\phi_{j-m} - \phi_{j-final})^2}$$

Où  $m_{max}$  est le nombre de générations. Le nombre de générations et d'itérations est choisi de telle façon que le résultat final soit stable dans les barres d'incertitudes.

On convolue ensuite le résultat final de la déconvolution  $\phi_{j-final}$  avec les sections efficaces pour calculer les taux de réactions que l'on appelle  $R_{reconstitué-i}$ . On détermine le facteur f(i):

$$f(i) = \frac{R_{reconsitué-i} - R_{exp-i}}{R_{exp-i}} (\%)$$

Le résultat final de la déconvolution  $\phi_{j-final}$  est adopté définitivement seulement dans le cas où f(i) est faible et se retrouve dans les barres d'incertitude, c'est-à-dire le spectre de déconvolution réussit à bien reproduire les taux de réactions mesurées. C'est le cas pour toutes les mesures d'activation avec les faisceaux de basse énergie (E<sub>faisceau</sub> $\leq \sim 10$  MeV/nucléon)

Dans les expériences de haute énergie où le spectre de neutrons est très large en énergie, la déconvolution n'arrive pas parfois à reproduire les taux de réactions expérimentales. C'est pourquoi, on applique un ajustement empirique pour corriger le spectre de déconvolution. Cette correction consiste à modifier le spectre pour reproduire mieux les taux de réactions expérimentales. L'effet de la correction de f(i) est présenté dans le tableau 5.8 où la correction empirique réduit en global f(i).

Tableau	5.8. L	e facteur	r f(i) e	n fonction	de	réaction	à	seuil	pour	les	deux	mesures	à	60°	de
l'expéri	ence <sup>32</sup>	S(50 Me	V/nucl	éon)+ <sup>nat</sup> Cu	l										

Réaction	Seuil (MeV)	f(i)					
		Sans ajustement	Avec ajustement				
<sup>115</sup> In(n,n') <sup>115m</sup> In	0,3	-0,3	-24,8				
<sup>56</sup> Fe(n,p) <sup>56</sup> Mn	3,0	23,9	-1,4				
$^{27}\mathrm{Al}(\mathrm{n},\alpha)^{24}\mathrm{Na}$	5,0	40,1	11,3				
$^{93}$ Nb(n,2n) $^{92m}$ Nb	8,9	33,8	7,8				
<sup>58</sup> Ni(n,2n) <sup>57</sup> Ni	12,4	34,7	10,8				
<sup>59</sup> Co(n,3n) <sup>57</sup> Co	19,4	-12,3	26,8				
<sup>181</sup> Ta(n,6n) <sup>176</sup> Ta	38,0	12,7	-3,7				
<sup>209</sup> Bi(n,4n) <sup>206</sup> Bi	22,6	32,6	10,9				
<sup>209</sup> Bi(n,5n) <sup>205</sup> Bi	29,6	-10,2	-24,1				
<sup>209</sup> Bi(n,6n) <sup>204</sup> Bi	38,1	56,0	31,3				
<sup>209</sup> Bi(n,7n) <sup>203</sup> Bi	45,4	1,0	-18,3				
<sup>209</sup> Bi(n,8n) <sup>202</sup> Bi	54,2	46,0	1,8				

### 5.2.4.2 Interface GanUnfold

L'algorithme de déconvolution développé dans cette thèse a été relié à une interface graphique nommée GanUnfold (GANIL Unfolding program). Cette interface a été développée afin de faciliter le calcul de déconvolution. Une capture d'écran de l'interface de ce programme est illustrée dans la figure 5.10. Ce programme a été construit avec le langage objet-orienté Java par Pierre Lefebvre, étudiant en Licence 3 Informatique de l'Université de Caen Normandie sous la direction de Manssour Fadil. Les données d'entrée telles que le nombre d'itérations et le nombre de générations peuvent être remplies itérativement sur l'interface et/ou téléchargées d'un fichier texte externe. Les résultats de sortie sont exportés dans un fichier ASCII et illustrés également sous forme d'une image PostScript (cf. figure 5.10).



Figure 5.10: L'interface du programme GanUnfold

Le temps de calcul de la déconvolution est assez long car l'alogrithme SAND-II est répété sur un nombre important d'itérations et de générations (10000 en moyenne) (quelques heures pour un calcul). En outre, les calculs des générations sont indépendants les uns des autres. GanUnfold partage donc les calculs en plusieurs cœurs de CPU et combine le résultat final à la fin. Cette technique permet de réduire le temps de calcul (facteur 4 pour l'ordinateur utilisé dans ce travail).

## 5.2.4.3 Choix des sections efficaces

Un des ingrédients importants de la déconvolution sont les sections efficaces des réactions à seuil. Cependant, il existe toujours des différences (forme, flux) plus ou moins importantes en fonction de chaque réaction à seuil entre les sections efficaces des librairies et celles des mesures. La qualité du résultat final de la déconvolution dépend donc de celle des sections efficaces utilisées.

Concernant la partie basse énergie ( $E_{neutron} < 20$  MeV), les différentes librairies d'évaluation de sections efficaces convergent généralement et sont en très bon accord avec les sections efficaces mesurées. L'incertitude sur chaque section efficace est systématiquement évaluée. Cet accord est compréhensible car cette gamme d'énergie a fait l'objet des études systématiques pour les applications liées à l'énergie nucléaire où le spectre de neutrons de fission ne dépasse pas 20 MeV.

À des énergies plus élevées (20 MeV $\leq$ E<sub>neutron</sub> $\leq$ 60 MeV), la différence entre les libraires de sections efficaces ainsi qu'entre ces librairies et les mesures expérimentales peut se révéler très importante. Dans cette gamme d'énergies, il y a seulement la librairie EAF-2010 qui évalue systématiquement des incertitudes de chaque courbe de section efficace.

Toutefois, à plus haute énergie ( $E_{neutron}$ >60 MeV), l'écart entre les librairies est les mesures expérimentales devient très significatif. De plus, il n'existe pas d'évaluations des incertitudes par ces librairies.

Le choix de sections efficaces des réactions utilisés pour la déconvolution est fait en fonction de l'énergie maximale,  $E_{max}$  attendue pour chaque expérience.

Dans ce qui va suivre, on présente le choix de librairies de sections efficaces utilisées en fonction du spectre de neutron incident à mesurer.

#### 5.2.4.3.1 Réactions à seuils de moins de 20 MeV

Pour les réactions à seuil de moins de 20 MeV, la librairie EAF-2010 est utilisée jusqu'à sa limite supérieure de l'énergie de neutrons (60 MeV). Pour les expériences où  $E_{max}$  attendue est supérieure à 60 MeV, on utilise la forme de la librairie TENDL-2017. La valeur absolue est normalisée par rapport à la librairie EAF-2010 (cf. figure 5.11).



Figure 5.11 : Section efficace de la réaction <sup>93</sup>Nb(n,2n)<sup>92m</sup>Nb

La librairie EAF-2010 propose une évaluation de l'incertitude de chaque réaction jusqu'à 60 MeV. Au-delà de cette énergie, on constate que :

- La section efficace au-delà de 60 MeV pour ces réactions à bas seuil est négligeable par rapport à celle de la partie de plus basse énergie (cf. figure 5.11),
- Le flux de neutrons à basse énergie observée est en général nettement plus élevé que celui de haute énergie.

On peut donc considérer la valeur de l'incertitude à 60 MeV comme incertitude pour toute la partie la plus énergétique, l'impact sur le résultat restant négligeable.

#### 5.2.4.3.2 Réactions à seuils de plus de 20 MeV

Dans les expériences avec les faisceaux de basse énergie inférieure à 10 MeV/nucléon, on utilise la librairie EAF-2010. La déconvolution est faite jusqu'à sa limite supérieure en énergie (60 MeV). Ce choix est justifié par le fait que dans ces expériences, le seuil de réaction le plus élevé mesuré est à 38 MeV.

Pour les réactions avec les faisceaux de plus haute énergie, le seuil le plus élevé observé est à 70,9 MeV ( $^{209}$ Bi(n,10n) $^{200}$ Bi). La déconvolution est donc faite jusqu'à E<sub>max</sub>=100-200 MeV. Puisque la différence (forme, valeur absolue) entre les librairies de sections efficaces est importante à cette énergie, il n'est pas raisonnable de normaliser les différentes librairies avec celle d'EAF-2010 comme ce qui est fait pour les réactions à bas seuils.

Le choix de librairie de sections efficaces pour les expériences de haute énergie s'effectue donc réaction par réaction. Pour chaque réaction, les courbes de sections efficaces de plusieurs librairies sont comparées avec les mesures expérimentales disponibles. On retient la courbe qui reproduit le mieux les points expérimentaux (forme et valeur absolue). Cependant, les librairies n'évaluent pas l'incertitude associée pour ces réactions.

On peut considérer une méthode simple pour estimer l'incertitude sur la section efficace selon la formule suivante :

$$\frac{d\sigma_{lib}}{\sigma_{lib}} = \frac{\sum_{i=0}^{i=N} \left| \frac{\sigma_{lib}(E_i) - \sigma_{exp}(E_i)}{\sigma_{lib}(E_i)} \right|}{N}$$

Où : N est le nombre de mesures expérimentales disponibles ; i est l'indice de chaque mesure expérimentale ;  $E_i$  est l'énergie du neutron incident de la mesure i ;  $\sigma_{lib}(E_i)$  est la section efficace de librairie à l'énergie  $E_i$ ;  $\sigma_{lib}(E_i)$  est la section efficace expérimentale à l'énergie  $E_i$ .

Il en résulte que la courbe de la section efficace couvre, dans la plage de l'incertitude ainsi estimée, les points expérimentaux (cf. figure 5.12 comme exemple).



Figure 5.12 : Section efficace de la réaction <sup>209</sup>Bi(n,8n) <sup>203</sup>Bi

Les sections efficaces expérimentales des réactions à haut seuil sont disponibles seulement jusqu'à environ 150 MeV pour les cas du Bi et de l'Au et jusqu'à 85 MeV pour les cas du Co et du Ta. L'estimation des incertitudes pour la plage de très haute énergie s'avère impossible. Cependant, il est à remarquer que l'activation neutronique par les neutrons de très haute énergie reste limitée pour deux raisons:

- La contribution des neutrons de très haute énergie au flux total n'est normalement pas significative.
- La section efficace diminue nettement en fonction de l'énergie.

Dans le cas de la réaction  $^{197}$ Au(n,4n) $^{194}$ Au (Seuil=23 MeV), seule la librairie EAF-2010 peut reproduire des points de mesure au-dessous de 60 MeV. On utilise ainsi cette librairie jusqu'à 60 MeV et on normalise TENDL-2017 pour les énergies au-delà de 60 MeV. L'incertitude de la courbe est calculée comme la méthode citée ci-dessous dans cette section 5.2.4.3.2. La figure 5.13 montre que ce choix de courbes de sections efficaces peut bien reproduire les points de mesures avec une incertitude acceptable (23%).



Figure 5.13 : Section efficace de la réaction <sup>197</sup>Au(n,4n)<sup>194</sup>Au

Les réactions au plus haut seuil du Bismuth observées dans nos expériences sont  ${}^{209}\text{Bi}(n,9n){}^{201}\text{Bi}$  et  ${}^{209}\text{Bi}(n,10n){}^{200}\text{Bi}$ . Pour ces deux réactions, seule la librairie TENDL-2017 propose des courbes de sections efficaces. Cependant, comme ce que montre la figure 5.14, la forme de la courbe de TENDL est très différente des points de mesure.



Figure 5.14 : Section efficace de la réaction <sup>209</sup>Bi(n,9n) <sup>203</sup>Bi

En utilisant la méthode de calcul d'incertitude de section efficace citée ci-dessus, l'incertitude correspondante de TENDL-2017 est respectivement 187 % et 116 % pour les deux réactions  $^{209}$ Bi(n,9n) $^{201}$ Bi et  $^{209}$ Bi(n,10n) $^{200}$ Bi

Ces incertitudes sont trop importantes pour être employées dans les calculs de déconvolution. C'est pourquoi, au lieu de prendre la courbe de section efficace de TENDL-2017, une fonction polynôme est ajustée pour reproduire les points expérimentaux (cf. figure 5.14). On calcule la moyenne des incertitudes expérimentales. On la prend comme celle de la fonction de sections efficaces ajustées. On considère l'énergie minimale des points expérimentaux (76 MeV et 86 MeV) comme les seuils de la fonction de section efficace pour les deux réactions <sup>209</sup>Bi(n,9n)<sup>201</sup>Bi et <sup>209</sup>Bi(n,10n)<sup>200</sup>Bi respectivement. Ces seuils sont supérieurs aux vrais seuils de ces deux réactions calculées à partir des masses nucléaires. Cependant, les sections efficaces entre les vrais seuils et ces deux seuils utilisés sont très faibles. On peut donc en négliger les impacts.

En outre, puisque seul l'état de <sup>201g</sup>Bi nous intéresse comme ce qui a été présenté dans la section 5.2.3.2.1, la courbe de section efficace de la réaction <sup>209</sup>Bi(n,9n)<sup>201</sup>Bi est normalisée par un taux de peuplement de l'état <sup>201g</sup>Bi. Ce taux adopté est la moyenne des taux fournis par TENDL-2017 pour les énergies de neutrons inférieures à 100 MeV (88,2 %). Selon notre connaissance, il n'y a pas à ce jour des mesures expérimentales de ce taux. L'incertitude sur celui fourni par TENDL-2017 ne peut donc pas être évaluée dans ce travail.

#### 5.2.4.4 Validation de la méthode de déconvolution

G. Lhersonneau a mesuré le spectre de neutrons émis par l'interaction d'un faisceau de <sup>2</sup>H de 40 MeV sur une cible de <sup>nat</sup>C [Lhersonneau-09] avec la méthode d'activation des feuilles. Cette mesure sert à produire des données neutroniques utiles pour la conception de SPIRAL2 Phase 2. La technique de déconvolution de Lhersonneau est différente de la nôtre. Les détails de cette technique sont présentés dans [Lhersonneau-07].

Avec les taux de réactions d'activation neutronique mesurés par [Lhersonneau-09] comme données d'entrées, on réalise des calculs de déconvolution avec notre programme GanUnfold et compare ensuite avec les spectres de [Lhesonneau-09]. Le résultat est présenté dans la figure 5.18.



Figure 5.18 Spectre de neutron <sup>2</sup>H (20 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C.

On trouve que les deux spectres déconvolués sont en bon accord pour tous les angles d'émissions. La différence entre les deux spectres est de moins de 20 %. On remarque cependant un écart entre les deux méthodes concernant la partie de la plus haute énergie (~40 MeV neutron) pour les deux angles  $0^{\circ}$  et  $10^{\circ}$ . Cette différence peut être expliquée par deux raisons principales :

- Les taux de réactions présentés dans [Lhersonneau-09] ne sont munis que des incertitudes statistiques de comptage. L'incertitude du spectre déconvolué par GanUnfold ne peut donc pas représenter l'incertitude totale du spectre de Lhersonneau.
- La réaction à seuil le plus élevé observé est <sup>206</sup>Bi(n,4n)<sup>204</sup>Bi (Seuil=23 MeV). En raison de la forme du spectre et celle de la fonction de la section efficace, la contribution des neutrons à l'énergie d'autour de 40 MeV sur l'activité totale de <sup>204</sup>Bi est négligeable. La déconvolution (que ce soit par notre méthode ou par celle de Lhersonneau) connait des limites pour bien prédire le flux de neutrons dans cet intervalle d'énergie.

Finalement, on peut conclure que notre méthode de déconvolution présentée dans ce chapitre est validée. Afin d'éviter les problèmes concernant le spectre de neutrons à très haute énergie comme ce que l'on vient de voir, on considère désormais de façon conservatoire l'énergie maximale en énergie du spectre déconvolué comme étant le plus haut seuil de réaction observé.

# 6. Mesure de neutrons par la technique du temps de vol

## 6.1 Dispositif de mesure par temps de vol

#### 6.1.1 Détecteur de neutrons

Chaque détecteur de neutrons se compose d'une cellule remplie du liquide scintillateur. Dans ce travail les liquides scintillateurs sont de type BC-501A/NE-213 et EJ-309. Les cellules sont cylindriques (5,08 cm ou 12,7 cm de diamètre et 5,08 cm d'épaisseur) (cf. figure 6.1).

Le liquide scintillateur est composé de molécules organiques  $(C_xH_y)$ . Les processus d'interaction du neutron sont la diffusion élastique sur de l'H et le C et les réactions sur le C. On peut citer quelques voies de réactions importantes sur le C :  $(n,n'\gamma)$ , (n,np),  $(n,\alpha)$  et  $(n,3\alpha)$ . Les particules chargées et les  $\gamma$  produits excitent ensuite les molécules organiques. Ces molécules se retrouvent donc dans des états excités et se désexcitent en émettant de la lumière.

Les cellules du liquide scintillateur sont couvertes d'une coque en aluminium. Elles sont couplées à un tube photomultiplicateur qui collecte et convertit la lumière en photoélectrons et ensuite en signal électronique. Dans nos expériences, les photomultiplicateurs utilisés sont de type XP2020, XP4512B, Photonics et Scionix. La haute tension appliquée sur les photomultiplicateurs est de l'ordre de 600 V-2000 V. La forme du signal dépend non seulement de l'énergie de la particule incidente mais également de sa nature (masse, charge). Cette propriété permet de discriminer l'interaction de plusieurs particules et rayonnements comme ce qui sera présenté dans la section 6.2.2.



Figure 6.1 : Principe de fonctionnement d'un détecteur scintillateur.

## 6.1.2 Détecteur véto de particules chargées

Comme écrit dans les chapitres précédents, les réactions nucléaires d'ions lourds produisent non seulement des neutrons secondaires mais également des particules chargées. Dans les expériences de moyenne et de haute énergie (50 MeV/nucléon $\leq E_{faisceau} \leq 95$  MeV/nucléon), les particules chargées sont assez énergétiques pour s'échapper du système cible/bride et arriver au niveau des détecteurs de neutrons. Il est alors impossible de distinguer le signal d'une particule chargée produite par l'interaction d'un neutron avec le liquide scintillateur du signal d'une particule chargée provenant directement de la cible irradiée. Cet

effet est d'autant plus important que l'efficacité de détection de neutrons dans le liquide scintillant est plus faible que celle des particules chargées.

Dans la partie des mesures d'activation, les écrans métalliques (Cu, Acier) sont placés entre la cible et les feuilles d'activation pour arrêter les particules chargées. Cependant, ils ne sont pas nécessaires pour la mesure du temps de vol. Les détecteurs véto de particules chargées sont en mesure d'éliminer ces contributions.

Un détecteur véto se présente sous forme d'une feuille mince de scintillateur plastique de type NE102A (3 mm d'épaisseur, nommé SYREP) [Tilquin-95]. Cette feuille est couplée à un photomultiplicateur de type XP3020. Un détecteur véto est mis devant chaque détecteur de neutrons (cf. figure 6.2). Son principe de fonctionnement est identique à celui des détecteurs de neutrons. Grace à leur faible épaisseur de scintillateur, les détecteurs véto sont très peu sensibles aux neutrons et aux  $\gamma$ . Ils sont quasi-exclusivement sensibles aux particules chargées. Ainsi, il est possible d'éliminer la contribution de ces dernières en réalisant des mesures en anti-coïncidence avec les détecteurs de neutrons. La figure 6.2 présente le couplage entre les deux. Dans l'expérience, le bloc de Pb n'est pas collé devant le détecteur de neutrons, comme ce qui est présentée par la conception de [Tilquin-95].



Figure 6.2 : Couplage des détecteurs de véto et du temps de vol en conception (vue du dessus [Tilquin-95]) et durant l'expérience TTNY (vue de dessous).

Dans nos expériences, les détecteurs de neutrons et les détecteurs véto sont placés à différents angles par rapport à l'axe du faisceau (cf. figure 6.3). Le tableau 6.1 présente la position de chacun des détecteurs en fonction de l'expérience.

	Détecteur									
Expérience	(Angle, Distance)									
	1	2	3	4	5	6				
$^{24}Mg(4.6 MeV/nucléon) + ^{nat}Cu$	15°	28°	60°	75°	100°	116°				
Nig(4,0 MeV/nucleon)+ Cu	1,7 m	2,3 m	1,5 m	1,1 m	1,1 m	1,1 m				
<sup>208</sup> Pb(6,25 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	Pas de détecteur									
$78 \mathbf{V}_{r}(10.5 \mathbf{M}_{0} \mathbf{V}/\mathbf{n}_{0}) + \frac{natCu}{2}$	15°	28°	60°	75°	100°	116°				
KI(10,5 Mev/nucleon)+ Cu	1,7 m	2,3 m	1,5 m	1,1 m	1,1 m	1,1 m				
$^{36}$ S(12 MeV/nucleon)+ $^{nat}$ Cu	26°	30°	Pas de détecteur							
S(12 We V/Indecom)+ Cu	2,2 m	4,7 m								
<sup>32</sup> S(50 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu										
<sup>58</sup> Ni(74,5 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Nb	15°	28°	60°	75°	100°	116°				
<sup>12</sup> C(95 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Nb	1,7 m	2,3 m	1,5 m	1,1 m	1,1 m	1,1 m				
<sup>12</sup> C(95 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> C										

Tableau 6.1 : Angle et distance correspondant à chaque détecteur de neutrons



Figure 6.3 : Configuration des détecteurs de neutrons et véto dans une expérience

# 6.1.3 Électronique FASTER

La mesure du temps de vol a été réalisée avec le système d'électronique Fast Acquisition System for nuclEar Research (FASTER) développé au Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen (LPC Caen). L'électronique FASTER a été utilisée dans plusieurs expériences dans différents laboratoires : GANIL, LPC Caen, IPNO, CERN... Cette section est une synthèse de la description du système électronique FASTER (réf. [Étasse-18], [Sénoville-13]).

Le système FASTER se compose d'un ensemble de cartes électroniques constituées chacune d'une carte mère et de deux cartes filles. Les cartes filles utilisées pour les détecteurs neutrons sont de type CARAS et peuvent chacune traiter les signaux de deux détecteurs. Les cartes CARAS sont basées sur un convertisseur analogique-numérique d'une fréquence de 500 MHz et d'une résolution de 12 bits. Cela veut dire que le numériseur échantillonne le signal toutes les 2 ns. Le signal est donc marqué en temps (time stamped) avec une précision de temps de 2 ns. Avec la résolution de 12 bits, les signaux analogiques sont numérisés dans 2<sup>12</sup>=4096 canaux dans une gamme de tension de 2,4 V. La numérisation permet de réaliser les mêmes traitements de signaux que l'électronique analogique classique mais de manière mathématique dans un composant reprogrammable appelé FPGA (Field Programmable Gate Array). Sur une carte fille CARAS, un module de mesure est programmé : le module QDC-TDC (Convertisseur numérique des charges et du temps) pour les mesures des détecteurs neutrons et le module RF (Radiofréquence) pour les mesures de la radiofréquence du cyclotron.

Les modules de mesures permettent plusieurs opérations :

- Réglage de la gamme dynamique,
- Réglage de la polarité,
- Restauration de la ligne de base,
- ➢ Filtres (passe bas, passe haut),
- Discriminateur (à seuil ou à fraction constant (CFD)),
- ➢ Oscilloscope,
- Comptage d'évènements,
- > Mesure d'intégration des charges et de temps précise (Module QDC-TDC)
- Mesure précise de période et de phase de cyclotron (Module RF).

Avant chaque expérience, la calibration de chaque détecteur est nécessaire pour garantir la qualité des mesures. Les détails de la méthode de calibration pour des expériences de mesure du temps de vol de neutrons sont présentés dans [Sénoville-13]. La figure 6.4 présente le diagramme de fonctionnement des deux modules QDC-TDC et RF de FASTER.



Figure 6.4 : Diagramme des deux modules QDC-TDC et RF du FASTER [Étasse-18].

Il y a quatre sortes de données disponibles :

- Données d'oscilloscope,
- Compteur d'évènements,
- > Données de mesure de charge et de temps de déclenchement du discriminateur,
- Données de la mesure de la radiofréquence du cyclotron.

Dans la mesure du temps de vol, seules les deux dernières données sont utilisées pour l'analyse.

Le discriminateur de chaque mesure de QDC-TDC est de type discriminateur à fraction constante (CFD) pour toutes les expériences. Le CFD est conçu pour déclencher lorsque le signal franchit une certaine fraction de son amplitude [Knoll-10]. Il fournit ainsi le même instant de déclenchement pour des signaux de même forme et d'amplitudes différentes. Ce discriminateur présente une meilleure résolution en temps que le discriminateur à seuil.

