



UNIVERSITÉ de CAEN/BASSE-NORMANDIE

U.F.R. : Sciences

ÉCOLE DOCTORALE S.I.M.E.M.

(Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière Et des Matériaux)

THÈSE

présentée par

Mme Marie-Laure GIACRI-MAUBORGNE

et soutenue

le 18 novembre 2005

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Constituants élémentaires (TH202)

(Arrêté du 25 avril 2002)

Titre : Création d'une bibliothèque d'activation photo-nucléaire et mesures de spectres d'émission de neutrons retardés

∞∞∞

MEMBRES du JURY

Prof. Bernard TAMAIN (directeur de thèse)

Dr Jean-Luc SIDA (rapporteur)

Dr Gérard BARREAU (rapporteur)

Dr Laurent TASSAN GOT (examinateur)

Dr Mark CHADWICK (examinateur)

Dr Danas RIDIKAS (responsable CEA)

Dr Arjan KONING (invité)

Dr Jean-Christophe SUBLET (invité)

La phrase la plus excitante à entendre en science, celle qui annonce de nouvelles découvertes, n'est pas « Eureka » (j'ai trouvé !), mais plutôt « Tiens, c'est marrant... »

Isaac Asimov

Je n'ai pas de talents particuliers. Je suis juste passionnément curieux.

Albert Einstein

Remerciements

Tout d'abord un grand merci à Danas pour m'avoir encadrée, conseillée pendant ces trois années. Une expérience peu évidente, je m'en doute, avec un sujet en perpétuelle évolution. Malgré tous tes efforts je ne me suis toujours pas mise à boire du café, mais vu que tu en bois suffisamment pour deux cela compense.

Diane, tu as passé beaucoup de temps à relire ma thèse, à la corriger, à m'obliger à faire de belles introductions. Sans toi ce manuscrit n'aurait pas été aussi bon. Mais surtout merci de m'avoir posé toutes ces questions, qui parfois m'agaçaient un peu mais qui surtout m'obligeaient à mettre au clair mes idées, chose dont j'ai souvent eu grand besoin.

M. Tamain vous resterez toujours le professeur qui m'a donné envie de m'engager dans cette voie. J'ai été honorée que vous acceptiez d'être mon directeur de thèse avec les contraintes administratives que cela implique.

Mark, Bill et toute la T-16 vous m'avez accueillie à bras ouverts lors de mes séjours à Los Alamos. Ces séjours me furent très profitables du point de vue scientifique mais aussi d'un point de vue humain. Votre gentillesse et votre générosité ont rendu moins pénible l'éloignement et facilité mon intégration dans ce "nouveau monde". Encore une fois désolée Mark pour ton vélo.

Marshall Blann, merci de m'avoir permis d'utiliser HMS-ALICE avant qu'il ne soit finalisé et d'avoir eu la patience de répondre à mes nombreuses questions à son sujet. Sans cela le travail présenté ici n'aurait pu se faire.

Pavel, que dire ? Tous ces moments passés à échanger nos points de vue que ce soit sur la physique ou autre. C'était mes petites pause-détente, à la place de la pause-café. J'en ai appris beaucoup sur la Russie, l'URSS et la confrontation de nos points de vue a toujours été très intéressante.

Marco, dommage que tu ne sois pas resté plus longtemps. Il y a plein de programmes que j'aurai aimé te faire tester. Merci d'avoir amené un peu d'Italie dans mon bureau. Peut-être que j'aurai l'occasion de retourner du côté d'Aoste, pas pour déguster du jambon, mais peut-être qu'enfin on pourra skier ensemble.

À tous les autres stagiaires, thésards et post-docs (Flore, Éric L., Éric D., Sébastien B., Sébastien C., Olivier, Mathieu, Véra, Sophie, ...) pour le temps passé à discuter de choses et d'autres, pour le soutien dans les moments difficiles.

Jean-Christophe, incollable sur ABLA. Heureusement parce qu'il fallait bien que quelqu'un puisse répondre à mes questions. Merci à toi et à Aymeric pour les calculs des distributions de fragments de fission.

REMERCIEMENTS

Danielle, Isabelle, vous êtes la patience et la gentillesse même. Que seraient les thésards sans vous pour les guider à travers la jungle tortueuse qu'est l'administration du CEA. Sans vous je serai encore à me demander qu'elle est la différence entre un JRTT et un congé payé ou à remplir une feuille de mission. Grâce à vous j'ai pu me concentrer sur mon travail de thèse.

Merci aux équipes des accélérateurs 4 MV et ELSA qui se sont débrouillées pour nous obtenir des faisceaux de bonne qualité malgré nos exigences inhabituelles. Avec une mention spéciale pour Alain. Sans oublier bien sûr Xavier, Jean-Marc et Michaël pour leur aide sur toute la partie expérimentale.

Nicolas, six ans déjà à se supporter mutuellement. Enfin ces derniers temps c'est moi qu'il a fallu supporter. Toujours là en cas de besoin, de coup dur ou simplement pour manger ensemble à la cantine malgré les railleries de tes collègues. Tu le sais tu as toute mon amitié. Merci à tous les copains, Pascale, Wéwé, Pierre, Benoît, Greg, Cécile, David, Laure... de m'avoir aidé à sortir parfois la tête du guidon, à m'aérer.

Merci à mes parents et ma soeur d'être eux-même tout simplement et de m'avoir laissé la liberté de faire ce qui me tenait à coeur.

Vincent, tu as toujours répondu présent dans mes moments de doute, de stress. Et il y en a eu, surtout vers la fin. Toi aussi tu y as passé du temps sur cette thèse pour corriger mon français. Tout mon amour.

Merci à tous ceux que j'oublie et qui, au détour d'un couloir, d'une salle d'expérience, d'une conférence, d'une répétition, d'une sortie kayak m'ont encouragée et soutenue.

Table des matières

Introduction	1
---------------------	----------

Première partie

Développement d'une bibliothèque d'activation photonucléaire	5
---	----------

Chapitre 1	
Notions physiques préliminaires	7

1.1	Production de photons et interactions photon-matière	7
1.1.1	Présentation des différents types de faisceaux de photons	7
1.1.2	Interactions photon-matière [Tam01]	11
1.2	Réactions photonucléaires	12
1.2.1	Photoabsorption	12
1.2.2	Émission de photoparticules	14
1.2.3	Photofission	15
1.3	Produits de fission	18
1.3.1	Terminologie	18
1.3.2	Distributions des produits de fission	19
1.4	Émission de neutrons retardés	22
1.4.1	Généralités	22
1.4.2	Décroissance par émission de neutrons retardés	23
1.4.3	Spectre en énergie des neutrons retardés	25
1.5	Synthèse	26

Chapitre 2	
Les codes de calcul	27

2.1	Codes de calcul de sections efficaces	27
2.1.1	Principe du calcul de sections efficaces de réactions	28
2.1.2	HMS-ALICE	28
2.1.3	GNASH	29
2.1.4	ABLA	30
2.2	Codes de simulation	30
2.2.1	MCNPX	30
2.2.2	CINDER'90	31
2.3	Calcul de spectres de neutrons retardés	33
2.3.1	Présentation du calcul	33
2.3.2	Validation de $g6.x$	33
2.4	Synthèse	35

Chapitre 3	
Bibliothèque d'activation photonucléaire	37

3.1	Bibliothèque d'activation : sections efficaces	38
3.1.1	Différences entre la version photonucléaire et la version neutro- nique	38
3.1.2	Provenance des sections efficaces photonucléaires	38
3.1.3	Évaluations de l'IAEA [IAE00]	39
3.1.4	Comparaison des calculs de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA	40
3.1.5	Utilisation de GNASH pour l'évaluation de sections efficaces photonucléaires pour les actinides	47
3.1.6	Conclusion sur l'insertion des sections efficaces dans la biblio- thèque d'activation photonucléaire	61
3.2	Bibliothèque d'activation : produits de photofission	62
3.2.1	Première approche	62
3.2.2	Comparaison ABLA/HMS-ALICE pour le calcul des distribu- tions de produits de photofission	64
3.2.3	Test des distributions isotopiques des produits de photofission	72