L'algorithme de CFD de Faster calcule l'instant du franchissement du zéro avec une précision théorique du temps de 7,8 ps. Elle est purement la résolution du calcul et est donc bien meilleure que la résolution de temps réelle. Compte tenu des différents facteurs (résolution du détecteur, du paquet de faisceau...), la résolution de temps totale s'élève en réalité à environ 0,5 ns.

Concernant les données de charge, quatre valeurs de l'intégration de charges collectées sur différentes portes de temps peuvent être obtenues. Quatre charges sont mesurées pour les détecteurs de neutrons :  $Q_{totale}$  est l'intégration du signal sur une longue porte couvrant la totalité du signal,  $Q_{quasi-totale}$  est l'intégration de charge couvrant la quasi-totalité du signal d'entrée (le front de montée n'est pas intégré),  $Q_{pic}$  intègre la charge autour du maximum du signal pour donner une mesure de l'amplitude du signal et  $Q_{lente}$  intègre la partie lente du signal. La durée

de chaque porte varie en fonction de l'expérience. À titre d'exemple, pour le détecteur à 30° de l'expérience  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Nb$ , si le signal de déclenchement de CFD est la référence de temps (t=0 ns) les durées des portes sont respectivement [-15 ns; 485 ns], [-6 ns; 485 ns], [-4 ns; 0 ns] et [20 ns; 485 ns] pour les portes Q<sub>totale</sub>, Q<sub>quasi-totale</sub>, Q<sub>pic</sub> et Q<sub>lente</sub> (Les bornes de ces portes sont données par rapport à l'instant de déclenchement du discriminateur) (cf. figure 6.8).

Les données de mesure de la radiofréquence du cyclotron se composent de la période précise et de l'instant de déclenchement avec la précision du temps supplémentaire de 7,8 ps. Ces données peuvent être fournies sans ou avec le traitement d'une boucle à verrouillage de phase (Phase-Locked Loop PLL). Dans ce travail, le PLL est systématiquement utilisé pour nettoyer les données du bruit électronique.

Les données des cartes filles CARAS sont envoyées à une carte mère de type SYROCO. La carte mère rassemble et synchronise en temps réel les mesures des cartes filles et les envoie à l'acquisition.

L'ordinateur d'acquisition fonctionne sur le système d'exploitation Ubuntu 14.04. Il utilise le programme d'acquisition FASTER version 2.0. Ce programme permet de configurer les paramètres de mesure de chacun des éléments des cartes électroniques. Toutes les données sont sauvegardées dans un format binaire spécifique de FASTER. Les données sont également envoyées au programme RHB (Root Histogram Builder) développé en parallèle de FASTER, qui permet de visualiser les données des mesures pour les analyses en ligne. Les fichiers binaires de données sont ensuite convertis dans un format ROOT avec les outils de la librairie fasterac. Les analyses hors-ligne sont faites donc avec les fichiers ROOT.

## 6.2 Méthode d'analyse

#### 6.2.1 Réponse en lumière

L'efficacité de détection dépend sensiblement du seuil de lumière  $Q_{seuil}$  imposé pour chaque détecteur [Borne-98]. C'est pourquoi la calibration de la réponse en lumière (relation entre l'énergie déposée et la charge collectée par le photomultiplicateur) est importante pour le calcul des efficacités de détection.

Dans le scintillateur liquide, en raison de l'effet d'inhibition de la scintillation (« quenching »), la quantité de lumière produite dépend non seulement de l'énergie déposée mais également du type de la particule incidente. L'unité de référence de la quantité de lumière produite est keVee (keV équivalent électron – la quantité de lumière produite par le dépôt d'énergie d'un électron de 1 keV). Pour un même dépôt d'énergie, plus la particule incidente est lourde moins la quantité de lumière produite est importante [Sénoville-13], [Satoh-06]. Si l'on souhaite convertir l'énergie équivalente électron en une énergie déposée par un proton (et vice versa), on peut utiliser la formule de Cecil (présentée dans [Cecil-79]) pour le liquide scintillateur BC501A/NE213.

Plusieurs raies  $\gamma$  émises par les sources naturelles et artificielles sont utilisées pour calibrer la réponse en lumière de chaque détecteur. Les raies  $\gamma$  émises par les sources de calibrationd <sup>207</sup>Bi, <sup>137</sup>Cs, <sup>22</sup>Na et AmBe et celles de <sup>40</sup>K et <sup>208</sup>Tl présentes dans l'environnement naturel couvrent une gamme d'énergie de [59 keV, 4439 keV]. Les  $\gamma$  de ces énergies interagissent essentiellement par la diffusion Compton.

À basse énergie (59 keV provenant de la décroissance de <sup>241</sup>Am dans la source d'Ambe), la probabilité d'avoir des interactions multiples (Compton+Compton+photoélectrique...) conduisant à l'absorption totale de l'énergie du  $\gamma$  est grande. On observe donc un pic correspondant à l'énergie totale du  $\gamma$ . Ce pic est ajusté par une fonction gaussienne sur un fond linéaire (cf. figure 6.5).



Figure 6.5 : Ajustement d'un pic de 59 keV d'AmBe (Détecteur à  $30^{\circ}$ ; Expérience <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon+<sup>nat</sup>Cu)).

Aux énergies élevées, le pic de photo-absorption n'étant pas visible, seul le front Compton permet d'indiquer la présence des  $\gamma$  des sources de calibrations. À cause de la réponse du scintillateur et des diffusions multiplies dans le scintillateur, la forme du front Compton est dégradée (cf. figure 6.6). Le front Compton observé dans l'expérience se compose d'un pic de diffusion, d'un plateau et d'un bruit de fond.

Selon le travail de [Pestel-2015], le front Compton peut être ajusté par une fonction lorentzienne pour la partie inférieure à la position de la hauteur maximale du pic de diffusion et une gaussienne pour la partie supérieure à cette hauteur. Le plateau est ajusté par une fonction de Fermi et une exponentielle.

$$f_{Compton}(Q < p_2) = \frac{p_1}{(Q - p_2)^2 + p_3^2} + \frac{p_4}{1 + \exp(\frac{Q - p_5}{p_6})} + p_7 * \exp(Q * p_8)$$
$$f_{Compton}(Q > p_2) = \frac{p_1}{p_3^2} \left( \exp\left(\frac{Q - p_2}{p_9}\right)^2 \right) + \frac{p_4}{1 + \exp\left(\frac{Q - p_5}{p_6}\right)} + p_7 * \exp(Q * p_8)$$

Où :  $f_{Compton}(Q)$  est la fonction d'ajustement du front Compton. Les paramètres d'ajustement sont  $p_1$ ,  $p_2$ ,  $p_3$ ,  $p_4$ ,  $p_5$ ,  $p_6$ ,  $p_7$ ,  $p_8$  et  $p_9$ ;  $p_2$  étant le canal correspondant à la hauteur maximale du front Compton.

Le résultat de l'ajustement d'un front Compton est illustré dans la figure 6.6. On cherche le canal dont la hauteur est à 90 % de la hauteur maximale du front Compton et qui se situe à

droite de la hauteur maximale mesurée (les croix dans la figure 6.6). Selon [Pestel-2015] et [Sénoville-13] cette position correspond à l'énergie réelle du front Compton. Dans le cas de la source de calibration de <sup>22</sup>Na, on ajoute individuellement les deux fronts Compton de 344 keV et de 1063 keV.



Figure 6.6 : Ajustement d'une front de Compton de 344 keVee du  $^{22}$ Na (Détecteur à 30° ; expérience  $^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/nucléon}+^{nat}Cu))$ .

On utilise une fonction polynôme de deuxième ordre pour ajuster les points de réponse en lumière mesurée. Cette fonction permet d'interpoler la réponse en lumière (cf. figure 6.7).

À titre d'information, la réponse en lumière pour des énergies plus élevées peut être déterminée en utilisant les muons cosmiques. Le dépôt d'énergie pour les muons cosmiques dans les scintillateurs liquides BC-501A/NE-213 au niveau de la mer est connu (1,675 MeVee/cm) [Tilquin-95]. L'énergie totale de dépôt est calculée en supposant la trajectoire des muons cosmiques perpendiculaire au sol. L'ajustement du front du dépôt d'énergie des muons cosmiques est effectué de la même façon que celui du front Compton des  $\gamma$ . Par ailleurs, le spectre des charges déposées par les protons de recul de la réaction (n,p) sur les atomes du scintillateur peut être également analysé pour fournir des réponses en lumière supplémentaires dans la partie haute charge. Les détails de cette méthode d'analyse sont décrits dans [Delarue-16]. La réponse en lumière pour des énergies élavées est utilie seulement pour le détecteur à 4,7 m de l'expérience <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu.



Figure 6.7 : Réponse en lumière du détecteur à 30° de l'expérience <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/A)+<sup>nat</sup>Cu



## 6.2.2 Discrimination neutron/ $\gamma$

Figure 6.8 : Illustration de la forme des signaux de l'interaction d'un  $\gamma$  et un neutron dans le scintillateur, pour des signaux de même charge totale.

La forme du signal obtenu lors de l'interaction entre un  $\gamma$  avec les molécules scintillantes est différente de celle d'un neutron (cf. figure 6.8). Le signal induit par un neutron décroit en

effet moins vite avec le temps que celui d'un  $\gamma$ . Cette différence de forme de signal permet la discrimination neutron/ $\gamma$ .

Pour chaque détecteur, on fait un spectre bidimensionnel dont l'axe X est  $Q_{totale}$  et l'axe Y est l'un des deux rapports  $Q_{lente}/Q_{quasi-totale}$  ou  $Q_{lente}/Q_{totale}$ . Le rapport  $Q_{lente}/Q_{totale}$  est utilisé seulement pour l'expérience <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon) + <sup>nat</sup>Cu, car la charge  $Q_{quasi-totale}$  n'était pas mesurée pour cette expérience.

La figure 6.9 montre l'exemple d'un spectre bidimensionnel pour le détecteur à  $30^{\circ}$  de l'expérience  ${}^{12}C$  (95 MeV/nucléon) +  ${}^{nat}Nb$ . Ce spectre a été corrigé des contributions des particules chargées avec l'anti-coïncidence entre le détecteur véto et le détecteur de neutrons. Les détails de l'analyse de la méthode de coïncidence sont présentés dans la section 6.2.3 suivante.

Dans la figure 6.9, on trouve que les composantes correspondantes à l'interaction des  $\gamma$  et des neutrons sont clairement visibles, ce qui permet facilement la discrimination neutron/ $\gamma$ . À chaque intervalle de Q<sub>totale</sub>, le minimum statistique du rapport Q<sub>lente</sub>/Q<sub>quasi-totale</sub> est déterminé. On ajuste le rapport Q<sub>lente</sub>/Q<sub>quasi-totale</sub> versus Q<sub>totale</sub> avec une fonction polynôme f<sub>discrimination</sub>(Qtotale). On l'utilise pour séparer les interactions des neutrons et des  $\gamma$ .

On fixe un seuil en charge  $Q_{seuil}$  au-dessous duquel les évènements enregistrés ne sont pas traités. Ce seuil est important pour la discrimination neutron/ $\gamma$  car à basse charge  $Q_{totale}$  la discrimination devient moins performante [Sénoville-13] et [Borne-98]. Ce seuil dépend nettement du détecteur ainsi que de la haute tension appliquée sur son photomultiplicateur. Il varie entre 100 keVee et quelques MeVee. En outre, le seuil  $Q_{seuil}$  sert également à éliminer le mélange de paquets concernant les neutrons de basse énergie. Ce mélange est présenté en détail dans la section 6.2.3.3 suivante.

Pour l'optimisation de la valeur  $Q_{seuil}$ , on doit prendre en compte le spectre de neutrons estimé par une expérience similaire ou par un calcul, la distance entre le détecteur et la cible, la période  $T_{periode}$  du cyclotron et la capacité de la discrimination neutron/ $\gamma$ .

Un seuil supérieur  $f_{seuil-supérieur}(Q_{totale})$  peut également être appliqué afin d'éviter la contribution du bruit de fond à la branche des évènements de neutrons. L'impact de ce seuil reste cependant négligeable. Finalement, le seuil  $Q_{seuil-\gamma}$  peut également être appliqué en fonction de la charge la plus élevée des  $\gamma$  observées.

En appliquant toutes ces conditions de séparation on sélectionne les évènements générés par l'interaction des neutrons. Ce sont ces évènements qui seront étudiés plus tard dans les spectres du temps de vol.



Figure 6.9 : Spectre bidimensionnel du rapport  $Q_{lente}/Q_{quasi-totale}$  en fonction de  $Q_{totale}$  du détecteur de neutrons à 30° de l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/A)+<sup>nat</sup>Nb.

#### 6.2.3 Reconstruction et calibration du spectre du temps de vol

#### 6.2.3.1 Reconstruction du temps de vol brut

La distribution de l'énergie cinétique des neutrons est déterminée à partir de leur temps de vol entre la cible et le détecteur. Le signal radiofréquence (RF) du cyclotron (CSS1 ou CSS2) est utilisé comme signal de déclenchement de la mesure du temps de vol  $t_{start}$ . On mesure également avec l'électronique FASTER la période de faisceau  $T_{période}$ . Le signal stop  $t_{stop}$  est généré par les détecteurs de neutrons et véto.

Cependant, afin d'éviter la saturation du transfert de données, seul une donnée de RF sur 10<sup>4</sup> ou 10<sup>5</sup> est mesurée et envoyée à l'ordinateur d'acquisition. Ce facteur de réduction ne peut pas être augmenté arbitrairement et est limité par la nécessité de maintenir une résolution en temps de vol correcte. La reconstruction est donc nécessaire afin de calculer le temps de vol brut entre la cible et le détecteur.

Le temps de vol brut t<sub>ToF-brut</sub> est calculé selon la formule ci-dessous:

$$t_{ToF-brut} = t_{stop} - (t_{start} + Plancher\left(\frac{t_{stop} - t_{start}}{T_{periode}}\right) * T_{periode})$$

où  $t_{start} + Plancher\left(\frac{t_{stop}-t_{start}}{T_{periode}}\right) * T_{periode}$  est la reconstitution de l'instant du déclenchement du signal de RF le plus proche du signal  $t_{stop}$ . L'illustration de la méthode de calcul du temps de vol est présentée dans la figure 6.10.

La différence de temps calculé ci-dessus n'est qu'un temps de vol brut car elle ne prend pas encore en compte la correction de décalage du temps. Cette correction sera présentée dans la section 6.2.3.3.



Figure 6.10 : Illustration du calcul du temps de vol

#### 6.2.3.2 Anti-coïncidence

Le premier travail à faire avant de reconstruire le spectre du temps de vol net de neutrons est d'éliminer la contribution des particules chargées. Pendant l'expérience, une fenêtre de temps de 200 ns est fixée dans le système d'acquisition FASTER. Tous les évènements de détecteurs de neutrons et de véto dont la différence de temps de déclenchement est de moins de 200 ns sont groupés dans une donnée spécifique. Les évènements présents dans les deux détecteurs dans cette fenêtre de temps sont essentiellement ceux des particules chargées.

Afin d'obtenir plus de détail, on calcule la différence de temps brut entre les déclenchements du détecteur véto et du détecteur de neutrons dans cet intervalle de 200 ns (cf. figure 6.11)  $\Delta t_{coïncidence} = t_{stop-brut-neutron} t_{stop-brut-véto}$ . La figure 6.9 montre deux pics de coïncidences et un fond plat pour les détecteurs à 30° (<sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb). L'un des deux pics vient des évènements qui ne sont pas assignés au bon signal RF.

Il existe deux pics de coïncidences car la différence de temps entre le détecteur véto et le détecteur de neutrons est brute. La correction du décalage de temps n'est pas encore réalisée. La différence de temps entre deux pics est exactement une période de faisceau (74,35 ns pour le faisceau de <sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon)). Cette différence brute permet d'éliminer les évènements en coïncidences dues aux particules chargées. Tous les évènements dont  $\Delta t_{coïncidence}$  se trouve dans la zone des deux pics sont donc enlevés de l'analyse.



Figure 6.11 : Différence de temps brut  $\Delta t_{coïncidence}$  entre les détecteurs véto et de neutron. Détecteurs à 30° (<sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb).

#### 6.2.3.3 Reconstruction du spectre net du temps de vol

Le temps de vol net d'une particule, t<sub>ToF-net</sub> entre 0 et T<sub>periode</sub> est ensuite reconstitué par :

$$t_{ToF-net} = t_{ToF-brut} - t_{decalage} - (Plancher\left(\frac{t_{ToF-brut} - t_{decalage}}{T_{periode}}\right) * T_{periode})$$

La partie  $Plancher\left(\frac{t_{ToF-brut}-t_{decalage}}{T_{periode}}\right) * T_{periode}$ ) est utilisée pour corriger les cas de

temps de vol négatif calculé par t<sub>ToF-brut</sub>-t<sub>decalage</sub>.

 $t_{decalage}$  est la différence de temps entre le temps de vol théorique d'un  $\gamma$  prompt  $t_{ToF-\gamma-theo}$  et le temps de vol mesuré  $t_{ToF-\gamma-mesure}$ :  $t_{decalage} = t_{ToF-\gamma-mesure} - t_{ToF-\gamma-theo}$ . Le temps  $t_{decalage}$  est produit par les différences de longueur de câbles et de traitement électronique.

Le résultat du spectre du temps de vol net est illustré dans la figure 6.12. On y trouve un pic  $\gamma$  prompts et un fond de  $\gamma$  ambiants et de neutrons. On rappelle que le pic de  $\gamma$  prompts vient de l'interaction directe du faisceau sur la cible.

Dans certaines acquisitions, le pic  $\gamma$  prompts est déformé. Il est doublé en deux pics plus petits avec une différence de temps d'environ 1 ns. Ce phénomène n'est pas physique pour trois raisons :

- Le faisceau est bien arrêté dans la cible,
- Les dispositifs de diagnostics du faisceau (cage de Faraday, profileur) sont enlevés avant chaque mesure,
- Le doublement n'est pas systématique.

C'est pourquoi, les acquisitions où il y a un doublement du pic  $\gamma$  prompt ne sont pas prises en compte dans l'analyse finale.



Figure 6.12 : Spectre net du temps de vol sans discrimination  $n/\gamma$ . Détecteur à 30° (<sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb).

Comme t<sub>start</sub> est déterminé avec le dernier déclenchement du signal RF du cyclotron, un neutron produit par le paquet de neutrons n avec le temps de vol réel  $t_{ToF}$  plus long que la période de radiofréquence  $T_{periode}$  sera associé avec le neutron du paquet suivant n+1 avec le temps de vol  $t_{ToF}$ - $T_{periode}$ .

Ce mélange de paquets peut être éliminé en mettant proprement un seuil de charge  $Q_{seuil}$ . La valeur optimale de  $Q_{seuil}$  doit répondre à la plus élevée des deux conditions suivantes :

- Capable d'éviter la région de basse charge où la performance de la discrimination neutron/γ n'est pas optimale.
- Capable d'éviter le mélange de neutrons de différents paquets. Dans ce cas, Q<sub>seuil</sub> correspond à la charge maximale que peut générer un neutron de temps de vol égal à la période du faisceau T<sub>période</sub>.

L'optimisation de la valeur  $Q_{seuil}$  consiste à prendre en compte le spectre de neutrons attendu, la distance entre le détecteur et la cible, la période  $T_{periode}$  du cyclotron et la capacité de la discrimination neutron/ $\gamma$ . Dans la majorité des cas, ce  $Q_{seuil}$  correspond à un neutron dont le temps de vol est inférieur à  $T_{période}$ .

Ensuite, la discrimination neutron/ $\gamma$  peut être appliquée. Le résultat est présenté dans la figure 6.13. On trouve que la composante  $\gamma$  est supprimée du spectre. Il ne reste qu'un petit pic de  $\gamma$  prompt. La composante de neutrons sélectionnés est très visible. La qualité de la discrimination neutron/ $\gamma$  est donc prouvée.



Figure 6.13 : Spectre net du temps de vol après la discrimination n/ $\gamma$ . Détecteur à 30° (<sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb).

Des neutrons diffusés dans la salle d'expérience sont détectés durant l'expérience. Par ailleurs, parce que la discrimination  $n/\gamma$  n'est pas parfaite, quelques  $\gamma$  du bruit de fond ambiant ainsi que les muons cosmiques sont aussi détectés. Comme ce qui est montré dans la figure 6.12, la région entre le pic  $\gamma$  prompt et la composante de neutron et la région située juste avant le pic de  $\gamma$  prompt sont plates. Il est donc raisonnable de les considérer comme la contribution du bruit de fond. De plus, la forme plate de ces régions indique une décorrélation par rapport à l'interaction du faisceau avec la cible. Cette composante sera supprimée du spectre du temps de vol.

Dans l'expérience <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, la distance entre la cible et les détecteurs est assez importante (2,3 m et 4,7 m). En raison de l'énergie maximale attendue pour les neutrons émis en fonction de l'expérience et de l'angle de mesure, un  $Q_{seuil}$  correspondant à la charge maximale générée par un neutron d'un  $t_{ToF-net}$  plus longue que  $T_{periode}$  peut être accepté. Dans cette expérience, il existe une contribution de neutrons avec un temps de vol plus court que le pic de  $\gamma$  prompt résiduel après la séparation neutron  $\gamma$ . Ces neutrons sont en réalité des neutrons lents issus du paquet n. Toutefois, ils sont associés au paquet n+1. Afin de corriger cet effet, leur temps de vol  $t_{ToF}$  est volontairement augmenté d'une période de faisceau  $T_{periode}$ . Pour les autres expériences de basse énergie, les détecteurs sont plus proches de la cible, le  $Q_{seuil}$  correspond donc toujours à la charge maximale d'un neutron d'un temps de vol plus court que  $T_{periode}$ .

#### 6.2.4 Calcul de l'énergie cinétique

La relation entre le temps de vol d'un neutron et son énergie cinétique est donnée par :

$$E_{neutron} = m_{neutron} c^2 \left[ \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v_{neutron}^2}{c^2}}} - 1 \right]$$

$$v_{neutron} = \frac{l}{t_{ToF-net}}$$

Où  $E_{neutron}$  est l'énergie du neutron, l est la distance de vol et  $m_{neutron}$  la masse du neutron au repos.

On utilise une transformation jacobienne de la fonction de l'énergie cinétique de neutrons pour transformer le spectre en temps de vol en un spectre en énergie. Plus de détails concernant la transformation jacobienne peut être trouvé dans [Mooney-13]. Chaque intervalle du temps de vol est donc transformé en un intervalle correspondant en énergie.

$$f(E_{neutron}) = f(t_{ToF-net}) \frac{dt_{ToF-net}}{dE_{neutron}}$$
$$= -f(t_{ToF-net}) * \frac{l * m_{neutron}^2}{c * (E_{neutron}^2 + 2 * E_{neutron} * m_{neutron})^{1,5}}$$

Où  $f(E_{neutron})$  est la fonction de distribution énergétique et  $f(t_{TOF-net})$  est la fonction de distribution de temps de vol de neutrons.

#### 6.2.5 Résolution en énergie

La résolution en énergie  $\Delta E$  est déduite de la résolution de la mesure du temps de vol et de l'incertitude de la distance de vol [Sénoville-13] et [Borne-98] :

$$\Delta E_{neutron} = E_{neutron} * \gamma(\gamma + 1) \sqrt{\left[ \left( \frac{\Delta t_{ToF-net}}{t_{ToF-net}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta l}{l} \right)^2 \right]}$$
  
avec  $\gamma = 1 + \frac{E_{neutron}}{m_{neutron} * c^2}$ 

Selon les références [Sénoville-13] et [Borne-98], la résolution du temps de vol  $\Delta t_{ToF-net}$  est considéré comme la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic de  $\gamma$  prompt. Cette largeur dépend de la résolution en temps du détecteur, du photomultiplicateur, du système électronique et de l'étalage en temps du paquet de faisceau. Elle est autour de 0,5-0,6 ns pour la plupart des mesures. Elle peut atteindre 2,6 ns pour certaines mesures d'un seul détecteur à 15° où le photomultiplicateur ne fonctionnait pas bien. L'incertitude sur la distance de vol est considérée comme étant la moitié d'épaisseur du détecteur ( $\Delta l=2,54$  cm).

La figure 6.14 présente la résolution en énergie en fonction de l'énergie de neutrons incidents pour le détecteur à 28° de l'expérience <sup>12</sup>C (95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb.  $\Delta t_{ToF-net}$  pour ce détecteur est à 0,7 ns ; la distance l est à 2,3 m. Elle montre que la résolution en énergie se dégrade lorsque l'énergie du neutron incident augmente. Elle atteint environ 25 MeV à 200 MeV.