3.2.4	Choix du code de calcul pour les distributions des produits de photofission	76
3.3	Bibliothèque d'activation : spectres d'émission de neutrons retardés . .	76
3.4	Applications de la bibliothèque	76
3.4.1	Étude de l'activation du béton lors du démantèlement du LURE	77
3.4.2	Étude de la transmutation du strontium-90 et du césium-137 . .	81
3.5	Conclusion	83

Deuxième partie

Mesure de spectres d'émission de neutrons retardés	85
--	----

Introduction à la mesure de spectres de neutrons retardés	87
--	-----------

Chapitre 4	
La détection des neutrons retardés	91

4.1	Description du détecteur et du système d'acquisition	91
4.2	Optimisation	92
4.3	Mesure de l'efficacité du détecteur	93
4.3.1	Efficacité globale et efficacité intrinsèque	93
4.3.2	Étalonnage à l'aide de sources de neutrons	94
4.3.3	Étalonnage avec un faisceau de neutrons	97
4.4	Synthèse	99

Chapitre 5	
Mesure de neutrons retardés auprès du 4MV	101

5.1	Dispositif expérimental	101
5.2	Protocole expérimental	103
5.2.1	Interruption du faisceau	103
5.2.2	Prises de données	103

5.2.3	Bruit de fond	104
5.3	Nombre total de neutrons retardés émis par fission	105
5.3.1	Méthode de calcul	105
5.3.2	Angle solide du détecteur : Ω_{He3}	105
5.3.3	Nombre de fissions : N_{fiss}	106
5.3.4	Coefficient de transmission : α	108
5.3.5	Flux de neutron : I_s	108
5.3.6	Nombre de coups à $t = 0$: $N_{He3}(t = 0)$	109
5.3.7	Résultats : $\bar{\nu}_d$	110
5.4	Spectres en temps	110
5.4.1	Méthode d'analyse des spectres en temps des neutrons retardés	110
5.4.2	Analyse des données expérimentale	115
5.5	Conclusions	122

Chapitre 6

Spectre des neutrons retardés issus de photofission

125

6.1	Dispositif expérimental	125
6.1.1	Faisceau de photons	125
6.1.2	Système d'acquisition	127
6.2	Protocole expérimental	128
6.2.1	Cible et dispositif	128
6.2.2	Cycles d'irradiation	128
6.2.3	Mesure du bruit de fond	129
6.2.4	Fission induite par neutron	130
6.3	Nombre total de neutrons retardés émis par photofission	130
6.3.1	Mesures de flux	131
6.3.2	Mesure après une irradiation longue	132
6.3.3	Mesure après une irradiation très courte	132
6.3.4	Résultat	133
6.4	Spectre en temps des neutrons retardés	134
6.4.1	Comparaison avec d'autres données expérimentales	134
6.4.2	Irradiation 5 min - décroissance 5 min	137
6.4.3	Irradiation 5 s - décroissance 100 s	138
6.4.4	Irradiation 140 μ s - décroissance 30 s	139

6.5	Résultat global	140
6.6	Synthèse	142

Troisième partie

Discussion et conclusion	143
---------------------------------	------------

Chapitre 7

Discussion et perspectives	145
-----------------------------------	------------

7.1	Comparaison des spectres expérimentaux de neutrons retardés issus de photofission	145
7.2	Comparaison aux prédictions de HMS-ALICE et ABLA	147
7.3	Améliorations apportées aux codes de calcul	149
7.4	Influence de l'énergie d'excitation	150
7.5	Photofission et barrière	152
7.6	Utilisations possibles de la bibliothèque d'activation	153
7.6.1	Transmutation d'actinides dans un flux de photon	153
7.6.2	Production de faisceaux d'ions radioactifs	153
7.6.3	RACE	154
7.6.4	Concept de mini-irradiateur	154
7.7	Détection d'actinides par activation	155
7.8	Conclusion	155

Chapitre 8

Conclusion	157
-------------------	------------

Annexes	159
----------------	------------

TABLE DES MATIÈRES

Annexe A	
Liste des précurseurs	161
Annexe B	
Spectres de neutrons retardés	165
Annexe C	
Comparaison de sections efficaces de photoabsorption	169
Annexe D	
Correction de la courbe de décroissance	173
D.1 Problème général	173
D.2 Cas d'une irradiation finie avec un faisceau continu	175
D.3 Cas d'une irradiation avec un faisceau pulsé	176
D.4 Influence de la répétition des irradiations	178
Table des figures	181
Liste des tableaux	185
Bibliographie	189

Introduction

Depuis quelques années, un regain d'intérêt pour les réactions photonucléaires est apparu. Il est lié aux progrès faits sur les accélérateurs d'électrons en terme d'énergie et de puissance. De nombreuses applications de ces réactions [Fin90] ont ainsi pu être développées. La production de faisceaux radioactifs [Dia99] ou de sources intenses de neutrons [McC79], la transmutation de déchets nucléaires [Mat88], le contrôle non destructif de colis de déchets radioactifs [Lyo00, Li04] et la détection de matériaux nucléaires [Cha03a] sont les exemples les plus courants. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce travail de thèse visant à créer une bibliothèque d'activation photonucléaire et à mesurer les spectres d'émission de neutrons retardés issus de photofission.

La mise en évidence des réactions photonucléaires date de 1934 et de la découverte par Chadwick de la photodésintégration du deutérium [Cha34]. Ces réactions ont été abondamment étudiées depuis les années 1960 jusqu'au début des années 1980 [Bra63, Ber68, Vey73, Ful76, Gur76, Cal80]. En 1988, Dietrich et Berman publient un atlas [Die88] rassemblant toutes les données existantes sur les sections efficaces photonucléaires mesurées à l'aide d'un faisceau monoénergétique. Il semble que l'engouement porté aux réactions photonucléaires ait fortement baissé depuis le début des années 1980 parce que l'intérêt s'est porté vers les réactions induites par neutron. Ce dernier s'est encore renforcé avec le développement toujours croissant des centrales nucléaires.

La plupart des codes de transport ont logiquement été développés pour les études de réacteurs ou d'accélérateurs de hadrons. Lors de ces études, la contribution des réactions photonucléaires est négligeable. Ceci n'est cependant plus valable dès que l'on utilise des accélérateurs d'électrons et des cibles de Bremsstrahlung. Les réactions photonucléaires créées dans ce type d'installation produisent des neutrons qui doivent être pris en compte lors des études de radioprotection, de blindage et de démantèlement, entre autres. Certaines sources intenses de neutrons sont même produites par réactions photonucléaires ; il s'agit par exemple de l'installation ORELA à l'ORNL (*Oak Ridge National Laboratory*) aux États-Unis, de GELINA à Geel en Belgique ou encore de ELBE à Dresde en Allemagne. Le développement récent de telles installations a rendu nécessaire l'ajout d'évaluations de données photonucléaires dans les bibliothèques de données telles que ENDF, JEFF ou JENDL [Cha03b, Whi03, Kis04]. Les codes de transport ont également dû être modifiés afin d'utiliser ces nouvelles bibliothèques [Wat02].

En 1996, l'IAEA (*International Atomic Energy Agency*) a initié un projet visant à rassembler et à évaluer les sections efficaces photonucléaires existantes. L'objectif était double : créer une bibliothèque internationale de données photonucléaires évaluées pour les codes de transport et préparer un guide sur les données photonucléaires. Le projet s'est

achevé en 1999 par une publication [IAE00] et la mise à disposition d'une bibliothèque de données photonucléaires. Ces évaluations ont ensuite pu être ajoutées aux bibliothèques de codes de transport [Whi03].

Par contre, elles n'ont pas été incluses dans des codes de calcul d'évolution de matériaux. Le manque de données photonucléaires expérimentales ou évaluées est en effet problématique. Malgré les efforts de l'IAEA, seuls 164 isotopes ont été évalués alors que plus de 600 sont requis lors de calculs d'activation [Tho04]. En plus des sections efficaces d'activation, il est également indispensable de connaître les distributions isotopiques des produits de photofission. Comme pour les sections efficaces, les données expérimentales de distributions de produits de photofission [Jac79, Gun80, DeF82] sont peu nombreuses et incomplètes. Un des objectifs de cette thèse est ainsi de fournir une bibliothèque d'activation photonucléaire complète pour plus de 600 noyaux contenant les sections efficaces d'activation et les distributions de produits de photofission. Ce travail est détaillé dans la première partie de cette thèse.