Figure 6.14 : Résolution énergétique totale. Détecteur à 28° (<sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb).  $\Delta t_{ToF-net}$  est à 0,66 ns ; la distance l est à 2,3 m

#### 6.2.6 Efficacité de détection de neutrons

L'efficacité de détection dépend de plusieurs paramètres :

- Taille du détecteur,
- > Type de scintillateur dans le détecteur,
- Distance entre le détecteur et la cible,
- Seuil en charge Q<sub>seuil</sub>,
- Énergie du neutron incident.

On n'a pas trouvé dans la littérature des mesures expérimentales systématiques des efficacités qui correspondent aux paramètres de nos propres mesures. C'est pour cette raison que l'on utilise SCINFUL-QMD, un code développé par l'Agence Japonaise de l'Énergie Atomique (JAEA) pour le calcul d'efficacité de détection des scintillateurs [Satoh-06]. SCINFUL-QMD calcule l'efficacité de détection d'une large gamme d'énergie de neutrons incidents (0,1 MeV-3 GeV).

Ce code emploie deux méthodes de calcul différents pour deux gammes d'énergie de neutrons  $E_{neutron} < 150 \text{ MeV}$  et  $E_{neutron} > 150 \text{ MeV}$ . Pour les énergies de moins de 150 MeV, SCINFUL-QMD utilise une base de données de sections efficaces pour 11 voies de réactions neutroniques sur les noyaux de l'H et du C dans le scintillateur. À des énergies plus élevées, un modèle Dynamique Quantique Moléculaire (QMD) couplé à un modèle de désexcitation statistique basé sur le principe de Weisskopf-Ewing est utilisé. Toutefois, dans nos expériences, la majorité des neutrons mesurés a une énergie de moins de 150 MeV. L'incertitude due à l'utilisation des modèles physiques pour calculer les efficacités reste donc faible. En général dans nos expériences, l'efficacité de détection varie fortement en fonction du seuil en charge sélectionné. Elle est en générale entre quelques pourcents et une vingtaine de pourcents.

La figure 6.15 montre la comparaison du calcul d'efficacité de SCINFUL-QMD avec une mesure expérimentale de [Borne-98]. On trouve que le calcul reproduit bien l'expérience. En comparant les calculs de SCINFUL-QMD avec les autres mesures d'efficacité disponibles dans la littérature, son incertitude de calcul est estimée à 15 %.



Figure 6.15 : Comparaison entre le calcul de SCINFUL-QMD avec la mesure d'efficacité de [Borne-98]. Le scintillateur est de type BC-501A/NE-213 (Rayon=8 cm; Épaisseur=20 cm,  $Q_{seuil}=0,59$  MeVee)

Il est à noter que SCINFUL-QMD ne peut calculer l'efficacité de détection que pour les scintillateurs de type BC-501A/NE-213. Afin de calculer l'efficacité pour d'autres scintillateurs (EJ-309 placé à 120° dans nos expériences), il est nécessaire de modifier le code source du programme. Les modifications consistent à ajouter la masse volumique et le rapport des densités de l'H et du C ainsi que les courbes de productions de lumière par différentes particules dans ces scintillateurs. Ce travail est complexe et demande beaucoup de temps. C'est pourquoi, il n'a pas été effectué dans le cadre de cette thèse.

Le spectre de neutrons final est donc obtenu en normalisant le nombre de neutrons dans chaque intervalle d'énergie du f( $E_{neutron}$ ) par l'efficacité de détection  $\varepsilon$ , de l'angle solide  $\Omega_{detecteur}$ et du nombre d'ion incident N<sub>ion incident</sub> pendant la période de mesure.

$$f(E_{neutron-final}) = \frac{f(E_{neutron})}{\Omega_{detecteur} * \varepsilon * N_{ion incident}} (\frac{neutron}{sr * MeV * ion incident})$$

# 7. Méthode de simulation des réactions d'ions lourds et transport de neutrons avec des codes Monte-Carlo

# 7.1 Codes de calculs

Dans ce travail, trois codes de transports Monte-Carlo sont utilisés pour simuler les réactions nucléaires avec des ions lourds: FLUKA, PHITS et MCNP. Chaque code est sélectionné en fonction de son approche de modélisation.

# 7.1.1 FLUKA

Le code FLUktuierende KAskade (FLUKA) est un code de simulation de réactions nucléaires et de transport de particules [Ferrari-05] et [Böhlen-14]. Il est développé dans le cadre d'un accord de collaboration entre le CERN et INFN.

L'utilisateur interagit avec le code en remplissant un fichier de données d'entrée dans lequel il y a la configuration des modèles physiques, la géométrie modélisée ainsi que les observables recherchés (flux, spectres...). FLUKA peut fonctionner en parallèle avec plusieurs cœurs d'un ordinateur afin d'accélérer la convergence des calculs Monte-Carlo. Dans le calcul parallèle de FLUKA, chaque cœur est indépendant et génère son propre résultat. Le résultat définitif est obtenu en rassemblant les résultats de tous les cœurs.

L'interface graphique FLUKA Advanced Interface (FLAIR) a été développée par [Vlachoudis-09] afin de faciliter le travail de remplissage du fichier d'entrée, de l'exécution du calcul et de visualisation des résultats. FLAIR est programmé sous Python et Tkinter. On a utilisé cette interface pour toutes nos simulations avec FLUKA.

Le code FLUKA permet de simuler les réactions nucléaires et de transport d'une très large gamme de particules (60 particules en plus d'ions lourds) pour des énergies allant jusqu'à 10000 TeV/nucléon pour des ions lourds. FLUKA est utilisé pour diverses applications (radioprotection, études de dimensionnement, calcul d'activation...). Il est par ailleurs le code de transport de référence au CERN et est largement populaire au sein de la communauté de calcul européenne.

Concernant les réactions d'ions lourds, la section efficace totale est empiriquement modifiée à partir du paramétrage de Tripathi [Tripathi-96], [Tripathi-97-a], [Tripathi-97-b] et [Tripathi-99]. La phase dynamique de la réaction des ions lourds d'énergie inférieure à 100 MeV/nucléon est simulée par le modèle Boltzmann Master Equation (BME) [Cavinato-96], [Cavinato-07] et [Cerutti-06].

L'évaporation statistique est calculée en se basant sur l'approche de Weisskopf-Ewing. La fission est modélisée également par un modèle original de FLUKA. Néanmoins, pour les noyaux composés et les fragments de masse légers (A<18), le modèle Fermi Breakup est systématiquement activé pour simuler la cassure nucléaire.

Les neutrons de basse énergie ( $E_{neutron}$ <20 MeV) sont transportés dans FLUKA en utilisant des données nucléaires (ENDF/B-VIIRO, JENDL-3.3, TENDL-10 et JEFF-3.1). Les sections efficaces sont découpées en 260 groupages d'énergie entre 0,01 meV et 20 MeV. Ce groupage d'énergie n'est pas modifiable par l'utilisateur. Le transport des neutrons plus énergétiques est calculé par le modèle Generalized Intra-Nuclear Cascade model, PEANUT [Fassò-95], [Ferrari-98], [Fassò-01] et [Battistoni-06].

Dans nos modélisations, on a utilisé la configuration PRECISIOn. Cette configuration est conseillée par les développeurs de FLUKA pour tout calcul précis. Par ailleurs, on a activité l'option de calcul de l'évaporation des fragments lourds. Cette option permet d'estimer plus précisément le taux de production des isotopes résiduels et celui d'émission de neutrons. On a utilisé le tally (observables) USRBDX pour enregistrer les spectres de neutrons émis.

Les versions 2011.2c.5 et 2011.2x.1 de FLUKA sont utilisés dans nos calculs. Il n'y a pas de différence concernant les modèles physiques des ions lourds dans nos gammes d'énergies de nos études dans ces deux versions.

# 7.1.2 PHITS

Le programme Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) est développé par une collaboration dirigée par l'Agence de l'Energie Atomique Japonais (JAEA) [Sato-13], [Iwamoto-17] et [Sato-18].

PHITS utilise également un fichier texte d'entrée pour prendre en compte les paramètres de calcul, la géométrie et les observables demandés. PHITS ne possède pas d'interface graphique comme FLAIR de FLUKA.

PHITS adopte les normes Message Passing Interface et OpenMP pour fonctionner en parallèle. Selon ces normes, il y a un cœur mère qui gère et distribue les calculs aux cœurs filles. Le calcul est lancé par les cœurs filles. Le cœur mère reçoit et ressemble les résultats des cœurs filles en temps réel.

PHITS simule la réaction et le transport de plusieurs particules (une vingtaine de particules en plus d'ions lourds), la limite d'énergie supérieure des modèles de PHITS est moins élevée que celle de FLUKA (1 TeV/nucléon). PHITS est aussi utilisé pour diverses applications comme la conception des installations d'accélérateurs et la radiothérapie. Pour l'instant, PHITS est principalement adopté dans des laboratoires Japonais. En Europe, il est utilisé pour les calculs de dimensionnement de salle d'expériences S<sup>3</sup> de l'installation GANIL/SPIRAL2 [Fadil-17].

PHITS utilise par défaut le paramétrage de Tripathi [Tripathi-96], [Tripathi-97-a], [Tripathi-97-b] et [Tripathi-99] pour calculer les sections efficaces totales des collisions noyaux-noyaux. On peut choisir entre deux versions 1 et 2 du modèle JAERI Quantum Molecular Dynamics versions pour simuler la phase dynamique de réactions induites par des ions lourds d'énergie inférieure à 3,5 GeV/nucléon [Niita-95], [Chiba-96-a], [Chiba-96-b] et [Ogawa-15]. Les développeurs de PHITS adoptent également le modèle Statistical Multifragmentation Model (SMM) pour simuler la fragmentation des noyaux chauds formés, lorsque l'énergie d'excitation de ces noyaux est assez élevée ( $E_{excitation} > 2,5$  MeV/nucléon) [Ogawa-13].

PHITS utilise le modèle Generalized Evaporation Model (GEM) pour simuler l'évaporation statistique des particules légères (Z $\leq$ 12) et la fission des noyaux lourds (A $\geq$ 70) [Furihata-01].

PHITS utilise la librairie de données nucléaire JENDL-4.0 pour le calcul du transport des neutrons de moins de 20 MeV et des émissions des particules secondaires induites par ces neutrons. Concernant les neutrons plus énergétiques, le modèle Intra-nuclear cascade of Liège (INCL 4.6) est utilisé pour simuler le transport des neutrons [Boudard-13].

On utilise l'observable T-Cross pour enregistrer le courant de neutrons émis à chaque angle. Dans nos calculs, en fonction de la réaction d'ions lourds d'intérêt, nous avons modifié quelques choix de paramètres du code :

- Par défaut, la limite inférieure énergétique du modèle JQMD est à 10 MeV/nucléon. On la change à la valeur de la barrière coulombienne B<sub>c</sub> en fonction de la réaction simulée afin de prendre en compte la production de neutrons par les ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon.
- La version JQMD 1.0 est utilisée dans la littérature pour simuler des réactions des faisceaux d'énergie d'environ 10 MeV/nucléon [Iwamoto-09], [Iwamoto-10] avec succès. Le temps de calcul de cette version est réduit par rapport à la version JQMD 2.0. On l'utilise donc pour simuler les quatre réactions de basse énergie (<sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,<sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu et <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu).
- Concernant les réactions de haute énergie : <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, <sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb, <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb et <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C, on a utilisé le modèle JQMD 2.0 car selon [Ogawa-15] cette version est plus apte. En parallèle, on a activé le modèle de multi fragmentation SMM pour simuler le mécanisme de multi fragmentation lorsque le noyau composé ou les fragments formés sont très excités [Ogawa-13].

On a utilisé la version 2.88 du PHITS dans tous nos calculs.

## 7.1.3 MCNP

Le programme Monte-Carlo N-Particle Transport Code (MCNP) est l'un des premiers codes de transport Monte-Carlo [Goorley-12]. Son développement a commencé dans les années 50 par Los Alamos National Laboratory aux États-Unis.

MCNP reçoit des informations de calcul (paramètres, géométries, observables...) avec un fichier d'entrée comme dans le cas de FLUKA et de PHITS. Cependant, il ne possède pas d'interface graphique. Le calcul en parallèle peut être également effectué avec les normes MPI et OpenMP.

MCNP6 est une combinaison de deux composantes de MCNP : MCNP5 et MCNPX. Il est capable de simuler l'interaction avec la matière et le transport de 37 types de particules. L'interaction et le transport sont également simulés sur une large gamme d'énergie (Thermique-1 TeV/nucléon). MCNP a été initialement développé pour la physique des réacteurs nucléaires. Avec les nouveaux modèles de physique implémentés, son champ d'utilisation est élargi, entre autres, aux domaines de la physique des accélérateurs.

Concernant les réactions d'ions lourds, MCNP utilise le modèle Los Alamos version of Quark-Gluon String Model 03.03 (LAQGSM). LAQGSM utilise le paramétrage de [James-06] pour calculer la section efficace totale des réactions d'ions plus lourds que <sup>4</sup>He. Dans LAQGSM, la phase dynamique des réactions est simulée par le modèle Dubna Cascade Model pour les ions lourds de moins de 4,5 GeV/nucléon. Ce modèle cascade est couplé à un modèle de pré-équilibre. L'évaporation et la fission sont simulées en adoptant le modèle GEM. Le modèle Fermi Break up est également inclus automatiquement dans le code pour calculer la fragmentation des noyaux légers formés (A $\leq$ 12).

Le transport de neutrons dont l'énergie est inférieure à 20 MeV est effectué avec des données nucléaires de la librairie ENDF/B-VII.1. À des énergies plus élevées, c'est le modèle Cascade-Exciton Model 03.03 (CEM) qui est adopté dans MCNP.

Nos calculs ont utilisé la version MCNP6.1 avec le tally (observable) F1 pour enregistrer le courant surfacique de neutrons.

# 7.1.4 Autres codes

Si notre travail s'est arrêté aux trois codes (FLUKA, PHITS et MCNP) d'autres codes de simulation pourraient potentiellement être utilisés dans des études similaires.

# 7.1.4.1 Geant4

Geant4 est un code de transport développé au CERN [Agostinelli-03], [Allison-06] et [Allison-16]. Le code a été présenté brièvement dans le chapitre 5. Geant4 est un code ouvert et universel qui permet aux développeurs et aux utilisateurs d'implanter et d'utiliser une large gamme de données nucléaires et de modèles physiques.

Son champ d'utilisation comprend notamment la physique de haute énergie mais également de la physique nucléaire de plus basse en énergie.

Les réactions d'ions lourds sont simulées dans la liste physique Shielding de Geant4. Cette liste physique se compose des modèles :

- Modèle de section efficace totale : Modèle de Shen ou de NASA.
- Modèle dynamique : JQMD.
- Modèle statistique : Une combinaison entre un propre modèle d'évaporation de cette liste de physique et le modèle GEM.

On trouve qu'en général, les modèles physiques d'ions lourds de Geant4 sont similaires de ceux de PHITS. À cause de la complexité de la structure du code Geant4, il est difficile de comprendre et de maitriser tous les paramètres, les données nucléaires adoptées dans chaque modèle et le couplage entre eux.

Dans nos travaux, GEANT4 a été donc uniquement utilisé pour la simulation des détecteurs HPGe où il y a seulement des interactions électromagnétiques classique entre  $\gamma$  avec le crystal de Germanium.

# 7.1.4.2 MARS et SHIELD-HIT

Parmi les codes de transport utilisant les modèles de cascades nucléaires, il y en a deux qui sont également utilisés auprès des installations d'accélérateurs de recherche et d'hadron thérapie : MARS et SHIELD-HIT. Ils sont respectivement développés au Fermi National Accelerator Laboratory (FNAL) et auprès d'Institute for Nuclear Research RAS et Aarhus University [Mokhov-17] et [Bassler-17].

Concernant les réactions d'ions lourds, ces deux codes utilisent également les modèles dynamiques implémentés dans LAQGSM comme le cas de MCNP (Dubna Cascade Model). La différence avec MCNP vient du choix de la section efficace totale et du modèle de désexcitation statistique.

Suite à cette similitude du modèle dynamique, on considère qu'il n'est pas nécessaire de réaliser des calculs avec tous ces codes de cascades. Le calcul de MCNP est suffisant pour étudier le modèle de LAQGSM.

#### 7.2 Reconstitution des sources de neutrons

#### 7.2.1 Objectif de la reconstitution

Les codes de transports Monte-Carlo calculent l'émission de neutrons lors des réactions d'ions lourds avec des cibles épaisses. Pendant les expériences réelles, les neutrons subissent des effets secondaires (atténuation, diffusion, réactions secondaires...) avant d'être observés par le dispositif de détection. Ces effets sont provoqués par le dispositif expérimental (cible, bride, support de feuille) et la géométrie de la salle d'expérience (mur, ligne de faisceau...). Ils modifient la forme et le flux du spectre de neutrons mesuré. C'est ce que l'on a appelé dans ce travail « distorsion du spectre ».

Par ailleurs, l'opérateur des installations nucléaires n'est pas seulement intéressé par l'émission de neutrons lors des réactions nucléaires mais également par son flux/spectre diffusés dans toute l'installation. C'est pourquoi, le transport de neutrons dans la matière est nécessaire à la fois pour la correction des spectres de neutrons mesurés et pour toutes les différentes applications de l'exploitation.

Les codes Monte-Carlo dédiés simulent le transport de neutrons produits lors des réactions nucléaires. Les calculs de production de neutrons et de leurs transports peuvent être réalisés dans une même simulation (méthode d'une étape). Cependant, le calcul de production de neutrons dans des réactions d'ions lourds consomme déjà beaucoup de temps de calcul et de ressources informatiques. C'est pourquoi la technique d'une étape demande un temps de calcul colossal, avant convergence statistique si l'on veut étudier le flux de neutrons dans une géométrie complexe.

Pour optimiser le temps de calcul, on a divisé en deux étapes les calculs de productions et de transport de neutrons secondaires :

- Étape 1 : Calculer la production de neutrons secondaires émis par les réactions d'ions lourds et sa distribution spatiale (Source directe).
- Étape 2 : Créer une source de neutrons avec les distributions de l'étape 1 en reproduisant la même isotropie et les mêmes pondérations que la source directe. Les calculs de transport sont ensuite réalisés avec cette source indirecte.

Les détails de la méthode de reconstruction sont présentés dans l'annexe.

#### 7.2.2 Méthode de correction des effets de distorsion du spectre de neutrons

Les neutrons émis de la réaction intégrassent ensuite avec le dispositif expérimental (cible, bride, plateau, écran d'arrêt des particules chargées) et avec la salle d'expérience (mur, ligne de faisceau, plafond, sol...) ce qui modifie les spectres mesurés par les détecteurs. C'est

pourquoi, il est nécessaire de corriger le spectre mesuré pour obtenir le vrai spectre de neutrons de la réaction.

Notre méthode de correction est inspirée de la thèse de [Sardet-15]. Elle se compose de cinq étapes :

- > Simuler la réaction d'ions lourds et la production de neutrons secondaires avec PHITS,
- Reconstituer une source de neutrons avec les spectres calculés,
- Calculer le spectre de neutrons aux positions de mesure (feuille d'activation, détecteur ToF) dans les deux configurations : sans et avec la géométrie de la salle d'expérience. On modélise la géométrie de la salle d'expérience avec le programme SimpleGeo [Theis-06]
- Calculer le rapport R entre les spectres de neutrons dans les deux cas,
- Utiliser ce rapport pour corriger les spectres expérimentaux.

La simulation montre en général que les composants qui a ont plus d'impact sur le spectre de neutrons sont les écrans de particules chargées. La figure 7.1 ci-dessous présente, à titre d'exemple, les spectres de neutrons à 0° de l'expérience <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu dans les deux cas : sans et puis avec le dispositif d'irradiation et la géométrie de la salle.

On trouve que le rapport entre les deux spectres est constant au-delà de 5 MeV. Le spectre de distorsion présente un flux moins important de l'ordre de 20 %. À des énergies inférieures à 5 MeV, le flux dans la géométrie de l'expérience est plus important que celui émis de la cible. Ce constat est compréhensible car les neutrons de hautes énergies perdent de l'énergie en traversant la matière et se retrouvent donc à des énergies moins élevées.

L'effet de distorsion est plus important quand on augmente l'épaisseur de la matière que le neutron traverse avant d'atteindre le détecteur (cible, bride, écran d'arrêt des particules chargées). Il peut atteindre jusqu'à 90 % lorsqu'il s'agit des expériences de haute énergie où les écrans métalliques sont utilisés pour limiter le flux des particules chargées (cf. paragraphe 5.1.3).

Dans cette méthode, on suppose que le spectre de neutrons réels est déformé de la même façon que le spectre calculé. Cette hypothèse peut induire des incertitudes supplémentaires aux résultats finals du spectre, notamment si la correction est importante (dans les cas des expériences de haute énergies).

Par ailleurs, à basse énergie le rapport de correction change de l'allure (cf. figure 7.1). Il n'est pas raisonnable d'utiliser ce rapport à des énergies inférieures au point de changement de l'allure pour corriger la forme du spectre mesuré par l'activation.



Figure 7.1 : Spectres de neutrons à  $0^{\circ}$  à la position de mesure d'activation de l'expérience  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{\text{nat}}Cu$  dans les deux cas : Sans puis avec le dispositif d'irradiation et la géométrie de la salle.

# 8. Résultats expérimentaux

# 8.1 Comparaison entre les mesures d'activation et du temps de vol

On a utilisé, par souci de redondance, deux techniques de mesure des neutrons : Activation et ToF. Cette section présente les mesures expérimentales de toutes les expériences effectuées. En comparant les résultats entre les deux techniques de mesure utilisées, on peut :

- Inter-valider les méthodes expérimentales utilisées,
- Étudier l'origine physique et technique des éventuelles différences entre les deux méthodes,
- > Apprécier l'incertitude de chaque type de mesure,
- Confirmer le résultat expérimental.

Une fois la comparaison terminée, il sera plus convenable d'étudier et d'interpréter les mécanismes d'émissions de neutrons secondaires dans les réactions nucléaires.

## 8.1.1 Faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon

## 8.1.1.1 Spectre de neutrons

Les spectres de neutrons mesurés dans quatre expériences de basse énergie sont présentés. Il s'agit de <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,<sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu et <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu (cf. figure 8.1, 8.2, 8.3 et 8.4). Les spectres de neutrons de <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu ne sont mesurés que par la méthode d'activation. Les trois autres spectres sont mesurés par les deux méthodes : activation et temps de vol. Dans l'expérience <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, il y a deux détecteurs placés au même angle (30°) et à des distances différentes de la cible. Les résultats de ces deux détecteurs sont donc présentés individuellement (cf. figure 8.4).



Figure 8.1 : Spectre de neutrons produit par <sup>24</sup>Mg (4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 8.2 : Spectre de neutrons produit par <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 8.3 : Spectre de neutrons produit par <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu


Figure 8.4 : Spectre de neutrons produit par <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu

## 8.1.1.2 Validation de la méthode de déconvolution

La méthode de déconvolution développée dans ce travail est utilisée pour reconstruire les spectres de neutrons différentiels à partir des mesures d'activation intégrales. Il est donc nécessaire de la valider dans différentes plages d'énergie du spectre de neutrons. C'est pourquoi on a comparé systématiquement la mesure d'activation avec la méthode du temps de vol.

On commence par l'expérience avec le faisceau la moins énergétique de  ${}^{24}Mg(4,6 MeV/nucléon)$  (cf. figure 8.1). En comparant les deux mesures, on trouve que les mesures d'activation et du temps de vol sont en très bon accord. L'écart entre les deux méthodes est généralement de l'ordre de quelques pourcents et ne dépasse pas les 30 % dans le cas le plus extrême. Cet écart se situe toujours dans la barre d'incertitudes des deux méthodes de mesures. L'accord est présenté dans toute la gamme d'énergie mesurée même si le flux de neutrons décroît rapidement (jusqu'à deux ordres de grandeur entre les flux de neutrons à 4 MeV et à 12,4 MeV).

Pour l'expérience de plus haute énergie avec le faisceau de <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon), on trouve également que la mesure de ToF est en correspondance avec celle de l'activation (cf. figure 8.3). Cette correspondance se présente à tous les angles et jusqu'à 38 MeV. On remarque cependant une surestimation de neutrons dans le spectre ToF autour de 5 MeV à 15° par rapport à l'activation. Cette surestimation est produite par l'effet de seuil de la mesure ToF. Près du seuil de charge, la simulation montre que l'efficacité monte très rapidement avec l'énergie de neutrons. On rappelle que la résolution énergétique à cet angle est mauvaise, ce qui est dû en réalité à la résolution de la mesure de temps.

La figure 8.4 nous montre que la mesure de deux détecteurs du temps de vol est en bon accord pour l'expérience  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ . La mesure du temps de vol est également très proche de l'activation. La différence entre les deux mesures est seulement de l'ordre de 20

% et se retrouve dans toutes les plages énergétiques communes (5 MeV - 38 MeV) même si le flux descend très vite dans cet intervalle (plus de deux ordres de grandeur).

À travers les trois comparaisons entre la mesure d'activation et celle du temps de vol, on trouve qu'en général la mesure d'activation donne un résultat en bon accord avec la mesure du temps de vol pour les neutrons de moins de 40 MeV. L'écart entre les deux techniques de mesures est faible et est inférieur aux barres d'incertitudes.

Il est donc raisonnable de conclure que la méthode de déconvolution est validée pour reconstruire les spectres de neutrons des expériences de basse énergie où le seuil supérieur de la mesure d'activation est à moins de 40 MeV.

## 8.1.1.3 Analyse de la forme du spectre

Les figures ci-dessus nous montrent une forme similaire entre les spectres de neutrons induits par les faisceaux d'énergies inferieures à environ 10 MeV/nucléon. La partie la plus importante du flux se situe à basse énergie. Le flux de neutrons diminue nettement et rapidement en fonction d'énergie pour tous les angles d'émission (jusqu'à trois ordres de grandeur entre l'énergie minimale et maximale mesurée).

Pour les expériences de <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon) et de <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon), les énergies maximales de neutrons mesurées sont respectivement 18 MeV et 12,4 MeV (cf. figure 8.1 et 8.2). Pour les deux autres réactions avec des faisceaux d'énergie supérieure (<sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon) et <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon)) (cf. figure 8.3 et 8.4), on observe l'émission de neutrons plus énergétiques. Des neutrons de 20 à 40 MeV sont systématiquement mesurés pour les angles de moins de 75°.

Dans la collision d'un ion lourd accéléré à une énergie voisine de 10 MeV/nucléon, comme ce qui a été dit dans le chapitre 2, deux principaux scénarios peuvent avoir lieu en fonction du paramètre d'impact : diffusion profondément inélastique (collision périphérique) et fusion (collision centrale). La diffusion profondément inélastique produit deux noyaux : quasi-projectile et quasi-cible. La fusion donne lieu à un noyau composé.

Les noyaux formés atteignent dans la majorité des cas l'équilibre thermodynamique. La masse du noyau composé dans le cas de la fusion complète est donc la somme des nucléons de l'ion incident et le noyau-cible. Ils se désexcitent en suivant plusieurs voies. Vue la masse des systèmes de réactions, la voie la plus probable est l'évaporation statistique. Par ailleurs, la masse des noyaux formés lors des collisions sont en général plus lourds qu'A =20, ce qui rend la contribution de la cassure nucléaire (Fermi Break-up) insignifiante. Pendant l'expérience <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, un noyau composé ou un quasi-projectile de masse élevée sont formés. Pour un système aussi lourd, la fission ou quasi-fission contribuent aussi à la production de neutrons.

Ces trois voies de désexcitation produisent essentiellement des neutrons de basse énergie (jusqu'à une vingtaine de MeV au maximum pour ces deux réactions avec les faisceaux de <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon) et de <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)). Il n'est cependant pas possible dans une expérience inclusive comme les nôtres de séparer la contribution de chacune des voies.

Avec les deux faisceaux <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon) et <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon), l'énergie d'excitation du noyau composé ou du quasi-projectile et du quasi-cible est importante. Certains

nucléons reçoivent une énergie plus élevée que l'énergie de liaison et sont donc émis dans le continuum avant que les noyaux formés atteignent l'équilibre. Ces neutrons comme ce qui est dit dans le chapitre 2, sont produits avec toutes les énergies. Ils peuvent être également plus énergétiques que ceux émis dans la désexcitation statistique (évaporation, fission, cassure).

On a réalisé un calcul avec le code PHITS afin d'estimer les contributions de deux phases productrices de neutrons : désexcitation statistique et pré-équilibre. La figure 8.5 cidessous montre le flux de neutrons émis par chaque phase et le flux total émis par la réaction  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ . On trouve qu'à moins d'une vingtaine de MeV, les neutrons sont émis principalement par le mécanisme d'évaporation à l'équilibre. La contribution de l'émission de pré-équilibre n'est cependant pas négligeable à partir de 20 - 30 MeV et est la première source productrice de neutrons de haute énergie ( $E_{neutron}>50 \text{ MeV}$ ). On peut donc conclure que les neutrons de haute énergie (30 - 40 MeV) mesurés pendant les deux expériences  ${}^{78}Kr(10,5 \text{ MeV/nucléon})$  et  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})$  viennent sûrement d'une partie de l'émission pré-équilibre.



Figure 8.5 : Contributions intégrales des deux phases productrices de neutrons pour  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu calculées par PHITS.$ 

Notre interprétation est également partagée par des études de trois réactions similaires dans la littérature :  $({}^{16}O(7,2 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Ta [Nandy-01];$   ${}^{16}O(7,5;$  8,8 MeV/nucléon)+ ${}^{nat}Al [Paul-17]$  et  ${}^{19}F(7,6 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Al [Sunil-13].$ 

Dans la cible épaisse, les neutrons sont produits par des réactions de l'ion incident entre l'énergie initiale et l'énergie proche de la barrière coulombienne. On peut supposer un seuil bas en énergie d'émission de neutrons de pré-équilibre situé entre 6,25 MeV/nucléon et 10,5 MeV/nucléon. Ce seuil est légèrement inférieur à la limite de 10 MeV/nucléon souvent présenté comme la limite d'émission des particules de pré-équilibre dans la littérature. Il est de plus en accord avec les interprétations de [Nandy-01], [Sunil-13] et [Paul-17]. On remarque également

que ce seuil dépend essentiellement de l'énergie de l'ion incident car dans ces trois expériences, la combinaison ion incident/noyau-cible est assez différente des nôtres.

# 8.1.2 Faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon

# 8.1.2.1 Spectre de neutrons

Les spectres de neutrons de quatre expériences de l'énergie de faisceau bien supérieure à 10 MeV/nucléon sont systématiquement mesurés avec les deux techniques d'activation et du temps de vol :  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ ,  ${}^{58}Ni(74,5 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Nb$ ,  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}CL$  Les résultats de ces mesures sont présentés dans les figures 8.6, 8.7, 8.8, 8.9 ci-dessous.



Figure 8.6 : Spectre de neutrons produit par <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 8.7 : Spectre de neutrons produit par <sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 8.8 : Spectre de neutrons produit par <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb



Figure 8.9 : Spectre de neutrons produit par <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C

#### 8.1.2.2 Validation de la méthode de déconvolution

La mesure d'activation des expériences de haute énergie a un seuil bas plus élevé que celui des expériences de basse énergie. Ce seuil élevé est causé par l'effet de la forme de la fonction de correction des effets de distorsions, comme ce qui a été expliqué dans le chapitre 7. Les mesures d'activation dans ces expériences de haute énergie utilisent des écrans métalliques pour arrêter les particules chargées issues de la cible. Ces écrans modifient donc sensiblement la partie basse énergie du spectre.

La mesure d'activation possède une incertitude significative, notamment dans la partie de haute énergie ( $E_{neutron} \ge ~35 \text{ MeV}$ ).

La mesure du temps de vol permet de mesurer des neutrons de très haute énergie jusqu'à 200 MeV. La résolution énergétique est mauvaise pour le détecteur à 15°, ce qui ne permet pas de mesurer correctement des neutrons de haute énergie à cet angle sauf pendant l'expérience  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ .

La comparaison entre les deux méthodes nous montre que la forme globale de la mesure du temps de vol est reproduite avec la méthode d'activation.

On observe toutefois certaines divergences entre ces deux techniques concernant principalement la partie basse énergie ( $E_{neutron} < 20 \text{ MeV}$ ) du spectre de neutrons. La valeur absolue du flux de neutrons mesuré par la méthode d'activation est systématiquement plus importante que celle du ToF dans certaines mesures. L'écart entre deux méthodes de mesures peut atteindre à cette énergie au maximum un facteur 2-2,5. À plus haute énergie, les deux techniques de mesures sont en meilleur accord. La mesure de ToF se retrouve dans la majorité des cas dans les barres d'incertitudes de la mesure d'activation.

On trouve également que cet écart augmente en général avec l'énergie du faisceau. Il reste dans tous les cas moins d'un facteur 2,5.

Les mesures d'activation des expériences de haute énergie sont confrontées à trois problématiques majeures :

- Des écrans métalliques sont placés entre la cible et les feuilles d'activation pour arrêter ou limiter le flux de particules chargées. Ces écrans modifient en même temps les spectres de neutrons (forme, flux) notamment dans la partie de basse énergie. La modification du spectre est nettement plus importante dans la mesure d'activation que dans la partie de ToF. Plus la modification est importante plus l'effet de la méthode de correction sur le spectre est significatif. Or il n'est pas possible pour l'instant d'estimer les incertitudes associées à la valeur de la correction du spectre.
- La section efficace des réactions à hauts seuils de neutrons a une incertitude élevée. Cela conduit donc à une incertitude importante sur le spectre de neutrons obtenu par la déconvolution dans la partie de haute énergie. Dans certains cas, à cause du manque de données expérimentales de mesures de sections efficaces, il est difficile de bien déterminer des incertitudes associées.
- À très haute énergie, l'analyse du taux de réactions des deux isotopes <sup>201</sup>Bi et <sup>200</sup>Bi dépend du taux d'embranchement vers les états métastables calculés par TENDL-2017. L'incertitude de ces taux ne peut pas encore être évaluée.
- Pour certains spectres de haute énergie, on applique une correction empirique pour mieux reproduire les taux de réactions mesurés. On n'a pourtant pas pu évaluer l'incertitude de cette correction, car la technique Monte-Carlo de propagation d'incertitude que l'on emploie ne permet de calculer que les incertitudes avant cette correction.

En conclusion, on trouve que, malgré certains écarts avec la mesure du temps de vol notamment pour les neutrons d'énergie inférieure à environ 20 MeV, la méthode d'activation parvient à mesurer les spectres de neutrons. Notre méthode d'analyse des isotopes issus des réactions à haut seuil peut être considérée comme étant acceptable. À notre connaissance, nos mesures d'activation sont les seules à ce jour à être comparées avec des mesures indépendantes de ToF dans une même expérience avec les faisceaux d'ions lourds de cette énergie.

# 8.1.2.3 Analyse de la forme du spectre

Dans les réactions d'ions lourds de haute énergie, la probabilité d'émission des particules de pré-équilibre devient nettement plus importante. Dans le cas d'une collision périphérique, les neutrons de pré-équilibre sont émis non seulement du quasi-projectile et quasicible mais également par la zone de recouvrement de ces deux noyaux lors de l'interaction. À des énergies très élevées (le cas du faisceau <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon), trois noyaux sont formés : le fragment du projectile, le fragment de la cible et un système chaud « fireball ». Dans le cas d'une collision centrale un système chaud est également formé. Dans les cas où l'énergie d'excitation de ce système lors de la collision est très élevée, il peut être cassé directement en plusieurs fragments ou nucléons lors des processus de multi fragmentation ou de vaporisation. Lorsque le faisceau d'ion incident se retrouve à basse énergie à la fin de leurs parcours, ce sont les mécanismes d'émissions présentés dans la section basse énergie ci-dessus qui entrent en jeu.

Dans les mesures avec des cibles minces, on observe clairement un pic de neutrons à une énergie proche de l'énergie par nucléon du faisceau incident [Tsai-18]. Ce pic est produit par l'émission de pré-équilibre et étant donné l'énergie élevée du faisceau, il est clairement séparé de la contribution de l'évaporation. Il est pourtant difficilement observé dans des mesures avec des cibles épaisses à cause de la convolution de la production de neutrons par la distribution d'énergie des ions incidents produisant des réactions.

Après avoir émis des particules de pré-équilibre ou des fragments, les noyaux produits après la réaction se retrouvent à l'état équilibre. Étant donnée la masse des systèmes de réactions, deux voies de désexcitation sont possibles : évaporation et cassure nucléaire. La cassure nucléaire devient significative dans les réactions avec le faisceau de <sup>12</sup>C où les noyaux formés sont légers. Cette cassure est plus probable pour les noyaux légers car leur énergie d'excitation à l'équilibre reste supérieure à leur énergie de liaison. Un pic autour de 5 MeV est observé dans certaines expériences. Ce pic correspond à la désexcitation par l'évaporation ou la cassure nucléaire.

On a également utilisé PHITS pour estimer la production de neutrons par deux phases de réaction. La figure 8.10 montre le flux de neutrons produits dans chaque phase et le flux total de la réaction  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ .



Figure 8.10 : Contributions intégrales des deux phases productrices de neutrons :  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu calculées par PHITS.$ 

## 8.2 Comparaisons entre mesures

## 8.2.1 Comparaisons avec les mesures existantes

La mesure de production de neutrons sur une cible épaisse du <sup>nat</sup>C avec notre faisceau de <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon) est comparée avec celle de deux faisceaux de la même énergie par nucléon dans la littérature : <sup>12</sup>C(100 MeV/nucléon) [Satoh-07] et <sup>36</sup>Ar(100 MeV/nucléon) [Pauwels-00-a] (cf. figure 8.11 et 8.12).

La forme des spectres de notre expérience est similaire à celle de [Satoh-07]. Cependant, le flux de neutrons de [Satoh-07] est systématiquement plus important que celui de notre expérience, notamment à des petits angles ( $\theta \le 30^\circ$ ). Cette différence peut atteindre un facteur trois. Plus l'angle de mesure est petit plus l'écart est important. On n'a cependant pas trouvé l'explication de la divergence des deux mesures (la nôtre et celle de [Satoh-07]). Nos résultats sont toutefois plus proches des calculs comme ce qui sera présenté dans le chapitre 9 suivant.

Nos résultats et ceux de [Satoh-07] sont de toute façon très différents de ceux de [Pauwels-00-a]. L'écart, dans le flux comme dans la forme, que présente [Pauwels-00-a] avec les autres mesures à des énergies semblables est, pour le moins dire, étonnant. Cet écart pourrait avoir comme origine certaines limites de l'expérience de [Pauwels-00-a], notamment concernant sa méthode déconvolution comme ce qui expliqué auparavant dans le chapitre 2.



Figure 8.11 : Spectre de neutrons produits par <sup>12</sup>C(95, 100 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C



Figure 8.12 : Spectre de neutrons produits par  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}C$  de ce travail et  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}C$  de [Satoh-07] comparé à spectre de  ${}^{36}Ar$  (95 MeV/nucléon)+ ${}^{nat}C$  de [Pauwels-00-a]

#### 8.2.2 Systématique de productions de neutrons

#### 8.2.2.1 En fonction de l'énergie du faisceau

La figure 8.13 présente les spectres de neutrons de deux expériences avec des faisceaux similaires en terme de masse sur la même cible  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$  et  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$ . On n'a pas pu étudié un même faisceau à cause des contrains liés à l'opération du GANIL (durée d'expériences, planning de faisceaux...). Afin de simplifier la comparaison, on présente seulement le résultat de la mesure d'activation à deux angles de 0° et de 60°.

Le flux de neutrons produits augmente avec l'énergie du faisceau. Le flux de neutrons de la réaction  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$  est bien plus grand que celui de  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$  dans toute la gamme d'énergie. Par ailleurs, on remarque une différence significative concernant la forme du spectre de neutrons émis.

Le flux de neutrons produit avec le faisceau de  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})$  diminue beaucoup plus rapidement en fonction de l'énergie que celui avec le faisceau de  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})$ . Ce constat indique que le taux d'émission des neutrons de pré-équilibre est nettement plus important avec le faisceau  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})$ , ce qui est également confirmé par des calculs avec le code PHITS (cf. figure 8.5 et 8.10).



Figure 8.13 : Production de neutrons par les faisceaux de  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})$  et  ${}^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})$  sur une cible du  ${}^{nat}Cu$ .

## 8.2.2.2 En fonction de la masse du faisceau

On a également comparé le spectre de neutrons produits par la réaction du faisceau  $^{78}$ Kr(10,5 MeV/nucléon) sur une cible de <sup>nat</sup>Cu de notre expérience et deux autres faisceaux d'énergies similaires :  $^{12}$ C(10 MeV/nucléon) et  $^{16}$ O (9,6 MeV/nucléon) de la littérature [Shin-95] (cf. figure 8.14). La comparaison montre que :

- Le flux de neutrons mesuré avec le faisceau de <sup>78</sup>Kr est le plus important jusqu'à 60°. À 90°, les flux de neutrons mesurés avec les trois faisceaux sont comparables. Le faisceau <sup>12</sup>C produit légèrement plus de neutrons que les deux autres.
- À des angles de moins de 30°, le flux de neutrons mesuré avec les deux faisceaux légers <sup>12</sup>C et <sup>16</sup>O diminue plus rapidement avec l'énergie que celui du <sup>78</sup>Kr.



Figure 8.14 : Production de neutrons par les faisceaux de  $^{78}$ Kr(10,5 MeV/nucléon),  $^{12}$ C(10 MeV/nucléon) et  $^{16}$ O(9,6 MeV/nucléon) sur une cible du  $^{nat}$ Cu.

Ce constat peut être expliqué par trois raisons principales :

- ➢ La section efficace totale de réaction augmente avec la masse du faisceau,
- Même si l'énergie par nucléon est la même, l'énergie totale du faisceau de <sup>78</sup>Kr est nettement plus élevée que celle des deux autres faisceaux. L'énergie transférée au noyau composé ou quasi-projectile et quasi-cible formés est en moyenne plus élevée, ce qui favorise l'émission de neutrons,
- Si on considère comme dans certains modèles que les particules sont émises à l'équilibre de façon isotrope dans le centre de masse, on trouve que plus le rapport de masse entre l'ion incident et le noyau cible est important, plus les particules sont émises aux les angles avant dans le référentiel du laboratoire.

### 8.2.2.3 En fonction de la cible

La systématique de productions de neutrons peut être également étudiée en fonction de la nature de la cible. On a donc comparé la production de neutrons par le faisceau de <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon) sur deux cibles de <sup>nat</sup>C et de <sup>nat</sup>Nb. Afin de faciliter la comparaison, on présente seulement les résultats de ToF dans la figure 8.15 car les mesures d'activation présentent une incertitude importante.

Le flux de neutrons de basse énergie est systématiquement plus élevé à tous les angles dans les mesures avec la cible du <sup>nat</sup>Nb que le flux mesuré avec la cible de <sup>nat</sup>C. À des angles de moins de 30°, on trouve que le flux de neutrons de haute énergie produit avec la cible de <sup>nat</sup>C est plus important. Tandis qu'à des grands angles le flux de haute énergie reste comparable entre les deux expériences.

Lors d'une collision entre un ion incident et un noyau-cible, l'énergie du faisceau est partagée entre les nucléons des noyaux composés/fragments formés. Pour un faisceau d'une énergie et d'une masse définies, plus le noyau-cible est lourd moins l'énergie transférée à chaque nucléon des noyaux formés est élevée. Une énergie d'excitation élevée favorise cependant l'émission de pré-équilibre de nucléons pendant la phase dynamique. L'énergie restante pour la désexcitation statistique à l'équilibre est moins importante, ce qui explique une émission plus faible de neutrons de basse énergie avec la cible du <sup>nat</sup>C qu'avec celle du <sup>nat</sup>Nb.



Figure 8.15 : Production de neutrons par le faisceau  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})$  sur deux cible du  ${}^{nat}C$  et du  ${}^{nat}Nb$ .

# 9. Comparaison des résultats expérimentaux avec les prédictions théoriques

## 9.1 Comparaison avec les codes de transport

## 9.1.1 Faisceaux d'ions d'énergie inférieure à 10 MeV/nucléon

Dans cette section les spectres mesurés de quatre expériences ((<sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,<sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu et <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu)) sont comparés avec les calculs des codes de transport (cf. figure 9.1, 9.2, 9.3 et 9.4). On a utilisé FLUKA et PHITS pour simuler les spectres de neutrons. MCNP n'est pas utilisé car son modèle dynamique LAQGSM ne prend en charge que les ions incidents d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon.

Parmi les quatre réactions d'intérêt, étant données les masses de l'ion incident et du noyau-cible, les mécanismes d'émissions de neutrons sont essentiellement l'évaporation statistique avec une contribution faible de l'émission de pré-équilibre. La fission est susceptible d'avoir lieu seulement pendant la réaction <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu. C'est pourquoi, dans les sections suivantes, on traitera séparément cette réaction.

#### 9.1.1.1 Réactions sans fission

Pour les systèmes faisceau-cible suffisamment légers (( $^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/nucléon})$ ,  $^{78}Kr(10,5 \text{ MeV/nucléon})$ ,  $^{36}S(12 \text{ MeV/nucléon})$ ) + $^{nat}Cu$ ), la fission n'est pas possible.

Comme expliqué dans les chapitres 2 et 8 précédents, le domaine d'énergie du neutron émis dépend des mécanismes de réactions productrices de neutrons. À environ 10 MeV/nucléon, selon l'estimation de PHITS, la désexcitation statistique des noyaux chauds produit essentiellement des neutrons allant au maximum jusqu'à 30 MeV. L'émission de pré-équilibre produit des neutrons de toutes les énergies mais sa contribution totale devient significative seulement dans la partie haute énergie du spectre ( $E_{neutron}$ >~30 MeV) (cf. figure 8.5).

Les figures 9.1, 9.2 et 9.3 nous montrent que PHITS et FLUKA sont dans la majorité des cas en bon accord l'un avec l'autre concernant l'estimation de la production de neutrons de moins de 20 MeV. Cette correspondance est observée de façon systématique pour tous les angles des trois réactions d'intérêt. L'écart entre les deux codes est faible (moins de 30 %).

Comme présenté dans le chapitre 7, les modèles de section efficace totale de FLUKA et de PHITS sont similaires pour toutes les énergies du faisceau (tous basés sur les formules de Tripathi [Tripathi-96], [Tripathi-97-a], [Tripathi-97-b] et [Tripathi-99]).

La forme et l'intensité de la simulation de l'émission de particules évaporées dépendent donc plus spécifiquement d'une part des modèles de désexcitation statistique et d'autre part des modèles dynamiques.

PHITS et FLUKA emploient deux modèles différents d'évaporation statistique mais tous basés sur le principe de Weisskopf-Ewing. Cette comparaison confirme que les valeurs des paramètres et des données nucléaires adoptés dans les modèles d'évaporation de FLUKA et de PHITS restent comparables pour ces systèmes étudiés. On n'a pourtant pas trouvé dans la littérature suffisamment d'informations concernant les paramètres et les données nucléaires du modèle d'évaporation de FLUKA pour comparer en détail ce dernier avec PHITS.

Le modèle dynamique intervient également dans l'évaporation des particules. Selon le principe de Weisskopf-Ewing, la probabilité d'évaporation des particules à l'équilibre dépend de l'énergie d'excitation du noyau père. Cette énergie est calculée au moment du passage entre le modèle dynamique et le modèle statistique. Elle est le résultat de la thermalisation du noyau pendant la phase dynamique. On trouve donc que malgré les approches très différentes de simulation de la phase dynamique, la thermalisation est équivalente entre FLUKA et PHITS pour cette énergie du faisceau incident.

Les figures 9.1, 9.2 et 9.3 nous montrent que les prédictions théoriques de FLUKA et de PHITS sont globalement en accord avec les mesures (forme, intensité). On remarque que :

- ► L'écart  $\left|\frac{\phi_{calcul} \phi_{mesure}}{\phi_{mesure}}\right|$  est à environ quelques dizaines de pourcents. Aux angles plus élevés (90° et 105°), cet écart devient systématiquement plus important. Le calcul a une tendance générale à surestimer le flux de neutrons.
- L'écart entre calcul et mesure ne dépasse cependant pas dans le pire des cas un facteur 2 pour les angles avant et un facteur 3 pour les angles arrière.
- Parmi ces trois expériences, c'est la réaction <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+Cu qui est la mieux reproduite par les calculs.

Les écarts constatés entre calculs et mesures peuvent être expliqués par ces deux raisons principales :

- Dans [Triphati-97-b], les sections efficaces totales calculées sont comparées avec les mesures expérimentales. On y trouve trois réactions assez similaires à celles de nos expériences (<sup>20</sup>Ne+<sup>40</sup>Ca; <sup>35</sup>Cl+<sup>62</sup>Ni et <sup>84</sup>Kr+<sup>65</sup>Cu). Parmi ces trois expériences, on trouve que les formules de Tripathi surestiment la section efficace totale de la dernière réaction <sup>84</sup>Kr+<sup>65</sup>Cu d'une vingtaine de pourcents pour des énergies de moins de 10 MeV/nucléon. Les sections efficaces totales des deux autres réactions (<sup>20</sup>Ne+<sup>40</sup>Ca; <sup>35</sup>Cl+<sup>62</sup>Ni) sont bien reproduites par les calculs.
- Les modèles d'évaporation de FLUKA et de PHITS considèrent que les particules sont émises de manière isotrope dans le référentiel du centre de masse. Cependant, plusieurs études ont mis en cause cette hypothèse [Valdré-15].