Le chapitre 1 décrit les notions de physique utilisées lors de cette thèse tandis que le chapitre 2 présente les différents codes de calcul. Nous avons développé au chapitre 3 la construction de la bibliothèque d'activation photonucléaire. Nous avons pris comme base une bibliothèque extraite d'un code d'évolution dans un flux de neutrons : CINDER'90 [Wil99]. Grâce à la bibliothèque d'activation photonucléaire, calquée sur la bibliothèque d'activation neutronique déjà existante, il est possible d'effectuer des calculs dans des flux de photons. Les évaluations de l'IAEA ont été directement incluses dans la bibliothèque. Elles ont ensuite été complétées en calculant les données manquantes grâce à des codes de calcul de sections efficaces théoriques : HMS-ALICE [Bla05] et GNASH [You96]. Une première version de la bibliothèque de données photonucléaires ne contenant pas les produits de fission a ainsi été produite. Cette bibliothèque a été intégrée au code d'évolution CINDER'90. Grâce à elle, nous avons pu effectuer des calculs d'activation pour l'étude du zonage des déchets lors du démantèlement de l'accélérateur LURE [Com05]. Une comparaison entre les calculs et l'activité mesurée sur des carottes prélevées dans les murs du LURE a permis une première validation de la bibliothèque.

Après les sections efficaces, nous avons ajouté à la bibliothèque des distributions de produits de photofission. Considérant le petit nombre de données expérimentales, nous avons dû calculer ces distributions à l'aide de ABLA [Ben98, Jun98] ou de HMS-ALICE. Une étude comparative des distributions a été menée afin de déterminer les performances des deux codes. Les résultats de ces deux codes ont également été testés partiellement grâce à l'étude de l'émission de neutrons retardés par les produits de fission. Pour ce faire, un programme de prédiction des spectres en temps de neutrons retardés à partir des distributions isotopiques de produits de fission a été mis au point. Cependant les données expérimentales de spectres d'émission de neutrons retardés issus de la photofission sont rares et parfois incompatibles entre elles. C'est une des raisons pour lesquelles il a été décidé de lancer un programme expérimental de mesure de ces décroissances. À partir de telles mesures, il devrait être possible d'améliorer les performances des différents codes de calcul.

L'émission de neutrons retardés a été découverte par Roberts [Rob39a, Rob39b] dès 1939, soit un an à peine après la mise en évidence de la fission. L'idée de décrire les spectres

d'émission de neutrons retardés par une somme d'exponentielles date de 1948 [Hug48]. Depuis lors, on représente traditionnellement ces spectres par la somme de six exponentielles.

De nombreuses études ont été réalisées afin d'étudier l'émission de neutrons retardés. Elles ont principalement porté sur la fission induite par neutron des isotopes de l'uranium et du plutonium. Celles-ci ont en effet été motivées par le rôle primordial de l'émission de neutrons retardés dans le pilotage des centrales nucléaires. À la fin des années 1950, des mesures systématiques de ces spectres ont été réalisées [Bat56, Kee57a]. Leur but était de fournir des données précises pour les actinides les plus couramment utilisés. Ces données servent toujours de référence aujourd'hui. Après l'étude systématique de Keepin, des expériences pour étudier les spectres d'émission de neutrons retardés suite à la photofission ont été menées [Nik65, Kul70]. Cependant, les données existantes sont peu nombreuses et entachées de grandes barres d'erreur.

Récemment des progrès faits sur les accélérateurs d'électrons ont rendu possibles, entre autres, le contrôle non destructif de colis de déchets radioactifs [Lyo00, Li04] et la détection de matériaux nucléaires [Cha03a]. Ces applications utilisent des techniques basées sur la détection de neutrons retardés issus de photofission. Comme les données concernant ces spectres sont peu nombreuses, nous avons décidé de commencer une campagne de mesure systématique de ces spectres pour différents actinides à l'aide d'un faisceau de photons produits par Bremsstrahlung. Le début de cette étude est détaillée dans la deuxième partie de cette thèse.