Lorsque l'énergie des neutrons augmente, on observe des écarts non négligeables entre FLUKA et PHITS. À partir d'environ 20 MeV, FLUKA prévoit systématiquement un flux de neutrons plus élevé que celui de PHITS. Cette surestimation n'est pas importante pour l'expérience de <sup>36</sup>S (12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu où l'on observe des écarts entre les deux codes seulement aux énergies élevées (facteur 2 à 40 MeV). Toutefois, la surestimation est plus élevée pour celle avec le faisceau de <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon) (facteur 3 à 40 MeV).

Ces neutrons de haute énergie sont essentiellement produits par l'émission de pré-équilibre. C'est pourquoi, il est raisonnable de considérer que cet écart entre PHITS et FLUKA est issu du traitement d'émission des particules pendant la phase dynamique. Pour l'expérience <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu à des énergies intermédiaires (~20 MeV - ~35 MeV), les deux codes reproduisent assez bien les mesures. Cependant, aux énergies plus élevées (~40 MeV), FLUKA surestime le flux de neutrons d'un facteur 2. PHITS reste proche des mesures avec un écart de quelques dizaines de pourcents pour toutes les énergies.

Pour l'expérience <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, on trouve que FLUKA surestime systématiquement le flux de neutrons de haute énergie à tous les angles. Les calculs de PHITS reproduisent mieux les données expérimentales. Aux angles avant ( $\theta \le 30^\circ$ ), l'écart entre PHITS et les mesures reste négligeable. Il ne devient conséquent qu'aux angles plus élevés. Il reste dans tous les cas inférieurs à un facteur 2.

Comme présenté dans le chapitre 2, le modèle dynamique BME de FLUKA calcule l'émission des particules de pré-équilibre en se basant sur celle de certaines réactions représentatives. Les systèmes de réactions représentatives dans la version actuelle de BME sont moins lourds et plus énergétiques que nos deux réactions (<sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon), <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu) étudiées ci-dessus. L'émission des particules de pré-équilibre dans nos deux systèmes est donc extrapolée de la base de données de BME. Plus le système est lourd plus l'extrapolation est importante. C'est pourquoi, on trouve un écart plus important avec les spectres mesurés dans la réaction avec le faisceau <sup>78</sup>Kr qu'avec celui de <sup>36</sup>S.

L'impact de la différence entre les deux codes FLUKA et PHITS sur le calcul du flux intégré en énergie et en angle de neutrons reste minime, car la majorité du flux se trouve dans la partie basse énergie du spectre. Par exemple, dans l'expérience <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, les taux de productions de neutrons sont respectivement de : 2,57E-3 (FLUKA) et 2,61E-3 (PHITS) neutrons/<sup>78</sup>Kr.



Figure 9.1 : Spectres de neutrons produits par <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 9.2 : Spectres de neutrons produits par <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 9.3 : Spectres de neutrons produits par <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu

## 9.1.1.2 Réactions avec fission

Dans la réaction <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, on a observé des neutrons jusqu'à seulement 13 MeV. Ces neutrons sont produits essentiellement par la désexcitation statistique à l'équilibre. Étant données les masses de l'ion incident et du noyau-cible, il est probable que la fission peut avoir lieu en parallèle avec l'évaporation. Selon l'estimation du code FLUKA, presque 50 % des interactions nucléaires dans cette expérience sont des fissions.

Si dans les réactions étudiées dans la section 9.1.1.1 on trouve une correspondance systématique entre FLUKA et PHITS pour la partie basse énergie du spectre cela n'est pas le cas pour cette expérience (cf. figure 9.4).

Aux angles avant ( $\theta \le 30^{\circ}$ ), les deux codes sont en accord (forme, flux) pour les neutrons d'énergie jusqu'à environ 5 MeV. Aux énergies plus élevées, le flux de neutrons donné par FLUKA devient nettement plus important que celui donné par PHITS (jusqu'à un ordre de grandeur à 14 MeV). À 60°, FLUKA prévoit un spectre de neutrons systématiquement plus élevé que celui de PHITS pour toutes les énergies. L'écart entre les deux codes à cet angle varie d'un facteur 5 à plus basse énergie jusqu'à un ordre de grandeur à 14 MeV. On peut considérer que les neutrons prompts ont majoritairement des énergies supérieures à environ 5 MeV, car c'est à partir de ce point que l'on trouve des écarts entre FLUKA et PHITS.

On retrouve également cet écart entre les deux codes en comparant le taux de production totale de neutrons ( $R_{208Pb+Cu-PHITS}=1,3E-4$  neutrons/<sup>208</sup>Pb,  $R_{208Pb+Cu-FLUKA}=3,8E-4$  neutrons/<sup>208</sup>Pb). Selon une discussion avec les développeurs de FLUKA, l'écart entre les deux codes pour cette réaction est issu du traitement de la fission dans chacun des codes. Le modèle de désexcitation statistique de PHITS considère seulement les neutrons émis par de l'évaporation du noyau fissile et par des fragments de fission mais non pendant la fission ellemême. Tandis que FLUKA, en plus de ces neutrons, prend également en compte la contribution des neutrons prompts émis lors de la fission.

La figure 9.4 montre que le calcul de PHITS reproduit relativement mieux les spectres expérimentaux que FLUKA. L'écart entre les calculs de PHITS et les mesures est inférieur à un facteur 2, tandis que celui de FLUKA peut atteindre un facteur 5.

La surestimation du flux de neutrons par FLUKA dans cette expérience peut donc être expliquée par la production excessive de neutrons par son modèle de fission.



Figure 9.4 : Spectres de neutrons produits par <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu

## 9.1.2 Faisceaux d'ions d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon

## 9.1.2.1 Constats

Dans cette section, les spectres mesurés de quatre expériences ((<sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,<sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb, <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb et <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C)) sont comparés avec les calculs de PHITS, FLUKA et MCNP.

Pendant ces expériences, du fait de l'énergie élevée du faisceau, les neutrons produits pendant la phase de désexcitation statistique peuvent être également très énergétiques. La contribution de cette phase reste significative jusqu'à une énergie de neutrons égale à l'énergie par nucléon du faisceau incident. À des énergies plus élevées, c'est la contribution des processus pré-équilibre qui domine.

Dans les deux expériences  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$  et  ${}^{58}Ni(74,5 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Nb$  (cf. figure 9.5 et 9.6), en comparant d'une part les différents calculs entre eux et d'autre part les calculs et les mesures, on constate que :

Aux angles avant ( $\theta \le 30^{\circ}$ ), FLUKA reproduit mieux les spectres mesurés. L'écart entre FLUKA et les mesures reste de moins de 50 % pour l'expérience  ${}^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$  et de moins d'un facteur 2 pour celle de  ${}^{58}Ni(74,5 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Nb$ . Les spectres calculés par PHITS sont assez différents des calculs de FLUKA et des mesures. On trouve que PHITS surestime l'évaporation de neutrons de moins de 10 MeV et sous-estime en même temps l'émission de neutrons de plus haute énergie. L'écart entre PHITS et les mesures peut atteindre respectivement un facteur 3 et 2 dans les deux expériences de  ${}^{32}S$  et de  ${}^{58}Ni$ . Le résultat de MCNP devient acceptable seulement dans la partie très haute énergie du spectre ( $E_{neutron}$ >Énergie par nucléon du faisceau). Il a toutefois tendance à légèrement surestimer cette partie. À des énergies moins élevées que l'énergie par nucléon de l'ion incident, MCNP sousestime considérablement le flux (jusqu'à un ordre de grandeur).

Aux angles plus élevés ( $\theta$ >30°), on retrouve un très bon accord entre les calculs de FLUKA et de PHITS et les mesures expérimentales. La seule différence entre FLUKA et PHITS se situe à environ 5 MeV où le flux calculé par PHITS est légèrement inférieur à celui de FLUKA. Cette énergie se trouve autour du seuil bas de mesure, il est difficile de dire quel code est plus proche de la réalité. À l'angle arrière (105°), PHITS semble être plus proches des données expérimentales.

L'écart entre FLUKA et PHITS et entre calculs et mesures reste en général à quelques dizaines de pourcents et ne dépasse pas dans le pire des cas un facteur 2. Le comportement de MCNP ne change pas.

## Pour l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb, on trouve que :

Aux angles les plus petits (moins de 15°), FLUKA et PHITS sont en accord (forme, flux) pour la partie de moins de 10 MeV du spectre. Au-delà de cette énergie, les spectres des deux codes ne sont plus en accord. FLUKA prévoit systématiquement un flux de neutrons plus élevé que celui de PHITS (jusqu'à un facteur 2 à 0°) jusqu'à environ l'énergie initiale du faisceau. Au-delà de cette énergie, la situation s'inverse. En règle générale, on constate que les mesures sont plus proches de PHITS que de FLUKA. Concernant MCNP, son calcul sous-

estime considérablement la production de neutrons de moins d'environ 80 MeV. Mais au-delà de cette énergie, on retrouve une surestimation importante dans les calculs.

Aux angles plus élevés, tandis que l'on retrouve toujours un accord jusqu'à 10 MeV entre FLUKA et PHITS, la situation à plus haute énergie s'inverse. PHITS prévoit systématiquement un flux de neutrons plus important que celui de FLUKA. PHITS est toujours en meilleur accord avec les données expérimentales. Par ailleurs, on observe seulement un accord entre MCNP et les mesures pour l'intervalle énergétique entre 20 MeV et 60 MeV. MCNP sous-estime le flux au-dessous de cet intervalle et le surestime pour les énergies supérieures. Il est à remarquer que la surestimation du flux de neutrons de très haute énergie par MCNP n'est pas observée pour les deux premières réactions de plus basse énergie du faisceau.

# Pour l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C :

On observe systématiquement dans tous les angles pour la première fois une différence de forme de la partie très basse énergie entre FLUKA et PHITS. Au-delà de 10 MeV, le flux de PHITS est moins important que celui de FLUKA à 0°. La situation semble s'inverser à des angles plus élevés. Ces écarts deviennent moins marquants pour la partie très haute énergie du spectre (>100 MeV) et pour les angles de plus de 45°.

Concernant la comparaison avec les données expérimentales on trouve qu'en général les calculs (FLUKA et PHITS) sont clairement plus proches de nos mesures de celles de [Satoh-07]. Le flux de neutrons de [Satoh-07] est nettement plus élevé que celui de FLUKA et de PHITS. Cet écart peut atteindre jusqu'à un facteur trois à basse énergie aux angles avant.

Nos mesures se situent entre les prédictions de FLUKA et celles de PHITS. Le calcul de FLUKA semble être plus proche des points expérimentaux dans toute la gamme d'énergie. On remarque également que la forme du spectre à basse énergie de FLUKA est plus correcte par rapport à la mesure que celle de PHITS. Cependant, l'écart entre nos mesures et les calculs de FLUKA et de PHITS ne dépasse pas un facteur 2 pour tous les angles.

Concernant le calcul de MCNP, on trouve également les mêmes comportements que pour les autres expériences : sous-estimation importante du flux de neutrons de basse énergie (jusqu'à une énergie voisine de l'énergie par nucléon du faisceau aux angles avant) et surestimation des neutrons de haute énergie (supérieure à l'énergie par nucléon du faisceau incident pour les angles avant).



Figure 9.5 : Spectres de neutrons produits par <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu



Figure 9.6 : Spectres de neutrons produits par <sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb



Figure 9.7 : Spectres de neutrons produits par <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb



Figure 9.8 : Spectres de neutrons produits par <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C

## 9.1.2.2 Interprétations

La section efficace totale du modèle NASA-Tripathi employé dans PHITS et FLUKA pour les réactions similaires à celles étudiées dans cette section est validée avec les données expérimentales [Tripathi-97-b]. L'écart entre les deux codes et avec nos mesures vient donc des modèles dynamiques et de désexcitations statistiques. Dans le cas de MCNP, la section efficace totale n'a pas pu être évaluée faute de manque de détails dans la littérature. Selon [Mashnik-15], MCNP utilise un modèle géométrique pour calculer la section efficace totale de réaction. La qualité de ce modèle n'est pas encore vérifiée [Mashnik-15]. C'est pourquoi, les développeurs de MCNP comptent remplacer ce modèle par celui de NASA-Tripathi dans des versions ultérieures de MCNP.

Comme ce qui est discuté dans la section 9.1.1, pour les réactions de basse énergie  $(E_{faisceau} \leq \sim 10 \text{ MeV/nucléon})$ , les modèles statistiques de PHITS et FLUKA sont en bon accord entre eux ainsi qu'avec les données expérimentales. Par ailleurs, on remarque que MCNP adopte également les mêmes modèles de désexcitation statistique que PHITS et FLUKA (Évaporation : GEM ; Cassure nucléaire : Fermi Breakup). Pourtant, comme on le voit sur les figures ci-dessus, la simulation pour la partie basse énergie du spectre de neutrons n'est pas en accord avec les expériences. Parmi ces trois codes, FLUKA est généralement le plus proche des mesures suivies par PHITS puis par MCNP.

Il y aurait quatre raisons principales pour expliquer une telle divergence à partie basse énergie du spectre:

1) La probabilité d'évaporation de particules dans les modèles basés sur le principe de Weisskopf-Ewing dépend sensiblement de l'énergie d'excitation E\*. Cette énergie est calculée à la fin de la phase dynamique. Cela veut dire que les modèles dynamiques de PHITS, FLUKA et MCNP ne sont pas en accord concernant le calcul de E\*. On remarque que cette énergie dépend du calcul de la thermalisation et de l'émission des particules pendant la phase dynamique. En règle générale, si l'on observe des écarts notables dans la partie de plus basse énergie entre les spectres calculés on trouve également des divergences non-négligeables à la partie de très haute énergie.

2) Dans l'expérience <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C, aussi bien le flux que la forme de la partie très basse en énergie (jusqu'à 10 MeV) de PHITS sont très différents de ceux de FLUKA. FLUKA est plus proche des mesures. Ce comportement n'est pourtant pas observé dans d'autres expériences même dans celle de <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb. On considère que cette différence vient du traitement de l'évaporation de neutrons dans PHITS. L'interaction du faisceau de <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon) sur une cible de <sup>nat</sup>C ne produit essentiellement que des noyaux chauds légers. Or le principe de Weisskopf-Ewing n'est pas adapté pour simuler la désexcitation de ces noyaux à cause d'une différence importante entre leurs niveaux d'énergie (cf. chapitre 2). C'est pourquoi, le calcul de FLUKA est plus correct car il utilise un modèle de cassure nucléaire (Fermi Breakup). L'utilisation du modèle de multi fragmentation statistique dans PHITS n'améliore pourtant pas la qualité de la simulation de l'émission de neutrons, comme ce qui est constaté par [Ogawa-13].

3) Même si les modèles de désexcitation statistique de MCNP sont similaires à ceux de PHITS et de FLUKA, ce code sous-estime systématiquement de façon importante la partie

basse énergie du spectre. Le calcul de thermalisation et d'émission des particules dans la phase dynamique de MCNP s'avère donc moins précis. Cela a déjà été discuté dans le chapitre 2 concernant les limites des modèles cascades nucléaires. On observe en outre que plus l'angle est petit plus l'intervalle énergétique de sous-estimation est étendu (par exemple pour <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C à 0° MCNP sous-estime le flux jusqu'à 80 MeV, tandis qu'à 105°, la zone de sous-estimation s'étend jusqu'à une dizaine de MeV). Notre explication de ce phénomène est que les modèles de désexcitation statistique considèrent que les neutrons sont émis isotropiquement le référentiel du centre de masse. L'énergie de neutrons change lorsqu'on la convertit à la référence du laboratoire (les neutrons émis aux angles avant reçoivent une vitesse positive supplémentaire du faisceau et vice versa). C'est pourquoi même si MCNP sous-estime systématiquement d'un même niveau l'émission des neutrons à l'équilibre on la voit plus clairement aux petits angles.

4) Le manque de neutrons à basse énergie du MCNP est aussi expliqué par le fait que le modèle cascade LAQGSM ne prend pas en charge les réactions nucléaires des ions de moins de 10 MeV/nucléon.

Dans la partie de haute énergie des spectres, les écarts entre les codes de calcul sont plus marquants aux angles avant ( $\theta \le 30^{\circ}$ ). FLUKA reproduit mieux les résultats expérimentaux des trois expériences ( $^{32}S(50 \text{ MeV/nucléon})+^{nat}Cu$ ,  $^{58}Ni(74,5 \text{ MeV/nucléon})+^{nat}Nb$  et  $^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+^{nat}C)$ . L'expérience  $^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+^{nat}Nb$  est mieux reproduite par PHITS. MCNP est en divergence systématiques avec toutes les expériences.

Nous avons proposé quelques pistes d'explications de tels comportements :

- La bonne reproduction de la partie haute énergie du spectre de neutrons par FLUKA confirme encore une fois la qualité du modèle dynamique BME du FLUKA. L'accord entre FLUKA et nos mesures est même meilleur que celui présenté dans certains exemples de validation « benchmarking » publiés par la collaboration FLUKA. On ne comprend cependant pas pourquoi la capacité de prédiction de FLUKA diminue dans le cas de l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb. Toutefois, de façon générale, il est raisonnable de considérer que l'émission des particules lors du pré-équilibre produit par les faisceaux de haute énergie (dans la gamme de nos expériences de haute énergie) par le modèle BME de FLUKA est correcte.
- Concernant PHITS, on trouve dans l'étude de [Satoh-07], que PHITS sous-estime le flux de neutrons d'une énergie intermédiaire (quelques dizaines de MeV jusqu'à l'énergie par nucléon du faisceau). Selon l'auteur, le modèle dynamique JQMD ne prend pas en compte la dépendance du potentiel nucléaire en fonction de l'impulsion. Ce potentiel peut augmenter la répulsion entre les nucléons pendant la phase dynamique et entraîner ainsi l'émission de neutrons supplémentaires. On observe nettement ce comportement dans nos deux expériences de <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu et <sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb. Dans les deux expériences avec le faisceau de <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon), il est seulement observé à 0° mais avec une moindre ampleur. Dans les expériences de basse énergie (~10 MeV/nucléon), l'énergie du faisceau se situe dans le domaine énergétique dominé par les désexcitations statistiques, ce qui rend impossible l'observation de tel comportement.

- On peut également encore une fois faire un lien entre les deux parties du spectre : basse et haute énergie. On trouve que plus le modèle JQMD sous-estime l'émission de neutrons d'énergie élevée plus le modèle GEM surestime l'évaporation statistique de neutrons.
- Il est également à remarquer que ce comportement de PHITS n'est pas non plus systématiquement observé dans toutes les expériences de [Satoh-07]. C'est pourquoi, on n'arrive pas à comprendre sa systématique.
- On remarque également que MCNP ne reproduit pas le spectre expérimental à haute énergie. Il a tendance à surestimer le flux. La surestimation est notamment importante dans les deux expériences avec le faisceau le plus léger <sup>12</sup>C(95MeV/nucléon). Ce comportement est également observé dans des études similaires [Ronningen-10] et [Satoh-11]. Cette mauvaise reproduction serait issue du principe de traitement des collisions nucléaires dans MCNP. Comme expliqué dans le chapitre 2, il n'est en effet pas raisonnable de considérer l'interaction pendant la phase dynamique de deux noyaux lourds comme des simples cascades nucléaires. Cette considération a un sens seulement lorsque l'énergie du faisceau est élevée. Les développeurs de MCNP ont recommandé d'ailleurs de ne pas l'utiliser pour simuler les réactions des faisceaux de moins d'environ 100 MeV/nucléon [Mashnik-15].

# 9.2 Comparaison avec le modèle du SPR/GANIL

# 9.2.1 Description du modèle SPR

Le Service de Protection contre les Rayonnements (SPR) du GANIL utilise un modèle empirique pour estimer le rendement neutronique des réactions d'ions lourds. Ce modèle est intégré dans un fichier Excel qui est appelé en interne du GANIL le « Code SPR ». Ce modèle est construit sur la base des données expérimentales d'émission de neutrons secondaires étudiées par M. Langevin dans les années 80 [DIR/SQ 001-C].

Les formules du modèle SPR sont élaborées en fonction de l'énergie du faisceau incident. Les formules sont spécifiques pour chaque domaine d'énergie ( $E_{faisceau}$ <30 MeV/nucléon et 30 MeV/nucléon<E<sub>faisceau</sub><100 MeV/nucléon). Les détails sur les formules du code SPR sont présentés [DIR/SQ 001-C]. Le code SPR permet de calculer quatre facteurs :

- Taux d'émission totale de neutrons,
- Forme de la distribution angulaire,
- Atténuation dans du béton,
- Dose équivalente.

Le modèle du SPR calcule la production de neutrons de toutes les énergies. Cependant, dans nos expériences, quel que soit la technique de mesure (Activation ou ToF), le spectre expérimental a toujours deux seuils (inférieur et supérieur en énergie). Nos mesures ne couvrent pas non plus tous les angles entre 0° et 180°. Afin d'estimer le flux total mesuré on doit :

Extrapoler le spectre vers le domaine d'énergie inférieure au seuil bas en supposant que le flux est nul à 0 MeV,

- Utiliser l'extrapolation du programme de déconvolution GanUnfold pour estimer la contribution des neutrons de plus haute énergie que le seuil supérieur pour la partie activation et négliger cette contribution pour la partie ToF,
- Ajuster une fonction (gaussienne, lorentzienne) sur la distribution angulaire du flux expérimental intégré en énergie.

Il n'est pas possible dans ce travail d'estimer les incertitudes associées à cette méthode de calcul du flux total de neutrons. Toutefois, l'objectif de la méthode n'est pas de calculer exactement le rendement neutronique mais seulement d'avoir une idée globale sur l'ordre de grandeur d'écart entre les mesures et le modèle SPR.

# 9.2.2 Taux d'émissions total de neutrons

Le tableau 9.1 ci-dessous présente les taux d'émissions total de neutrons en fonction de l'expérience (Mesure (Activation, ToF), Calcul (FLUKA, PHITS et le modèle du SPR)). MCNP n'est pas inclus pour les raisons citées précédemment.

On s'intéresse tout d'abord aux faisceaux de basse énergie ( $E_{faisceau} \leq 10 \text{ MeV/nucléon}$ ). On trouve que les codes Monte-Carlo reproduisent assez bien le taux d'émission totale de neutrons (écart de moins d'un facteur 2 pour PHITS et d'un facteur 3 pour FLUKA), avec globalement une surestimation des flux calculés par rapport aux mesures. Ce n'est pas le cas avec le modèle SPR. Le modèle surestime systématiquement et de manière importante le flux de neutrons. Plus le faisceau est lourd et de basse énergie, plus l'écart entre le modèle SPR et l'expérience devient significatif. On trouve jusqu'à un facteur 100 pour l'expérience <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu. Cet écart important ne peut pas être expliqué par des incertitudes liées à la méthode de calcul du flux total expérimental. On trouve donc une limite concernant la capacité de prédiction du taux d'émission de neutrons à cette énergie du code SPR.

Pour les faisceaux d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon, la situation est nettement améliorée. Tous les codes (FLUKA, PHITS et SPR) reproduisent très bien la mesure expérimentale. Le rapport calcul/mesure reste systématiquement de moins d'un facteur 2. Le modèle de SPR peut être donc validé à ces énergies.

	Taux de production totale de neutrons (neutrons/ion incident)				
Réaction	Modèle SPR	PHITS	FLUKA	Exp-Act	Exp-ToF
$^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/A}) + ^{nat}Cu$	1,26E-03	1,43E-04	1,40E-04	7,26E-05	6,34E-05
$^{208}$ Pb(6,25 MeV/A)+ $^{nat}$ Cu	1,60E-02	1,32E-04	3,79E-04	1,11E-04	
$^{78}$ Kr(10,5 MeV/A)+ $^{nat}$ Cu	8,91E-03	2,61E-03	2,57E-03	1,55E-03	1,62E-03
$^{36}S(12 \text{ MeV/A}) + ^{nat}Cu$	7,36E-03	6,41E-03	5,27E-03	3,58E-03	
$^{32}$ S(50 MeV/A)+ $^{nat}$ Cu	1,15E-01	7,26E-02	7,96E-02	7,17E-02	5,17E-02
<sup>58</sup> Ni(74,5 MeV/A)+ <sup>nat</sup> Nb	3,00E-01	1,95E-01	2,07E-01	1,47E-01	7,86E-02
$^{12}C(95 \text{ MeV/A})+^{\text{nat}}Nb$	4,24E-01	3,83E-01	4,31E-01	3,22E-01	1,89E-01
$^{12}C(95 \text{ MeV/A})+^{\text{nat}}C$	4,08E-01	2,68E-01	2,08E-01	2,25E-01	1,89E-01

Tableau 9.1 : Taux de productions totales de neutrons

## 9.2.3 Distribution angulaire

Dans cette section, on compare nos mesures aux calculs de la distribution angulaire de neutrons avec le modèle SPR. À titre d'indication, on présente également les calculs de PHITS. Afin de faciliter la comparaison, on normalise le flux de neutrons par rapport à celui à 15°.