Cette deuxième partie présente les différentes étapes qui ont permis la mesure des spectres d'émission de neutrons retardés issus de photofission. Tout d'abord, le programme expérimental a commencé par l'optimisation du détecteur grâce à des simulations et son étalonnage à l'aide de sources et d'un faisceau monoénergétique de neutrons. Cette première étape est décrite au chapitre 4. Le chapitre 5 présente la validation du protocole expérimental et de la méthode d'analyse. Cette validation a été effectuée grâce à une mesure de neutrons retardés issus de la fission de l'uranium-238 induite par des neutrons de 2 MeV. Cette expérience a eu lieu auprès de l'accélérateur 4 MV de Bruyères-Le-Châtel. L'objectif était de montrer qu'à l'aide de notre système de détection et de notre méthode d'analyse, nous étions capables d'extraire les paramètres bien connus des six groupes qui décrivent le spectre d'émission de neutrons retardés suite à la fission induite par neutron de l'uranium-238.

Une fois ceci confirmé, une expérience a finalement été menée auprès de l'accélérateur ELSA de Bruyères-le-Châtel avec une cible d'uranium-238 et un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV. Elle est décrite en détail au chapitre 6.

Dans la troisième partie, nous discuterons des apports de cette thèse. Au chapitre 7, nous comparerons nos résultats expérimentaux à d'autres mesures [Nik65, Kul70] et aux prédictions obtenues à l'aide des distributions de produits de fission calculées par ABLA et HMS-ALICE. Nous présenterons également les autres apports tels que la possibilité d'utiliser des codes de calcul pour prédire les spectres d'émission de neutrons retardés, l'étude de l'influence de l'énergie d'excitation sur l'émission de neutrons retardés, les différences entre la fission induite par neutron et la photofission en particulier au niveau

de la barrière de fission. Pour finir nous présentons quelques applications possibles de la bibliothèque d'activation photonucléaire avant de conclure au chapitre 8.

Les deux objectifs de cette thèse sont donc la création d'une bibliothèque d'activation photonucléaire et la mesure du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission. Le caractère applicatif de cette thèse n'exclut cependant pas l'étude de questions plus fondamentales.

Première partie
Développement d'une bibliothèque
d'activation photonucléaire

Chapitre 1

Notions physiques préliminaires

Le développement d'une bibliothèque d'activation photonucléaire ainsi que l'étude expérimentale des spectres d'émission de neutrons retardés font appel à diverses notions fondamentales comme les réactions photonucléaires, la fission et les neutrons retardés. L'objectif de ce chapitre est de présenter globalement chacun de ces trois domaines.

1.1 Production de photons et interactions photon-matière

Cette thèse porte essentiellement sur les réactions induites par photon. Nous commencerons donc par présenter les différentes méthodes de production de photons. Ensuite, nous nous intéresserons aux différentes interactions possibles entre les photons et la matière.

1.1.1 Présentation des différents types de faisceaux de photons

Afin de pouvoir étudier les réactions photonucléaires, il est nécessaire de disposer de photons. Cependant, il n'existe pas de source primaire de photons ayant une énergie suffisamment élevée pour induire des réactions photonucléaires et donc être intéressante pour notre étude. Parmi les sources primaires de photons on trouve, par exemple, le cobalt-60. Il émet deux raies gamma d'énergie 1.173 et 1.333 MeV. Ces énergies sont cependant trop faibles pour induire des réactions photonucléaires.

On utilise donc des faisceaux qui sont produits à partir d'électrons (Bremsstrahlung et photons taggés), de positrons (Bremsstrahlung et annihilation) ou par capture radiative de neutrons ou de protons. Ces différents processus sont décrits ci-dessous.

Production de photons par Bremsstrahlung

Le Bremsstrahlung [Kle03] est un processus d'interaction entre des électrons (ou positrons) et le champ électromagnétique d'un noyau. Dans ce champ coulombien, l'électron subit une diffusion inélastique radiative, c'est à dire que l'électron est ralenti sous l'action du champ et perd de l'énergie en émettant un photon (voir schéma figure 1.1). Le spectre en énergie des photons émis est continu de zéro à l'énergie T_{inc} des électrons incidents.

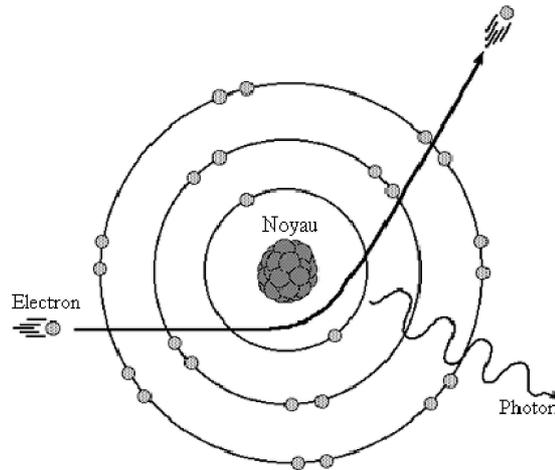


FIG. 1.1 – Schéma de l'émission de photon par Bremsstrahlung

La variation d'énergie (T) de l'électron en fonction de la distance parcourue (x) est donnée par la formule (1.1).

$$\left(\frac{dT}{dx}\right)_{Brem} = N \int_0^{T_{inc}} E_{\gamma} d\sigma(E_{\gamma}) \quad (1.1)$$

T_{inc}	énergie de l'électron incident
N	nombre d'atomes par unité de volume
σ	section efficace d'interaction

Il existe une formule plus simple (1.2) qui exprime la dépendance en Z et en T de cette interaction.

$$\left(\frac{dT}{dx}\right)_{Brem} = \alpha T Z^2 f(T) \quad (1.2)$$

$f(T)$	fonction croissante
α	constante

Plus les électrons perdent d'énergie, plus l'énergie des photons sera grande. D'après la formule (1.2), pour obtenir les photons les plus énergétiques, il est nécessaire d'avoir une cible avec un Z élevé et une énergie incidente maximale, sans induire de réactions parasites. Les cibles sont donc le plus souvent en tantale ($Z=73$) ou en tungstène ($Z=74$).

Comme il est difficile de calculer le spectre de Bremsstrahlung analytiquement dans le cas de cibles épaisses, celui-ci est en général simulé par un calcul Monte-Carlo. Des exemples de spectre de Bremsstrahlung obtenus par simulation pour des faisceaux d'électrons de 10, 15 et 20 MeV sont présentés sur la figure 1.2.

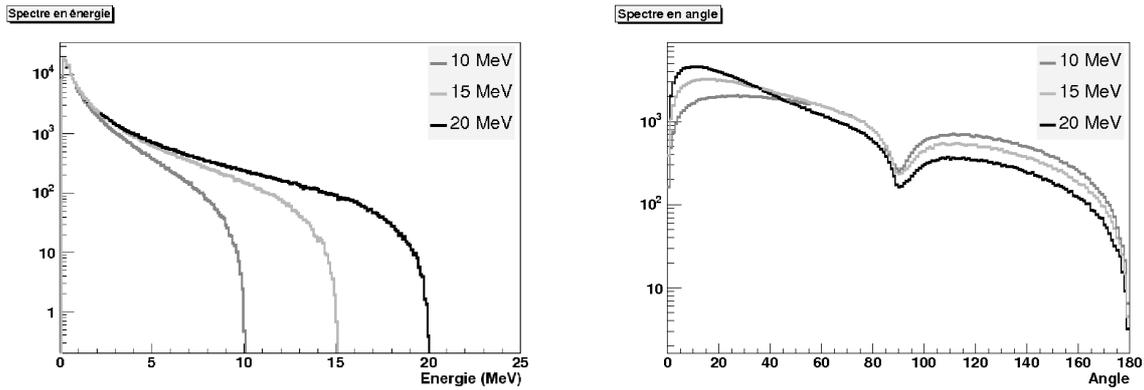


FIG. 1.2 – Exemples de spectres de Bremsstrahlung en énergie et en angle simulé avec MCNPX

Le spectre en énergie est décroissant jusqu'à la valeur de l'énergie des électrons incidents. Nombre de photons produits ont une énergie inférieure à 6 MeV donc inférieure aux seuils de réactions photonucléaires. On peut constater que l'énergie des photons augmente bien avec l'énergie des électrons.

Sur la distribution angulaire, on peut constater que le flux de photons est plus piqué vers l'avant quand l'énergie maximale du Bremsstrahlung augmente. D'autres études [Ber70] ont montré que les photons les plus énergétiques sont majoritairement émis vers l'avant. Un photon ayant une grande énergie ne peut être émis que par un électron qui a subi peu de déviations. L'axe du faisceau est donc privilégié. À l'inverse, pour des énergies de Bremsstrahlung plus basses, le faisceau de photons est quasiment isotrope.