La figure 9.9 présente la comparaison avec les quatre faisceaux de moins de 10 MeV/nucléon. On trouve que pour les deux expériences de cinématique directe ( $^{24}Mg(4,6 MeV/nucléon+^{nat}Cu)$ ) et  $^{36}S(12 MeV/nucléon)+^{nat}Cu)$ , la forme de la distribution angulaire est assez bien reproduite. Pourtant ce n'est pas le cas pour les deux autres expériences où le faisceau est plus lourd que la cible : la forme calculée par le modèle SPR s'avère complètement inexacte. Ce constat est compréhensible car le modèle de SPR considère que la distribution des neutrons émis par des faisceaux de moins de 30 MeV/nucléon dépend seulement de l'énergie du faisceau. Le rapport masse-faisceau/mass-cible n'est pas pris en compte.

Pour les faisceaux d'énergie de plus de 30 MeV/nucléon, on trouve que les formules de SPR reproduisent assez bien la distribution angulaire expérimentale pour toutes les expériences (cf. figure 9.10). Ce constat est compréhensible car à cette énergie, le modèle du SPR prend en compte le rapport de masse entre l'ion incident et le noyau-cible pour le calcul de distribution angulaire.



Figure 9.9 : Distribution angulaire de neutrons ( $E_{faisceau}$  inférieure ou égale à environ 10 MeV/nucléon)



Figure 9.10 : Distribution angulaire de neutrons (Efaisceau bien supérieure à 10 MeV/nucléon)

#### 9.2.4 Calcul de doses

Le modèle du SPR ne calcule pas le spectre en énergie de neutrons mais seulement le flux total intégré en énergie. Il considère donc que pour chaque flux de neutrons de 1 neutrons/cm<sup>2</sup>/s, la dose équivalence correspondante est 2  $\mu$ Sv/h. Or, selon CIPR [Petoussi-Henss-10] ce facteur de conversion flux-dose dépend également de l'énergie de neutrons. Dans nos expériences, puisque les neutrons sont essentiellement produits dans la gamme d'énergie entre 1 MeV et 100 MeV, l'utilisation d'un facteur de conversion constant et égal à 2  $\mu$ Sv/h/neutrons/cm<sup>2</sup>/s par le modèle SPR correspond à une surestimation pouvant atteindre 2 (cf. figure 9.11).



Figure 9.11 : Facteur de conversion Flux de neutrons-dose équivalente

Afin de comprendre la contribution de chaque composant du calcul du code SPR (taux d'émission, distribution angulaire, conversion flux-dose) sur le résultat de dose final, on calcule le rapport de la dose estimée en convoluant les spectres expérimentaux pour les deux expériences (<sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu et <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C avec la courbe de conversion flux-dose du CIPR et le résultat du modèle de SPR dans le tableau 9.2. Afin de simplifier la comparaison, seule la dose estimée avec les spectres mesurés par ToF est présentée.

Pour l'expérience <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, on trouve que, pour tous les angles, la dose calculée par le modèle SPR est systématiquement plus élevée d'un facteur 20 que celle de la mesure. Selon nous, ce facteur est principalement dû à l'écart entre les taux d'émission totale de neutrons dans  $4\pi$  issus respectivement de la mesure et des calculs par le modèle SPR ( $\frac{R_{24Mg+Cu-SPR}}{R_{24Mg+Cu-ToF}} = 17$ ). L'écart supplémentaire est produit par l'incertitude sur la forme de la distribution angulaire et sur le facteur de conversion flux-dose du modèle SPR.

Concernant l'expérience  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}C$ , le rapport entre la dose SPR et la dose expérimentale est nettement réduit. Il s'élève à un facteur 3. Comme dans le cas de

l'expérience <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, l'écart entre les taux d'émission totale de neutrons, calculé et mesuré, explique une grande partie le rapport de dose ( $\frac{R_{12C+C-SPR}}{R_{12C+C-ToF}}$  = 2). L'écart supplémentaire est donc également généré par la différence de forme de la distribution angulaire et du facteur de conversion flux-dose entre le modèle SPR et l'expérience.

	Rapport SPR/Exp-ToF			
Expérience	Angle			
	15°	30°	60°	
$^{24}$ Mg(4,6 MeV/A)+ $^{nat}$ Cu	19,3	22,1	25,6	
$^{12}C(95 \text{ MeV/A}) + ^{nat}C$	3,7	3,4	2,5	

Tableau 9.2 : Rapport de dose sans atténuation entre le modèle SPR et les mesures ToF

## 9.2.5 Atténuation de neutrons

Il est non seulement utile pour l'exploitation d'une installation nucléaire de connaître la dose de neutrons produits par une combinaison ion-incident/noyau-cible spécifique mais également de connaître l'atténuation de cette dose en fonction de l'épaisseur du blindage de protection. La connaissance de cette atténuation est en effet importante pour l'exploitation et pour le dimensionnement des murs de protections biologiques de l'accélérateur.

Le modèle du SPR utilise des facteurs d'atténuation dans le béton (ordinaire et baryté) évalués à partir des mesures expérimentales effectués par les équipes du GANIL dans les années 80. Pour les faisceaux d'énergie de moins de 30 MeV/nucléon, ce facteur dépend, dans le modèle SPR, uniquement de l'énergie du faisceau. Pour les faisceaux d'énergie supérieure à cette limite, non seulement l'énergie du faisceau mais également la distribution angulaire sont prises en compte. Ces facteurs sont considérés comment étant constants dans le modèle. Ils ne varient pas en fonction de l'épaisseur de béton.

Afin de connaître l'effet de l'atténuation du modèle SPR, on a réalisé un calcul simple. On étudie la dose de neutrons reçue derrière une épaisseur de béton de 25 cm pour les deux réactions :  ${}^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}Cu$  et  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}C.$ 

Les spectres mesurés sont transportés à travers cette épaisseur grâce au code de calcul PHITS. On rappelle que le transport de neutrons dans PHITS est effectué en utilisant les données nucléaires pour les neutrons de moins de 20 MeV et par le modèle INCL 4.6 pour les neutrons d'énergies supérieures. Le calcul du modèle SPR est effectué en considérant le facteur d'atténuation correspondant à l'énergie du faisceau. Pour les faisceaux d'énergie de plus de 30 MeV/nucléon, le facteur d'atténuation dépend également de l'angle d'émission (pour tenir en compte de la distribution angulaire de l'énergie de neutrons).

Pour l'expérience avec le faisceau <sup>24</sup>Mg, on trouve que le rapport entre la dose calculée par le modèle SPR et celle issue de l'expérience change après l'atténuation. Il se réduit d'un facteur 20 à un facteur de 7.

Concernant la réaction plus énergétique de  ${}^{12}C(95 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}C$ , le rapport entre le modèle SPR et celui de l'expérience ne varie pas beaucoup. Il passe d'un facteur 3 à un facteur 2 en moyenne.
À travers ces deux comparaisons, on trouve une source d'incertitude supplémentaire liée à la base de données de facteur d'atténuation utilisé par le modèle du SPR. Tandis que cette source n'est en général pas significative pour les faisceaux de plus de 30 MeV/nucléon, elle n'est pas du tout négligeable pour des faisceaux d'énergie inférieure.

Les facteurs d'atténuation utilisés par le modèle du SPR semblent être plus élevés que ceux calculés par le code PHITS pour cette géométrie de test. On rappelle que cette comparaison est effectuée avec une géométrie simple. L'écart dans les géométries réelles de l'installation entre le modèle du SPR et l'expérience serait donc plus important et nécessite d'autres études supplémentaires.

Cet écart dans le calcul d'atténuation du modèle SPR par rapport à des codes de transport a été également observé dans une étude similaire avec le code FLUKA [Agosteo-04].

	Rapport SPR/Exp-ToF		
Expérience	Angle		
	15°	30°	60°
<sup>24</sup> Mg(4,6 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> Cu	6,9	7,2	8,0
<sup>12</sup> C(95 MeV/nucléon)+ <sup>nat</sup> C	2,7	1,8	1,5

# 9.2.6 Bilan de la comparaison

Les comparaisons ci-dessus ont montré des limites plus ou moins importantes du modèle de calcul radiologique employé par le SPR. Les limites concernent toutes les étapes de calcul : (taux d'émission totale, distribution angulaire, conversion flux-dose et atténuation dans du béton). De façon générale, l'écart entre le modèle SPR et nos expériences est plus important concernant les faisceaux de moins de 30 MeV/nucléon (jusqu'à un facteur 100). Les formules utilisées par le modèle SPR pour cette partie du faisceau s'avèrent inexactes. Pour les réactions à haute énergie, ce rapport varie autour d'un facteur de 3 et ne dépasse pas un facteur de 5.

La comparaison du calcul d'atténuation de dose avec une géométrie simple montre qu'avec cette géométrie d'étude, les facteurs d'atténuations adoptés dans le modèle SPR sont moins élevés que ceux calculés par PHITS. Il est donc intéressant d'étudier l'évolution de ce comportement en fonction de l'épaisseur comme ce qui a été fait ailleurs pour certaines expériences à 100 MeV/nucléon [Agosteo-04].

De toute façon, on trouve que la dose calculée par le modèle SPR est dans tous les cas nettement plus importante que celle issue de notre expérience. D'un point de vue purement pratique, il est raisonnable de conclure que la radioprotection et la sûreté nucléaire liées aux neutrons secondaires au GANIL sont garanties. Cependant, la surestimation de façon excessive de la production de neutrons peut provoquer trois problématiques principales :

La première problématique concerne le calcul de l'intensité maximale I<sub>max</sub> du faisceau autorisé à envoyer dans chaque salle du GANIL actuel et également dans la salle S<sup>3</sup> du SPIRAL 2 Phase 1. L'I<sub>max</sub> est calculée par le SPR du GANIL avant chaque expérience en utilisant le code SPR. La surestimation de l'I<sub>max</sub> pénaliserait les expérimentateurs en leur fournissant une intensité plus faible que celle que permet la réglementation en radioprotection.

- Dans le cadre du Réexamen de sûreté du GANIL, le projet Fortification Blindage I<sub>max</sub> (FBI) est élaboré afin de garantir un débit équivalent de dose inférieure à 2 mSv/h derrière les protections radiologiques en toutes circonstances (fonctionnement normal et incident). Le SPR utilise le code SPR pour estimer l'atténuation de neutrons derrière les murs de protection. Toutefois, comme ce que l'on a vu dans la section 9.2.4, l'atténuation des neutrons calculés par le code SPR est en désaccord avec les codes de simulations Monte-Carlo (PHITS, FLUKA). Cela peut donc induire une erreur systématique supplémentaire sur le calcul d'atténuation dans le cadre du projet FBI.
- Le code SPR est également utilisé pour le dimensionnement et notamment l'exploitation de l'installation SPIRAL 2, notamment pour la salle S<sup>3</sup> où des faisceaux d'ions lourds seront envoyés (A<sub>faisceau</sub><58; E<sub>faisceau</sub><14,5 MeV/nucléon). Le dimensionnement des murs et la conception de la géométrie de protection peut connaître donc des incertitudes assez importantes, car on rappelle que le modèle SPR ne fonctionne pas bien notamment pour les énergies de moins d'environ 10 MeV/nucléon.

# **10.** Conclusions et perspectives

## 10.1 Conclusions

Les travaux de cette thèse s'inscrivent dans le cadre du programme expérimental de mesure neutronique Thick Target Neutron Yields (TTNY) conduit au GANIL depuis 2015. Le but principal de ce programme est de produire de nouvelles données nucléaires liées à la production de neutrons par l'interaction des faisceaux d'ions lourds sur cible épaisses. Ces données sont nécessaires à la fois pour l'exploitation des accélérateurs et pour la comparaison avec les calculs des codes de simulations nucléaires. Pendant cette thèse, huit expériences ont été réalisées :

- > <sup>24</sup>Mg(4,6 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,
- >  $^{208}$ Pb(6,25 MeV/nucléon)+ $^{nat}$ Cu,
- $\rightarrow$  <sup>78</sup>Kr(10,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,
- > <sup>36</sup>S(12 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,
- > <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu,
- > 58Ni(74,5 MeV/nucléon)+ $^{nat}$ Nb,
- > <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb,
- $\geq$  <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C,

Pour mesurer les neutrons secondaires émis lors des réactions d'ions lourds, on a utilisé deux méthodes de mesures indépendantes : Activation et Temps de vol (ToF), ce qui améliore la confiance dans le résultat final et permet également d'apprécier la limite de chacune de deux méthodes.

La méthode d'activation est traditionnellement utilisée pour mesurer des neutrons de basse énergie ( $\leq 20$  MeV comme dans des réacteurs nucléaires). Mais elle a été également adoptée par certaines équipes pour mesurer des neutrons de plus haute énergie (>20 MeV), que l'on peut citer comme [Lhersonneau-07], [Lhersonneau-09] et [Luciano-12]. Notre méthode d'activation développée dans ce travail est basée sur des réactions neutroniques à seuil. Ces réactions permettent de détecter les neutrons d'une large gamme en énergie de neutrons (jusqu'à ~ 70 MeV). La méthode d'analyse permet de calculer les taux de réaction correspondant à chaque réaction à seuil. Comme la mesure d'activation est une mesure intégrale, en s'inspirant de diverses études précédentes, on a développé un algorithme de déconvolution. Cet algorithme permet de reconstruire un spectre en énergie de neutrons ainsi que ses incertitudes associées (propagation des incertitudes). Il a été validé par comparaison avec des résultats connus ([Lhersonneau-09]). On a ensuite implémenté l'algorithme de déconvolution dans une interface Java (GanUnfold) Cette interface facilite nettement le travail de déconvolution et l'analyse du spectre déconvolué.

La deuxième technique utilisée est le temps de vol. Elle consiste à mesurer le temps de vol de neutrons entre la cible et le détecteur et déduire ensuite directement le spectre en énergie sans faire appel à la déconvolution. Grâce à l'efficacité de détection et la capacité de discrimination neutrons/ $\gamma$  et neutrons/particules chargées, on a pu mesurer un intervalle énergétique très large de neutrons (jusqu'à 200 MeV).

En même temps avec l'utilisation et le développement de deux techniques de mesure de neutrons, notre travail consiste également à la mise en place d'un dispositif expérimental. Ce

dispositif a permis l'irradiation de la cible par un faisceau d'ion incident et l'irradiation des feuilles d'activation par des neutrons secondaires.

L'intensité du faisceau a été mesurée et suivi avec deux instruments : Transformateur d'intensité et Cage de Faraday. L'évolution de l'intensité dans le temps a été également suivie en ligne de façon indirecte à l'aide d'une balise de neutrons. L'ensemble du dispositif d'irradiation répond d'ailleurs à plusieurs contraintes : mécaniques, thermique, radioprotection...

Nous avons également confronté les résultats expérimentaux avec des prédictions de codes de transport largement utilisés auprès des installations nucléaires, PHITS, FLUKA et MCNP. Chacun de ces codes présente une approche différente de la modélisation de la phase dynamique des réactions nucléaires d'ions lourds. On a utilisé ces codes pour modéliser les réactions d'ions lourds et calculer le spectre de neutron doublement différentiel. Le code PHITS a été également utilisé pour simuler le transport de neutrons dans la salle d'expérience afin de corriger l'effet de distorsion du spectre au niveau des points de détection.

Pour quasiment toutes les expériences effectuées, nous avons comparé systémiquement les spectres de neutrons obtenus par les deux méthodes, activation et ToF, entre elles ainsi qu'entre nos mesures et les calculs des codes de transports et entre nos mesures et des mesures publiées précédemment par d'autres équipes.

#### Faisceaux d'énergie de moins 10 MeV/nucléon :

Les spectres expérimentaux obtenus par les deux méthodes indépendantes, activation et ToF, se retrouvent en très bon accord (forme, flux) pour toutes les mesures, ce qui valide la méthode d'activation et tout particulièrement celle de la déconvolution.

En ce qui concerne les prédictions théoriques, on trouve que pour les trois réactions  $^{24}Mg(4,6 \text{ MeV/nucléon})$ ,  $^{78}Kr(10,5 \text{ MeV/nucléon})$  et  $^{36}S(10,5 \text{ MeV/nucléon})+^{nat}Cu$ , les deux codes PHITS et FLUKA sont en très bon accord entre eux et sont capable de reproduire assez correctement l'évaporation statistique de neutrons (dominant dans la partie basse énergie du spectre expérimental ( $E_{neutron} \leq 20 \text{ MeV}$ )). La qualité des modèles d'évaporation de FLUKA et de PHITS est donc validée pour cette gamme d'énergie du faisceau.

Pourtant, ce n'est pas tout-à-fait le cas pour la partie de plus haute énergie de neutrons émis ( $E_{neutron} \ge 30 \text{ MeV}$ ) où la contribution des neutrons de pré-équilibre commence à être non négligeable. L'influence de la simulation des modèles dynamique des codes est donc plus importante. À cette énergie, FLUKA a tendance à surestimer systématiquement le flux de neutrons alors que PHITS reste plus proche des mesures. Cet écart est dû au traitement de l'émission pré-équilibre par la base de données du modèle dynamique BME du FLUKA. Dans cette base, les réactions représentatives sont plus énergétiques et impliquent des noyaux (projectile et cible) moins lourds que celles étudiées dans nos expériences.

Pour l'expérience d'un faisceau très lourd de la même gamme d'énergie <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu, l'écart entre les codes et la mesure devient plus significatif. Seul PHITS peut reproduire assez bien les spectres expérimentaux. FLUKA surestime considérablement (jusqu'à un ordre de grandeur) les flux. Cet écart est issu de la modélisation de l'émission de neutrons « prompts » par le modèle de fission de FLUKA.

#### Faisceaux d'énergie supérieure à 10 MeV/nucléon :

Contrairement aux expériences effectuées avec les faisceaux de moins de 10 MeV/nucléon, à cette énergie du faisceau, on trouve certaines divergences non négligeables entre le spectre mesuré par activation et par ToF. Elles touchent principalement la partie basse énergie ( $E_{neutron} \leq 20$  MeV) du spectre où le flux mesuré par activation est systématiquement plus élevé que celui de ToF. On considère que la mesure de ToF est plus significative car l'activation est confrontée à plusieurs limites pour les expériences de haute énergie : distorsion importante du spectre, incertitudes difficilement évaluables des sections efficaces des réactions à haut seuil et des taux d'embranchements des états métastables.

En ce qui concerne la comparaison calcul-mesure, globalement, on en peut tirer quatre constats :

- En général, FLUKA reproduit correctement les spectres de neutrons pour l'ensemble des expériences. Cela est systématiquement vrai pour tous les angles et toutes les énergies de neutrons.
- PHITS arrive également à reproduire les spectres expérimentaux pour toutes les expériences. Il est cependant en divergence avec les mesures aux angles avant (θ≤30°) de deux expériences (<sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu et <sup>58</sup>Ni(74,5 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb et à la partie basse énergie de l'expérience <sup>12</sup>C(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C. Il prévoit pourtant un spectre en meilleur accord avec les mesures que celui de FLUKA pour l'expérience <sup>12</sup>C(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Nb.
- À cause de la limite énergétique du modèle cascade LAQGSM du MCNP (Ce modèle n'est pas adapté pour simuler la phase dynamique des ions lourds de moins d'environ 100 MeV/nucléon), les spectres obtenus avec MNCP connaissent des divergences importantes avec les mesures. En général, il prévoit un flux de neutrons nettement moins important que la mesure jusqu'au milieu du spectre et un flux plus élevé que la mesure pour la partie plus énergétique
- Nos mesures (activation ou ToF) de l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C sont plus proches des calculs (FLUKA, PHITS) que ceux effectués dans une réaction similaire de [Satoh-07].

Comme les modèles de désexcitations statistiques sont très similaires entre les trois codes, les écarts entre calculs et entre calculs et mesures sont dus essentiellement à la simulation de la phase dynamique de la réaction. Parmi eux, FLUKA fonctionne très bien car les réactions étudiées dans ce travail figurent parmi la zone d'interpolation de réactions représentatives étudiées par la théorie de BME. Celui de MCNP comme indiqué par les développeurs, n'est pas adapté pour les ions lourds de l'énergie de nos expériences.

Le désaccord entre PHITS et mesures pour la partie de basse énergie de l'expérience  ${}^{12}C(50 \text{ MeV/nucléon})+{}^{nat}C$  est issu de la non-adaptation du modèle de désexcitation statistique de PHITS pour les noyaux légers.

Les écarts calcul-mesure peuvent être réduits en faisant évoluer des modèles physiques implémentés dans des codes. Certaines propositions d'évolution de code seront présentées dans la section suivante.

Grâce aux données expérimentales obtenues dans ce travail, on a pu aussi évaluer la capacité de deux modèles empiriques présents dans le code SPR utilisés au GANIL (un pour les faisceaux de moins de 30 MeV/nucléon et l'autre pour ceux entre 30 MeV/nucléon et 100 MeV/nucléon). La comparaison entre les mesures et les codes SPR nous montre plusieurs insuffisances du code SPR : surestimation systématique du taux de productions de neutrons et du facteur de conversion flux-dose, distribution angulaire inexact pour les réactions de cinématique inverse, doute sur la qualité du calcul de l'atténuation ... Ces limites sont plus importantes pour la partie de basse énergie du faisceau où les formules utilisées par le code SPR sont moins bien élaborés.

La dose estimée par le code SPR s'avère donc systématiquement bien plus importante que celle issues de l'expérience, ce qui peut avoir des conséquences sur l'opération ou sur le dimensionnement de certains murs de protections.

## **10.2 Perspectives**

#### 10.2.1 Expériences

En ce qui concerne les perspectives du programme expérimental TTNY, on propose de continuer la mesure de rendement neutronique avec des faisceaux représentatifs du fonctionnement de l'installation GANIL-SPIRAL1 actuelle et de la future installation SPIRAL2. Après avoir étudié les différentes possibilités, on suggère une liste des expériences potentielles à réaliser dans le futur au GANIL. On note que cette liste n'est pas exhaustive et nécessite donc des études et discussions supplémentaires.

Faisceaux :

- <sup>208</sup>Pb, <sup>238</sup>U (~10 MeV/nucléon<E<sub>faisceau</sub><~30 MeV/nucléon). Ces deux faisceaux très lourds sont souvent utilisés dans des expériences de fusion-évaporation, fusion-fission avec le spectromètre VAMOS (<sup>238</sup>U) et dans des applications industrielles (<sup>208</sup>Pb). La mesure de l'émission de neutrons avec ces faisceaux sera très utile pour l'étude des modèles de fission. On rappelle que ces modèles de fission sont en divergence notable avec les mesures d'une de nos expériences (cf. chapitre 9).
- <sup>58</sup>Ni (≤10 MeV/nucléon). Ce faisceau à basse énergie sera utilisé au sein de l'installation SPIRAL1 pour produire des noyaux radioactifs avec le mécanisme de fusionévaporation. Il sera également le faisceau le plus lourd à être accéléré par le LINAC du SPIRAL2 vers la salle d'expérience de S<sup>3</sup>.
- <sup>40,48</sup>Ca, <sup>124,136</sup>Xe (~35 MeV/nucléon). Ces faisceaux seront utilisés pour des expériences dans la campagne de mesure d'INDRA-FAZIA. En dehors des objectifs traditionnels du programme TTNY, la mesure de la production de neutrons fournira également une donnée complémentaire pour des études de la dynamique et de la thermodynamique de la matière nucléaire de la collaboration d'INDRA-FAZIA.

Des mesures du rendement neutronique sur des cibles épaisses comme celles effectuées dans le programme TTNY simulent l'environnement neutronique réel dans l'installation et permettent une comparaison avec des codes de transports. D'autre part, on pense également qu'il est nécessaire de réaliser des mesures supplémentaires de sections efficaces doublement différentielles de production de neutrons sur des cibles minces avec les faisceaux caractéristiques du GANIL. Dans les cibles minces, les neutrons sont produits seulement avec une partie de l'énergie de l'ion incident, ce qui permet donc de voir plus clairement la contribution de chaque mécanisme dans les réactions. Il sera intéressant également de mesurer les autres particules,  $\gamma$  et fragments en coïncidence avec la détection de neutrons. On aura donc des données complémentaires pour mieux comprendre les mécanismes de réactions ainsi que la simulation de chaque mécanisme dans des codes de transport. Des études supplémentaires seront nécessaires pour définir les réactions intéressantes à réaliser (en considérant celles déjà étudiés dans la littérature) ainsi que la configuration expérimentale à adopter dans de telles expériences.

Les expériences de mesure avec des cibles minces peuvent être réalisées au GANIL dans la salle G2 où un dispositif dédié à ce type de mesure est en place (arrêt de faisceau spécifiquement développé pour les mesures de cibles minces (cf. [Divay-18])). Pour ce type d'expériences, vu le faible taux de production de neutrons, seule la méthode du temps de vol sera réalisable. On remarque également que pour les mesures avec des cibles minces, un temps de faisceau plus important que celui dédié à la mesure avec des cibles épaisses est nécessaire pour garantir un niveau adéquat de la statistique.

Dans nos huit expériences effectués dans le cadre de la thèse, on a également mesuré les spectres  $\gamma$  des cibles après l'irradiation par les faisceaux primaires. L'analyse de ces spectres permettra de calculer le taux de production des noyaux résiduels par l'interaction de l'ion incident. Ces taux serviront d'une à l'exploitation de l'installation et d'autre part à la qualification de la simulation des réactions d'ions lourds par les codes de transports Monte-Carlo utilisés dans la thèse. Ils permettront également de mieux comprendre le comportement des modèles physiques dans ces codes.

## 10.2.2 Techniques de mesures

Après avoir étudiés les inconvénients et les limites de notre méthode expérimentale, on propose donc quelques pistes d'améliorations.

#### Mesure d'intensité

Pour les futures expériences, on propose de mesurer directement le courant du faisceau déposé sur la cible. C'est-à-dire que l'on développe un système de mesure de type cage de faraday avec la cible de la cage comme la cible de réaction nucléaire. Ce système une fois développé et calibré permettra de réduire les incertitudes dues à la mesure de l'intensité du faisceau. Avec ce système, il sera également possible de suivre l'évolution en directe l'intensité du faisceau au cours de l'expérience en complémentaire avec des instruments de mesures externe existants (TI, CF, Balise de neutrons). Cela donnera plus de redondances et confiance pour la mesure d'intensité.

#### Méthode d'activation

Dans l'avenir, on a besoin d'évaluer plus précisément les courbes de section efficaces et les taux d'embranchement des états métastables utilisés dans le calcul de déconvolution, notamment celles concernant les réactions à hauts seuils. Cette évaluation permettra également de mieux déterminer incertitudes associées.

Selon différentes discussions ayant eu lieu avec des experts de l'activation, il est possible de limiter le recours à l'utilisation du taux d'embranchement des états métastables en

réalisant autrement la mesure et l'analyse de la spectroscopie  $\gamma$  des feuilles d'activation. À cause du manque de temps, on n'a pas pu étudier cette option dans le cadre de la thèse.

Dans certaines mesures d'activation dans les expériences avec des faisceaux de haute énergie, on a appliqué une correction empirique du spectre déconvolué afin de mieux reproduire les taux de réaction expérimentaux. On propose d'inclure cette correction de façon automatique dans le programme GanUnfold et d'étudier ses incertitudes correspondantes.

On propose également de réduire l'épaisseur de la cible et celui de la bride dans les expériences avec des faisceaux de basse énergie où les particules chargées sont facilement arrêtées. Cette réduction diminuera la distorsion du spectre de neutrons et ainsi le seuil de détection correspondant.

#### Méthode du temps de vol

L'analyse du détecteur à 120° n'a pas pu être réalisée dans la thèse faute de la capacité de calcul d'efficacité pour le nouveau liquide scintillant EJ-309. On propose donc d'implémenter les courbes de production de lumière par différentes particules (p, d, t,  $\alpha$ ) et  $\gamma$  de l'EJ-309 dans le programme SCINFUL-QMD pour calculer les efficacités correspondantes. Ce travail sera également intéressant pour la communauté de mesure neutronique en général, car le liquide scintillant EJ-309 est de plus en plus utilisées grâce à la faible température du point d'éclair.

Afin de limiter la correction due à l'atténuation et à la diffusion de neutrons dans la salle d'expériences par la simulation, on peut réaliser deux mesures distinctes : une avec un écran (barre d'ombre) entre la cible et le détecteur et l'autre sans cet écran. La mesure avec l'écran permet de détecter seulement les neutrons du bruit de fond. En faisant la différence entre ces deux mesures, on peut obtenir le spectre de neutrons issus uniquement de la réaction directe dans la cible. Cette méthode expérimentale demande cependant un temps de faisceau nettement plus important.

En outre, on peut appliquer des tensions différentes sur les photomultiplicateurs des scintillateurs liquides pendant une même expérience afin de focaliser la mesure sur diverses gamme d'énergie de neutrons. Cela favorisera la discrimination neutrons/ $\gamma$  notamment à basse énergie. Le seuil de détection pourra donc bien diminuer.

## **10.2.3 Techniques de calculs**

On trouve dans le chapitre 9 que les calculs des codes de transport sont en meilleur accord avec les données expérimentales que ceux du modèle SPR. Le modèle SPR est systématiquement utilisé dans des calculs de dimensions et de détermination de l'intensité maximale fournie aux expérimentateurs ( $I_{max}$ ) au GANIL. Il est donc intéressant de le faire évoluer en fonction des résultats et des conclusions de cette thèse.

Par ailleurs, vu le temps de calcul très important d'une simulation de réaction d'ions lourds par des codes de transports Monte-Carlo pour atteindre une bonne statistique, il est nécessaire et utile de les implémenter dans un système de cluster adapté et puissant. Ce cluster devrait avoir un nombre de cœur de calcul important (des centaines de cœurs) afin d'accélérer les calculs et de réaliser plusieurs calculs en parallèles.

## **10.2.4 Modèle physique**

Après avoir comparé les résultats des codes de calcul avec les mesures dans le chapitre 9, même si les origines des écarts entre le calcul et la mesure ne sont pas complètement déterminées, on peut de toute façon proposer quelques pistes d'amélioration pour chacun des codes. On note que cette liste est incomplète et nécessite d'autres études plus profondes.

#### PHITS

Dans les expériences de haute énergie, on trouve que PHITS sous-estime généralement la production de neutrons à des angles avant ( $\theta \le 30^\circ$ ), ce qui est dû selon [Satoh-07] à la non-dépendance du potentiel nucléaire du moment pendant la réaction.

La version en développement JQMD 3.0 prend en compte la dépendance de la section efficace de collision en fonction de plusieurs facteurs (densité locale, énergie, angle d'émission). Cette dépendance est basée sur les travaux de G. Q. Li et R. Machledit [Li-94] et [Li-95].

Dans cette version, la section efficace de collision est en général plus élevée, pour toutes les collisions des noyaux légers et pour les premières collisions des noyaux plus lourds où le principe de Pauli n'est pas encore appliqué. Elle augmente le nombre de collisions pendant la phase dynamique de la réaction et ainsi l'émission des particules. Dans l'exemple de la réaction <sup>12</sup>C(100 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C (cible mince), le taux d'émission est augmenté de l'ordre de 30 % pour toutes les énergies de neutrons à un angle de 15°. Même si ce facteur de correction de 30 % ne semble pas assez important pour reproduire nos données expérimentales, il sera toujours intéressant de tester ce nouveau modèle sur l'ensemble de nos expériences effectuées afin de voir l'effet d'amélioration de la qualité de simulation.

Par ailleurs, on voit clairement dans l'expérience <sup>12</sup>C(95 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>C que la combinaison entre un modèle d'évaporation de Weisskopf-Ewing et un modèle de multi-fragmentation statistique ne permet pas de reproduire correctement l'émission des neutrons pendant la phase de désexcitation. Il est nécessaire d'implémenter un modèle statistique de type Fermi Break-up comme dans FLUKA pour mieux reproduire cette phase pour des noyaux légers (A $\leq$ 20).

## FLUKA

L'émission des particules (taux, spectre doublement différentiel) dans la phase dynamique de FLUKA dépend d'une base de réactions représentatives évaluées par la théorie de BME. On propose d'élargir cette gamme d'évaluation des réactions représentatives vers des systèmes de réactions de masse élevée et de basse énergie. Il est également utile de revoir l'algorithme d'interpolation et d'extrapolation utilisé pour déterminer l'émission de prééquilibre des systèmes de réactions ne figurant pas dans la base de données de BME.

Par ailleurs, la comparaison avec les données expérimentales dans l'expérience <sup>208</sup>Pb(6,25 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu montre que l'émission de neutrons prompts lors de la fission est considérablement surestimée par le modèle de fission de FLUKA. Cela indique une limite claire de ce modèle.

#### MCNP

Le modèle cascade nucléaire LAQGSM ne semble pas très adapté à simuler la phase dynamique des réactions de moins de 100 MeV/nucléon. Il prédit un spectre de neutron en grands écarts avec les résultats de toutes nos expériences. Il est donc nécessaire pour les développeurs de MCNP de le remplacer par un autre modèle plus adapté ou bien limiter son utilisation pour les énergies plus élevée que 100 MeV/nucléon.

# Annexe. Méthode de simulation de transport de neutrons

# 1. Méthode de reconstruction « Tranches sphériques »

Afin de reconstruire une source de neutrons, on doit préalablement connaître trois facteurs :

- La distribution angulaire du flux intégré sur l'énergie,
- > La distribution énergétique du spectre de neutrons pour chaque angle,
- Le rendement neutronique (le flux de neutrons intégré en énergie et en angle).

Dans nos expériences de mesure de neutrons, les détecteurs sont placés à différents angles par rapport à l'axe du faisceau. La figure A.1 présente le flux intégré en énergie mesurée par la méthode d'activation de l'expérience <sup>32</sup>S(50 MeV/nucléon)+<sup>nat</sup>Cu à chaque angle. Ce spectre prend en compte les effets de distorsion. Les détails sur la méthode de correction sont présentés et discutés auparavant dans la section 7.2.2.

On peut ajuster les points expérimentaux par une fonction lorentzienne. La fonction d'ajustement permet d'estimer le flux de neutrons à des angles où les mesures expérimentales ne sont pas disponibles.

Ce même exercice peut être également réalisé avec les flux de neutrons émis à chaque angle, calculé par les codes de transports.



Figure A.1 : Distribution du flux de neutrons en fonction d'angle

Les neutrons sont émis par le point de réaction dans une sphère (l'angle solide de  $4\pi$ ). Cette sphère dont le centre est le point de réaction peut être coupée par plusieurs plans parallèles. La tranche entre deux plans voient la cible avec un angle varie entre  $\theta$  +/- d $\theta$ . Dans la figure A.2 ci-dessous, l'angle AOC est  $\theta$  + d $\theta$ , l'angle BOC est  $\theta$  - d $\theta$  et DOC est  $\theta$ .



Figure A.2 : Segment de sphère

On considère que dans une tranche le flux de neutrons est constant :

$$\varphi_{\theta\pm\,d\theta}=\varphi_{\theta}$$

Puisque  $\theta$  commence à 0° et finit à 180°, la surface correspondant pour les deux extrémités (0° et 180°) de la sphère est calculée avec cette formule :

$$S_{\theta+d\theta} = 2\pi R^2 |(\cos(0) - \cos(d\theta))|$$

Où R est le rayon de la sphère.

La surface correspondant à chaque tranche entre deux extrémités est calculée avec la formule :

$$S_{\theta \pm d\theta} = 2\pi R^2 (\cos(\theta - d\theta) - \cos(\theta + d\theta))$$

Le flux total de neutrons par chaque tranche est égal à :

$$\varphi_{\theta \pm d\theta}(\frac{n}{ion}) = \varphi_{\theta \pm d\theta}(\frac{n}{cm^2 * ion}) * S_{\theta \pm d\theta}(cm^2)$$
$$\varphi_{\theta \pm d\theta}\left(\frac{n}{cm^2 * ion}\right) = \frac{\varphi_{\theta \pm d\theta}\left(\frac{n}{sr * ion}\right)}{R^2}$$

En intégrant le flux de neutrons sur toutes les tranches on obtient le flux total de neutrons émis :

$$\sum_{\theta=0^{0}}^{\theta=180^{o}}\varphi_{\theta\pm d\theta}\left(\frac{n}{ion}\right) = \varphi_{total}\left(\frac{n}{ion}\right)$$

On peut aussi calculer la probabilité d'émission de neutrons  $\theta + d\theta \mathbf{P}_{\theta + d\theta}$ :

$$P_{\theta \pm d\theta} = \frac{\varphi_{\theta \pm d\theta} \left(\frac{n}{ion}\right)}{\varphi_{totale}\left(\frac{n}{ion}\right)}$$



Figure A.3 : Probabilité d'émission de neutrons en fonction d'angle

À ce stade deux ingrédients sont connus : taux d'émission totale de neutrons et la distribution angulaire du flux intégrée. Il reste à déterminer la distribution énergétique du flux de neutrons pour chaque angle.

Dans nos expériences, le spectre de neutrons est mesuré à chaque pas de 15°. On considère donc que :

$$\varphi_{\theta \pm d\theta} = \varphi_{\theta}$$
 avec d $\theta$ =7,5°.

Cependant, puisque les mesures ne couvrent pas tous les angles  $\theta$  jusqu'à 180°, on considère que le spectre de neutrons reste constant après l'angle maximal mesuré  $\theta_{max}$ .

Une fois tous les ingrédients obtenus, la source de neutrons est reconstruite. Le transport de neutrons sera ensuite effectué avec le code PHITS en utilisant cette source de neutrons. On a développé une routine dans ROOT qui permet de traduire automatiquement les informations concernant la source de neutrons dans le format du fichier d'entrée de PHITS.

## 2. Modélisation de la salle d'expérience

La géométrie de la salle d'expériences joue un rôle important concernant la distorsion du spectre de neutrons mesurés. En outre, afin d'estimer correctement la distribution du flux et de la dose de neutrons derrière les murs de blindage, il est nécessaire de prendre en compte la géométrie complète de la salle d'expérience. C'est pourquoi dans ce travail, nous avons tous modélisés la salle d'expérience G3 où nos expériences sont effectuées. Tout d'abord, à partir du plan de la salle G3 (cf. figure A.4), on fixe les coordonnées et la taille de chacun des composants de la salle (mur, dipôle, quadripôle...). Une fois ces données obtenues, on les implémente directement dans PHITS. Afin de faciliter ce travail, on a utilisé le logiciel de visualisation SimpleGeo [Theis-06] pour reconstruire un modèle en 3D de la salle. Le logiciel SimpleGeo est intuitif et est facile à utiliser. Il permet aux utilisateurs de travailler sur des géométries avec des interactions de type « Glisser-déposer » et de suivre le changement en direct. En outre, il permet d'importer et d'exporter la géométrie dans des formats des codes de transports (MCNP, PHITS et FLUKA). (cf. figure A.5).



Figure A.4 : Plan de la salle G3



Figure A.5 : Modèle 3D de la salle G3 simulé avec SimpleGeo

# Bibliographie

[Abe-07]	K. Abe et al, Study of measurement method of high-energy neutrons for ADS, Fifth. Itn. Workshop. On. The. Uti. And .Relia. of. Hig. Pow.
	Pro. Acc. (HPPA5) (2007).
[Aleinikov-85]	V. E. Aleinikov et al, Neutron radiation field due to 6.6 MeV/amu <sup>58</sup> Ni ions bombarding a thick Cu target, Radiation Protection Dosimetry 11
	(4) 245-248, (1985).
[Allison-06]	J. Allison et al, Geant4 developments and applications, IEEE Transactions on Nucl. Sci. 53, (2006).
[Allison-16]	J. Allison et al, Recent developments in Geant4, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 835 186-225 (2016).
[Agosteo-04]	S. Agosteo et al, Attenuation curves in concrete of neutrons from 100 to 400 MeV per nucleon He, C, Ne, Ar, Fe and Xe ions on various target, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 217 221-236 (2004).
[Agostinelli-03]	S. Agostinelli et al, Geant4—a simulation toolkit, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 506 250-303 (2003).
[Atchison-80]	F. Atchison et al, Meeting on targets for neutron beam spallation sources, KFA Jülich Germany, Jülconf34 (1980).
[Bassler-17]	N. Bassler et al, SHIELD-HIT12A – User's guide, The Institute for
	Therapy Group, Aarhus University, Aarhus, Denmark (2017)
	(Récupéré de
	https://neptun.phys.au.dk/~bassler/SHIELD HIT/SHIELDHIT12A
	UsersGuide.pdf)
[Battistoni-06]	G. Battistoni et al., Proceedings of 11th International Conference on
[	Nuclear Reaction Mechanisms, Varenna, Italy (2006).
[Bavhurst-75]	Bayhurst et al. Cross sections for (n.xn) reactions between 7.5 and 28
[, ]	MeV. Phys. Rev. C. 12 451 (1975).
[Bedogni-12]	R Bedogni et al. Measurement of neutron spectra generated by a 62
[20008]	AMeV carbon-ion beam on a PMMA phantom using extended range
	Bonner sphere spectrometers, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear.
	A 681 110-115 (2012).
[Bem-07]	P. Bem et al, Conf.on Nucl.Data for Sci. and Technology, Vol 2 983 (2007).
[Benlliure-98]	J. Benlliure et al, Nuclear Physics A 628 458 (1998).
[Brun-97]	R. Brun et al, ROOT: An object oriented data analysis framework,
	Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 389 81-86 (1997).
[Böhlen-14]	T. T. Böhlen et al, The FLUKA Code: Developments and Challenges
	for High Energy and Medical Application, Nucl. Dat. Sheet. 120 211-
	214 (2014).
[Borne-98]	F. Borne, Etude expérimentale de la spallation : distributions
	angulaires des neutrons produits par des faisceaux de protons (0.8, 1.2
	et 1.6 GeV) et de deutons (0.8 et 1.6 GeV), Thèse de doctorat,
	Université de Bordeaux, (1998).
[Boudard-13]	A. Boudard et al, New potentialities of the Liège intranuclear cascade
-	model for reactions induced by nucleons and light charged particles,
	Phys. Rev. C 87, 014606 (2013).
[Bouzomita-Zran-	H. Bouzomita-Zran, Mesure de précision de la décroissance super-
15]	permise de <sup>18</sup> Ne, Thèse de doctorat, Université de Caen Normandie –

	Normandie Université, (2015) (Récupéré de <u>http://hal.in2p3.fr/tel-</u> 01203286).
[Cavinato-01]	M. Cavinato et al, Monte Carlo calculations of heavy ion cross-sections based on the Boltzmann Master equation theory, Nucl. Phys. A 679
[Cavinato-96]	(2001). M. Cavinato et al, Monte Carlo calculations using the Boltzmann Master Equation theory of nuclear reactions. Phys. Lett. B 382 (1996).
[Cerutti-05]	F. Cerutti et al, A semiclassical formula for the reaction cross-section of heavy ions, Eur.Phys.J. A 25, 413 (2005).
[Cerutti-06]	F. Cerutti et al, Low energy nucleus–nucleus reactions: the BME approach and its interface with FLUKA, 11 <sup>th</sup> . Itern. Conf. On. Nucl.
[Chadwick-11]	React. Mecha. 126 507 (2007). M.B. Chadwick et al, ENDF/B-VII.1: Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data Nucl. Data Sheets 112 2887 (2011)
[Chiba-96-a]	S. Chiba et al, Nucleon-induced preequilibrium reactions in terms of the quantum molecular dynamics. Phys. Rev. C 53 1824 (1996).
[Chiba-96-b]	S. Chiba et al, Analysis of proton-induced fragment production cross sections by the quantum molecular dynamics plus statistical decay model, Phys. Rev. C 54 285 (1996).
[Clapier-83]	F. Clapier, Neutron dose equivalent dose rates due to Heavy ion beams, Nucl. Instr. And Meth. 217 489-494 (1983).
[Coszach-00]	R. Coszach et al, Neutron-Induced Reactions Contributing to the Background in Gamma-Ray Astrophysical Mission, Physical Review, Part C. Nuclear Physics Vol 61, Issue 6, p.064615 (2000).
[Deak-87]	F. Deak, Neutron emission from $^{14}N+^{165}Ho$ at 35 MeV/u, Nucl. Phys. A 464 133-158 (1987).
[DIR/SO 001-C]	Rapport préliminaire de sûreté de l'INB 113- DIR/SO 001-C (2002)
[Divay-18]	C. Divay, Thèse de doctorat : Étude de la fragmentation du 12C pour la hadronthérapie, Université de Caen Normandie – Normandie Université (2018), Récupéré de ( <u>http://hal.in2p3.fr/tel-</u> 01666614/document)
[Durand-98]	D. Durand, Physics from collisions below 200 MeV/u, Nucl. Phys. A630 52c-66c (1998).
[Electronic-18]	The Current Transformer (Récupéré de <u>https://www.electronics-</u> tutorials.ws/transformer/current-transformer.html), 2018
[Enquvist-13]	Enquvist et al, Neutron light output response and resolution functions in EJ-309 liquid scintillation detectors, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 715 79-86 (2013).
[Fadil-17]	M. Fadil et al, Radiological study of the nuclear facility $S^3$ of SPIRAL2. ARW 2017 Accelerator Reliability Workshop (2017).
[Fassò-95]	A. Fassò et al Proceedings of the "Specialists' Meeting on Shielding Aspects of Accelerators, Targets & Irradiation Facilities", Arlington, April 28-29 1994, published by OECD/NEA, p. 287-304 (1995).
[Fassò-01]	A. Fassò et al, Proceedings of the Monte Carlo 2000 Conference, Lisbon, October 23–26 2000, A. Kling, F. Barão, M. Nakagawa, L. Távora, P. Vaz eds., Springer-Verlag Berlin, 955 (2001).
[Ferrari-98]	A. Ferrari et al, Proceedings of Workshop on Nuclear Reaction Data and Nuclear Reactors Physics, Design and Safety, A. Gandini, G. Reffo eds. Trieste, Italy, April 1996 2, 424 (1998)
[Ferrari-05]	A. Ferrari et al, FLUKA: a multi-particle transport code, CERN-2005- 10 (2005), INFN/TC_05/11, SLAC-R-773

[Ferraton-11]	M. Ferraton, Collisions profondément inélastiques entre ions lourds auprès du Tandem d'Orsay & Spectroscopie $\gamma$ des noyaux exotiques riches en neutrons de la couche fp avec le multidétecteur germanium
[Folger-04]	G. Folger et al, The Binary Cascade, J.P. Eur. Phys. J. A 21: 407 (2004)
[Fulmer-78]	C. B. Fulmer, Fast neutron dose equivalent rates in heavy ion target areas, 8 <sup>th</sup> Inter, Conf. on, Cvlc, and their, Appl (1978).
[Furihata-01]	S. Furihata et al, The GEM code – A simulation program for the evaporation and the fission process of an excited nucleus, JAERI-Data/Code 2001-015 (2001).
[Gade-03]	A.Gade et al., Detailed experimental study on intermediate-energy Coulomb excitation of 46Ar, Phys. Rev. C 68, 014302 (2003).
[Gibouin-03]	S. Gibouin, Contribution à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL, Thèse de doctorat, Université de Caen Normandie-Normandie Université (2003).
[Guo-87]	Z. Y. Guo, Thick target fast neutron yields, Nucl. Instr. And Meth. B29 (1987) 500-507.
[Heilbronn-96]	L. Heilbronn et al, Neutron yields from interactions of GCR-like beams in stopping targets. Adv. In. Spac. Resar. 17 (2) 69-76 (1996).
[Heilbronn-98-a]	L. Heilbronn et al, Neutron yields from 435 MeV/nucleon Nb stopping in Nb and 272 MeV/nucleon Nb stopping in Nb and Al, Phys. Rev. C 58 (6) (1998).
[Heilbronn-98-b]	L. Heilbronn et al, Production of neutrons from interactions of GCR- like particles, Acta Astro. 42 367-373 (1998).
[Holub-83]	E. Holub et al, Neutron emission in central heavy-ion collisions of $^{165}$ Ho+ $^{20}$ Ne at 11, 14.6, and 20.1 MeV/nucleon, Phys. Rev. C 28 (1) (1983).
[Hubbard-60]	E. L. Hubbard, Neutron production by heavy-ion bombardments, Phys. Rev. 118 (2) (1960).
[Honusek-11]	M. Honusek et al, Neutron activation experiments on niobium in NPI p-7Li quasi-monoenergetic neutron field, Journal of the Korean Physical Society Vol.59, p.1374 (2011)
[IAEA-18]	IAEA, Neutron Dosimetry and Monitoring, Actives Methods of Neutron detection course. Récupéré de <u>https://www.slideshare.net/leishare/active-methods-of-neutron-</u> detection (2018).
[IPNL-18]	IPNL, L'hadronthérapie en quelques mots. Récupéré de https://www.ipnl.in2p3.fr/spip.php?article1483 (2018).
[Iwamoto-17]	Y. Iwamoto et al, Benchmark study of the recent version of the PHITS code, J. Nucl. Sci. Technol. 54, 617-635 (2017).
[Iwamoto-09]	Y. Iwamoto et al, Neutron Energy Spectra And Dose Equivalent Rates From Heavy-ion Reactions Below 20 Mev/u Using The PHITS Code, PAC 2009.
[Iwamoto-10]	Y. Iwamoto et al, Estimating Neutron Dose Equivalent Rates From heavy Ion Reactions around 10 Mev Amu-1 using the PHITS Code, Health Physe, 98 (4) 591-596 (2010).
[Iwata-01]	Y. Iwata et al, Double-differential cross sections for the neutron production from heavy-ion reactions at energies $E/A = 290-600$ MeV,
[James-94]	<ul><li>Phys. Rev. C 64 054609 (2001).</li><li>F. James, MINUIT Function Minimization and Error Analysis Reference Manual, CERN Geneva, Switzerland, (1994).</li></ul>

[James-06]	M. R. James et al, Recent enhancements in MCNPX: Heavy-ion transport and the LAQGSM physics model, Nucl. Instr. And Meth. In Phys Resear A 562 819-822 (2006)
[Junghans-98]	A R Junghans et al Nuclear Physics A 629 635 (1998)
[Kim-98]	<ul> <li>E. Kim et al, Measurements of Neutron Spallation Cross Sections of <sup>12</sup>C and <sup>209</sup>Bi in the 20 MeV to 150 MeV Energy Range, Nucl. Sci. and.</li> <li>Eng. 120 (3) 200 223 (1008)</li> </ul>
[Kim-99]	<ul> <li>E. Kim et al, Measurements of activation cross sections on spallation reactions for <sup>59</sup>Co and <sup>nat</sup>Cu at incident neutron energies of 40 to 120 May Jrn Of Nucl Sci and Tech 36 (1) (1999)</li> </ul>
[Koning-15]	A. J. Koning et al, TENDL-2015: TALYS-based evaluated nuclear data library (2015) (Retrieved from https://tendl.web.psi.ch/tendl.2015/tendl2015.html)
[Kurosawa-00]	T. Kurosawa et al, Neutron yields from thick C, Al, Cu, and Pb targets bombarded by 400 MeV/nucleon Ar, Fe, Xe and 800 MeV/nucleon Si ions Phys Rev C 62 044615 (2000)
[Kurosawa-98]	T. Kurosawa et al, Measurements of Secondary Neutrons Produced from Thick Target Bombarded by High Energy Neon Ions, J. of. Nucl. Sci. and Tech. 36 (1) 41-53 (1999)
[Lhersonneau-07]	G. Lhersonneau et al, Neutron yield from <sup>13</sup> C thick target irradiated by protons of intermediate energy, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 576 371-379 (2007)
[Lhersonneau-09]	G. Lhersonneau et al, Neutron yield from carbon, light- and heavy- water thick targets irradiated by 40 MeV deuterons, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 603 228-235 (2009).
[Lhersonneau-13]	G. Lhersonneau et al, A facility for fast-neutron irradiations at Jyväskylä and its use for nuclide cross-section measurements in fission Nucl Instr And Meth In Phys Resear A 698 224-233 (2013)
[Li-93]	G. Q. Li et al, Microscopic calculation of in-medium nucleon-nucleon cross sections, Phys. Rev. C 48, 1702 (1993).
[Li-94]	G. Q. Li et al, Microscopic calculation of in-medium proton-proton cross sections, Phys. Rev. C 49, 566 (1994).
[Luciano-12]	N. P. Luciano, A High-Energy Neutron Flux Spectra Measurement Method for the Spallation Neutron Source, Thèse de Master, University of Tennessee-Knoxville (2012).
[Maeda-11]	S. Maeda et al, Fundamental Study on Neutron Spectrum Unfolding using Maximum Entropy and Maximum Likelihood Method, Progress in NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 1, (2011) 233- 236.
[Maiti-06]	M. Maiti et al, Angular distribution of neutrons from heavy ion induced reactions in thick targets, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 556 577-588 (2006).
[Majerle-16]	M. Majerle et al, Au, Bi, Co and Nb cross-section measured by quasimonoenergetic neutrons from p+7Li reaction in the energy range of 18-36 MeV Nuclear Physics Section A Vol 953 p 139 (2016)
[Malkiewicz-09]	<ul> <li>T. Malkiewicz, Tools for Physics with LHC and RIB, Thèse de doctorat, University of Jyväskylä, 2009.</li> </ul>
[Mannhart-07]	W. Mannhart et al, Measurement of Neutron Activation Cross Sections in the Energy Range from 8 MeV to 15 MeV, Phys.Techn.Bundesanst., Neutronenphysik Reports No.53 (2007).
[Mashnik-15]	S. G. Mashnik, Possible Improvements to MCNP6 and its CEM/LAQGSM Events-Generators, LA-UR-15-26166, (2015).

[Masuda-17]	A. Masuda et al, Neutron spectral fluence measurements using a Bonner sphere spectrometer in the development of the iBNCT accelerator-based neutron source, Appl. Rad. and Iso. 127, 47-51
[Matsumoto-98]	<ul> <li>(2017).</li> <li>M. Matsumoto et al, Mersenne Twister: A 623-dimensionally equidistributed uniform pseudorandom number generator, ACM Trans. on Modeling and Computer Simulation Vol. 8, No. 1, January 2 20 (1009)</li> </ul>
[McElroy-69]	<ul> <li>pp.3-30 (1998).</li> <li>W. N. McElroy et al, SAND-II Neutron Flux Spectra Determinations by Multiple Foil Activation Iterative Method. RSIC Computer Code Collection CCC-112. Oak Ridge National Laboratory, Information Conten (May 1960)</li> </ul>
[Menlove-67]	H. O. Menlove et al, ACTIVATION CROSS SECTIONS FOR THE F19(N,2N)F18, NA23(N,2N)NA22, MN55(N,2N)MN54, IN115(N,2N)IN114M, HO165(N,2N)HO164M, IN115(N,N)IN115M, AND AL27(N, ALPHA)NA24 REACTIONS, Physical
[Mokhov-17]	Review Vol.163, p.1308 (1967). N. V. Mokhov et al, The Mars code System User's Guide Version 15, Fermi National Accelerator Laboratory. Récupéré de
[Mooney-13]	(https://mars.tnal.gov/m1516-manual.pdf) (2016). J. Mooney et al, Get the Basics Right: Jacobian Conversion of Wavelength and Energy Scales for Quantitative Analysis of Emission
[Musiol-88]	Spectra, J. Phys. Chem. Lett., 2013, 4, pp 3316–3318 (19). Musiol, G., Ranft, J., Reif, R., Seeliger, D., 1988. Kern- undElementarteilchenphysik, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin. Lizenzausgabe der VCH Verlagsgesellschaft,
[Nandy-01]	Weinheim. M. Nandy et al, Measurement and analysis of neutron spectra from a thick Ta target bombarded by 7.2A MeV <sup>16</sup> O ions, Phys. Rev. C 63
[Nandy-07]	M. Nandy et al, Estimation of angular distribution of neutron dose using time-of-flight for ${}^{19}$ F + Al system at 110 MeV, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 576 380-388 (2007)
[Nandy-10]	M. Nandy et al, Neutron dose distribution from <sup>12</sup> C induced reactions on Ti and Ag using proton recoil scintillator, Rad. Measur. 45 1276- 1280 (2010)
[Niita-09]	K. Niita et al, Applicability of the QMD model to various nuclear reactions 12 <sup>th</sup> Inter Conf on Nucl react Mecha 363-370 (2009)
[Niita-95]	K. Niita et al, Analysis of the (N,xN') reactions by quantum molecular dynamics plus statistical decay model Phys. Rev. C 52 (5) (1995)
[Norswothy-17]	Evaluation of light output response functions in EJ-309 organic scintillators, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 842 20-27 (2017)
[Novion-97]	C. H. de Novion, Autres utilisations des faisceaux de neutrons en sciences des matériaux, Laboratoire Léon Brillouin-CEA Saclay, (1007)
[OECD-17]	OECD/NEA Data Bank, "The JEFF-3.3 Nuclear Data Library",
[O'Haver-18]	T. O'Haver, A Pragmatic Introduction to Signal Processing with applications in scientific measurement, Department of Chemistry and Biochemistry - University of Maryland at College Park, (2018) (Retrieved from https://terpconnect.umd.edu/~toh/spectrum/)

[Ogawa-13]	T. Ogawa et al, Analysis of multi-fragmentation reactions induced by relativistic heavy ions using the statistical multi-fragmentation model, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 723 36-46 (2013)
[Ogawa-15]	T. Ogawa et al, Energy-dependent fragmentation cross sections of relativistic 12C. Phys. Rev. C 92 024614 (2015).
[Paul-17]	S. Paul et al, Preequilibrium neutron emission from O + Al at 7.5 MeV/nucleon and 8.8 MeV/nucleon, Phys. Rev. C 96 044607 (2017).
[Pauwels-00-a]	N. Pauwels et al, Experimental determination of neutron spectra produced by bombarding thick targets: Deuterons (100 MeV/u) on <sup>9</sup> Be, deuterons (100 MeV/u) on <sup>238</sup> U and <sup>36</sup> Ar (95 MeV/u) on <sup>12</sup> C, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 160 315-327 (2000).
[Pauwels-00-b]	N. Pauwels, Étude de la production de neutrons rapides à partir de faisceaux de deutons en vue de la mise en œuvre de faisceaux d'ions lourds radioactifs, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, (2000).
[Pestel-15]	V. Pestel, Expérience de décroissance $\beta$ du <sup>11</sup> Li avec émission de neutrons retardés : Calibration et analyse du bruit de fond, Rapport de stage Master 1, Université de Caen Normandie (2015).
[Petoussi-Henss- 10]	N. Petoussi-Henss et al, Conversion Coefficients for Radiological Protection Quantities for External Radiation Exposures, ICRP Publication 116, Ann. ICRP 40(2-5), (2010).
[Pioch-10]	C. Pioch et al, Influence of Bonner sphere response functions above 20 MeV on unfolded neutron spectra and doses, Radiation Mesurements 45 (10), 1263-1267 (2000).
[Tsai-15]	P-E. Tsai, Study of secondary particles produced from heavy-ion interactions, Thèse de doctorat, University of Tennessee, Knoxville (2015).
[Tsai-18]	P-E. Tsai et al, Benchmark of neutron production cross sections with Monte Carlo codes, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 416 16-29 (2018).
[Pioch-10]	C. Pioch et al, Influence of Bonner sphere response functions above 20 MeV on unfolded neutron spectra and doses, Rad. Measur. 45 1263-1267 (2010).
[Pyeon-08]	C. H. Pyeon et al, Neutron Spectrum Analyses by Foil Activation Method for High-Energy Proton Beams, Reac. Dos. Sta. of. Art Proc. Of. The. 13 <sup>th</sup> . Itn. Sym. 616-622 (2008).
[RHB-12]	RHB : ROOT Histogram Builder, Récupéré de <u>http://rhb.in2p3.fr/</u> , (2012).
[Rochman-16]	D. Rochman et al, The TENDL library: hope, reality and future, proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Bruges, Belgium, September 11-16, (2016).
[Ronningen-10]	R. M. Ronningen, I. Remec et al, Final Report on Benchmarking Heavy Ion Transport Codes FLUKA, HETC-HEDS MARS15, MCNPX, and PHITS, Collaboration : MSU, ORNL, UTK, SID and RIST (2010).
[Sardet-15]	A Sardet, Spectres en énergie des neutrons prompts de fission : optimisation du dispositif expérimental et application à l' <sup>238</sup> U, Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, (2015) (Récupéré de https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01274998/document).
[Sato-18]	T. Sato et al, Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684-690 (2018).
[Sato-13]	T. Sato et al, Particle and Heavy Ion Transport code System, PHITS, version 2.52, Jrn. Of. Nucl. Sci. and. Tech. 50 (9) (2013).

[Sato-10]	T. Sato et al, Fluence-to-dose conversion coefficients for heavy ions calculated using the PHITS code and ICRP/ICRU adult reference
[Sato-09]	computational phantoms, Phys. Med. Biol. <b>55</b> , 2235-2246 (2010). T. Sato et al, Fluence-to-dose conversion coefficients for neutrons and protons calculated using the PHITS code and ICRP/ICRU adult reference computational phantoms, Phys. Med. Biol. 54, 1997-2014 (2009)
[Satoh-06]	D. Satoh et al, SCINFUL-QMD: Monte Carlo Based Computer Code to Calculate Response Function and Detection Efficiency of a Liquid Scintillator for Neutron Energies up to 3 GeV, JAEA-Data/Code 2006- 023. (2006).
[Satoh-07]	D. Satoh et al, Reevaluation of secondary neutron spectra from thick targets upon heavy-ion bombardment, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 583 507-515 (2007).
[Satoh-11]	D. Satoh et al, Neutron-production Double-differential Cross Sections from Heavy-ion Interactions, Journal of Korean Physical Society, 59 (2) 1741-1744 (2011).
[Schelin-92]	H. R. Schelin et al, Neutron Production in Heavy-Ion Reactions at 35 and 50 MeV/Nucleon, Nucl. Sci. and. Eng. 113 (2) 184-188 (1993).
[Sharma-15]	S. Sharma, Validation of Spallation models, Thèse de doctorat, Jagiellonian university (2015).
[Shibata-11]	K. Shibata et al, JENDL-4.0: A new library for nuclear science and engineering", J. Nucl. Sci. Technol.48 1 (2011).
[Shigyo-14]	N. Shigyo et al, Measurement of 100- and 290-MeV/A Carbon Incident Neutron Production Cross Sections for Carbon, Nitrogen and Oxygen, Nucl. Dat. Shee, 119 303-306 (2014).
[Shin-95]	K. Shin et al, Thick-Target Neutron Yield for Charged Particles, Nucl.Sci.Eng. 120 (40) (1995).
[Sihver-12]	L. Sihver et al, A comparison of total reaction cross section models used in FLUKA, GEANT4 and PHITS, Aerospace Conference, IEEE (2012).
[Sihver-14]	L. Sihver et al, Current status of the "Hybrid Kurotama model" for total reaction cross sections, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 334 34-39 (2014).
[Simeckova-11]	E. Simeckova et al, The Measurement of Neutron Activation Cross Section of Co-59 Below 36 MeV, Jrn. Kor. Phys. Soc. 59 (2) 1801- 1804 (2011).
[Sisterson-07]	J. M. Sisterson et al, Cross section measurements for neutron-induced reactions off C, Al, SiO2, Si and Au producing relatively short-lived radionuclides at neutron energies between 70 and 160 MeV, Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B Vol.261, p.993 (2007)
[Sublet-10]	JCh. Sublet et al, The European Activation File: EAF-2010 neutron- induced cross section library, EASY Documentation Series CCFE-R (10) 05
[Suman-15]	V. Suman, Thick target double differential neutron energy distribution from ${}^{12}C + {}^{27}A1$ at 115 MeV, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 800 29-33 (2015).
[Sunil-04]	C. Sunil et al, Neutron yield and dose equivalent from heavy ion interactions on thick target, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 534, 518-530 (2004)
[Sunil-06]	C. Sunil et al, Thick target neutron dose evaluation for ${}^{19}$ F + Al system, Rad. Pro. And. Dos. 123 (3) 277-282 (2006).

[Sunil-08-a]	C. Sunil et al, Neutron dose equivalent from 100 MeV <sup>19</sup> F projectiles on thick Cu target, Rad, Measur, 43 1278-1284 (2008).
[Sunil-08-b]	C. Sunil et al, Measurement and analysis of energy and angular distributions of thick target neutron yields from 110 MeV <sup>19</sup> F on <sup>27</sup> Al, Phys. Rev. C 78 064607 (2008).
[Sunil-10]	C. Sunil et al, Directional distribution of the ambient neutron dose equivalent from 145-MeV <sup>19</sup> F projectiles incident on thick Al target, Rad. Pro. And. Dos. 143 (1) 4-11 (2010).
[Sunil-12]	C. Sunil et al, Neutron ambient dose equivalent from 5 MeV/u <sup>10,11</sup> B, <sup>12,13</sup> C and <sup>16,18</sup> O projectiles incident on a thick Al target, Rad. Measur. 47 1035-1043 (2012)
[Sunil-13]	C. Sunil et al, Thick target neutron yield from 145 MeV ${}^{19}F+{}^{27}Al$ system Nucl Instr And Meth In Phys Resear A 721 21-25 (2013)
[Takada-11]	M. Takada et al, Simulated Neutron Response Functions of Phoswich- Type Neutron Detector and Thin Organic Liquid Scintillator, Progress in NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 2, 274-279 (2011)
[Takada-12]	M. Takada et al, Response Functions of Phoswich-Type Neutron Detector for High-Energy Cosmic Ray Neutron Measurement, Nucl. Sci. and Eng. 47, No 10 917-931, (1996).
[Taforeau-13]	J. Taforeau, Un spectromètre à pixel actifs pour la métrologie des champs neutroniques, Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, (2013)
[Theis-06]	C. Theis et al, Interactive three dimensional visualization and creation of geometries for Monte Carlo calculations, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 562 827-829 (2006).
[Thomas-14]	J-C. Thomas et al, Compte rendu des tests E686 et E677, GANIL, 2014
[Tomanin-14]	A. Tomanin et al, Characterization of a cubic EJ-309 liquid scintillator detector Nucl Instr And Meth In Phys Resear A 756 45-54 (2014)
[Tripathi-96]	R. K. Tripathi et al, Accurate universal parameterization of absorption cross sections, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 117 347-349 (1996).
[Tripathi-97-a]	R. K. Tripathi et al, Accurate universal parameterization of absorption cross sections II — neutron absorption cross sections, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 129 11-15 (1997).
[Tripathi-97-b]	R. K. Tripathi et al, Universal Parameterization of Absorption Cross Sections, NASA Technical Papers 3621 (1997) (Retrieved from https://ntrs.nasa.gov/archive/nasa/casi.ntrs.nasa.gov/19970011098.pdf
[Tripathi-99]	R. K. Tripathi et al, Accurate universal parameterization of absorption cross sections III – light systems, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear, B 155 349-356 (1999).
[Uddin-09]	M. S. Uddin et al, Measurements of neutron induced activation of concrete at 64.5 MeV, Annals of Nuclear Energy Vol.36, p.1133 (2009).
[Uno-96-a]	Y. Uno et al, Measurement of the Neutron Activation Cross Sections of 12C, 30Si, 47Ti, 48Ti, 52Cr, 59Co, and 58Ni Between 15 and 40 MeV, Nucl. Sci. and. Eng. 122 (2) 247-257 (1996).
[Uno-96-b]	Y. Uno et al, Measurements of activation cross sections for the neutron dosimetry at an energy range from 17.5 to 30 MeV by using the

	<sup>7</sup> Li(p,n) quasi-mono-energetic neutron source, 9.Internat.Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, 1996 p.465 (1996).
[Uwamino-92]	Y. Uwamino et al, Measurement of neutron activation cross sections of energy up to 40 MeV using semimonoenergetic p-Be neutrons, Nuclear Science and Engineering Vol 111, p 301 (1902)
[Valdré-15]	S. Valdré, Competition between heavy-ion reaction mechanisms as a function of the system isospin, Thèse de doctorat, University of Elorence (2015)
[Veeser-77]	L. R. Veeser et al, Cross sections for (n,2n) and (n,3n) reactions above 14 MeV. Phys. Rev. C 16, 1792 (1977).
[Veselský-13]	M. Veselský, Nuclear reactions with heavy ions beams, Acta Physica Slovaca vol.63, No. 1-2 1-104 (2013).
[Vlachoudis-09]	V.Vlachoudis, FLAIR: A Powerful But User Friendly Graphical Interface For FLUKA Proc. Int. Conf. on Mathematics, Computational Methods & Reactor Physics (M&C 2009), Saratoga Springs, New York (2009)
[Vrzalová-13]	J. Vrzalová, Studies of (n,xn) cross-sections in Al, Au, Bi, Cu, Fe, I, In, Mg, Ni, Ta, Y, and Zn by the activation method, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. A 726 84-90 (2009).
[Wagner-12]	V. Wagner et al, Measurement of neutrons in different Pb/U setups irradiated by relativistic protons and deuterons by means of activation samples. Irn Of Phys 366 012047 (2012)
[Xu-16]	J. Xu et al, Understanding transport simulations of heavy-ion collisions at 100 and 400 AMeV: Comparison of heavy ion transport codes under controlled conditions. Physical Review C 93, pp.044609 (2016)
[Yordanov-05]	O. Yordanov et al, Neutron yields from 1 GeV/nucleon <sup>238</sup> U ion beams on Fe target, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 800 863-870 (2005)
[Zaman-15-a]	M. Zaman et al, Measurement of cross-sections for 89Y(n,xn) reaction at average neutron energies of 15-36 MeV, Jrn. Of. Rad. And. Nucl. Che. 303 815 (2015).
[Zaman-15-b]	M. Zaman et al, Measurement of activation cross-sections for high- energy neutron-induced reactions of Bi and Pb, European Physical Journal A: Hadrons and Nuclei Vol.51, p.104 (2015)
[Ziegler-10]	J. F. Ziegler et al, SRIM - The stopping and range of Ions in Matter, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Resear. B 268 11-12 (2010).
[Zsolnay-82]	É. M. Zsolnay and E. J. Szondi, Neutron spectrum determination by multiple foil activation method, Nuclear Training Reactor of the Technical University Budapest, (1982).

#### Titre : Émission de neutrons par les réactions d'ions lourds [4,6-95 MeV/nucléon]

#### Résumé

Les accélérateurs d'ions lourds sont un outil incontournable pour la recherche en physique nucléaire. Ils sont également utilisés pour diverses applications. Il est nécessaire de caractériser la production des neutrons secondaires dans les accélérateurs afin de garantir un fonctionnement sûr en toutes circonstances. Cependant, les données expérimentales sont très rares voire inexistantes. Pour certaines données, on note des divergences entre différentes publications. Des désaccords sont aussi observés entre les mesures et les calculs. Toutes ces raisons justifient le programme Thick Target Neutron Yields (TTNY) dont l'objectif est de mesurer des spectres doublement différentiels (énergie, angle) des neutrons générés par l'interaction des ions lourds (12≤Afaisceau≤208 et 4,6 MeV/nucléon≤Efaisceau≤95 MeV/nucléon) sur cibles épaisses (natC, natCu et natNb). Deux techniques de mesure ont été utilisées : Activation et Temps de vol. Cela permet d'avoir une meilleure confiance dans les mesures, d'étudier les limites expérimentales et de consolider les conclusions que l'on peut en tirer. Les mesures sont comparées à des simulations effectuées dans ce travail avec les codes Monte-Carlo les plus utilisés en calcul nucléaires : PHITS (japonais), FLUKA (européen (CERN/INFN)) et MCNP (américain). Ces comparaisons ont permis d'évaluer la qualité des codes dans les énergies étudiées et pour les masses des noyaux explorées. Elles ont permis aussi de conclure sur les incertitudes systématiques et les éventuelles évolutions à apporter aux modèles physiques de ces codes.

**Mots clés :** Réactions d'ions lourds, Rendement neutronique, Activation, Temps de Vol, Simulation, Codes de transports.

#### Abstract

Heavy-ion accelerators are an essential tool for nuclear physics research. They are also adopted in several applications. It is necessary to characterize the secondary neutrons production in order to guarantee a safe operation in every circumstance in accelerators. However, experimental data are very rare or even non-existent. For some data, we notice disagreements between different publications. Disagreements are also observed between measurements data and simulations. For all these reasons, we established the program Thick Target Neutron Yields (TTNY). This program aims to measure the double differential neutron spectra (energy, angle) generated by the interactions of heavy-ions (12 ≤ A<sub>beam</sub> ≤ 208 and 4.6 MeV/nucleon≤E<sub>beam</sub>≤95 MeV/nucleon) on thick targets (<sup>nat</sup>C, <sup>nat</sup>Cu and <sup>nat</sup>Nb). Two measurements methods were adopted: Activation and Time of Flight. This choice allows having a better confidence on the measurements, studying experimental limits and consolidating the conclusions that could be drawn from the experimental results. The measurements are compared to the simulations performed with some Monte-Carlo widely used in nuclear simulation: PHITS (Japanese), FLUKA (European (CERN/INFN)) and MCNP (American). These comparisons allowed evaluating the modeling quality of heavy-ion reactions for the energies and masses explored in this work. We also conclude on the systematic uncertainties and on the potential improvements to be introduced to physics models of these codes.

**Keywords:** Heavy-ion reactions, Neutron yields, Activation, Time of Flight, Nuclear Simulation, Transport codes.