Notons que le creux observé sur la figure 1.2 autour de 90° est lié à la présence de la cible de conversion. La cible, un cylindre de tantale de 3 cm de diamètre et de 1.2 mm d'épaisseur, est en effet placée perpendiculairement au faisceau donc les photons qui sont émis à 90° doivent traverser plus de matière et certains n'ont pas assez d'énergie pour sortir de la cible.

On peut déduire de ces observations qu'il est indispensable d'avoir des faisceaux d'électrons avec une énergie suffisamment élevée pour étudier les réactions à seuil que sont les réactions photonucléaires. Il est donc intéressant de se placer dans l'axe du faisceau afin de pouvoir profiter des photons les plus énergétiques.

La production de photons par Bremsstrahlung est la méthode la plus utilisée pour produire des faisceaux de photons. C'est également celle que nous avons utilisé lors de la mesure de neutrons retardés issus de photofission qui est présentée au chapitre 6. Le principal inconvénient de cette méthode est que le flux de photons n'est pas monocinétique. Si on utilise ce type de flux lors de mesures de sections efficaces, il est alors nécessaire de déconvoluer les résultats.

Production de photons par annihilation de positrons

Lorsque des positrons pénètrent dans la matière, ils peuvent être annihilés et produire des photons. Les positrons sont accélérés jusqu'à une énergie E , puis ils traversent une cible de conversion aussi fine que possible et avec un Z faible. Certains sont annihilés et produisent deux photons qui ont chacun une énergie de $E + 0.511$ MeV. Le flux de photons

est composé d'un pic de désintégration quasi monoénergétique ajouté à un spectre de Bremsstrahlung qui est d'autant plus intense que la cible est épaisse.

Pour certaines expériences, comme la mesure de sections efficaces, il est important de supprimer les réactions induites par les photons issus du Bremsstrahlung. La contribution du Bremsstrahlung aux réactions mesurées peut être connue si l'expérience est faite également avec des électrons à la place des positrons. Une fois cette contribution soustraite, il ne reste plus que la contribution des photons produits par annihilation.

À cause du bas rendement de la production de positrons et du processus de conversion, l'intensité du faisceau de photons produit est faible.

Photons taggés

La méthode de production de photons taggés consiste à produire des photons par Bremsstrahlung et à marquer ceux qui ont l'énergie souhaitée afin d'obtenir hors ligne des flux monoénergétiques. Comme pour le Bremsstrahlung, on utilise un faisceau primaire d'électrons d'énergie E_0 qui traverse une cible de conversion. La cible doit être suffisamment mince, de l'ordre de 0.1% de la longueur de radiation, pour qu'un électron ne produise qu'un photon au plus. La majeure partie du faisceau n'est pas affectée par la traversée de la cible. Elle est ensuite déviée par un spectromètre magnétique puis est arrêtée. Par contre, les électrons ayant interagi dans la cible, perdent une proportion significative de leur énergie par l'émission d'un photon. Après déviation dans le spectromètre, ces électrons sont détectés et leur énergie résiduelle E_{res} est mesurée. Ce signal est utilisé pour une mesure de coïncidence en temps des produits de réactions induits par le photon. L'énergie E_γ du photon produit vaut donc $E_\gamma = E_0 - E_{res}$.

Un faisceau d'électrons de faible intensité est nécessaire pour maintenir les coïncidences fortuites à un niveau acceptable. Le faisceau de photons obtenu a une intensité de l'ordre de $10^6 - 10^7 \gamma \cdot s^{-1}$. Cette méthode ne peut pas être utilisée pour la mesure de neutrons retardés car ceux-ci sont décorrélés en temps par rapport au photon ayant provoqué la réaction.

Production de photons par réactions nucléaires

On sait que, suite à la capture d'une particule, les noyaux peuvent se désexciter en émettant des photons. Cette méthode a donc été utilisée afin de produire des flux de photons monoénergétiques. La réaction ${}^7\text{Li}(p, \gamma){}^2{}^4\text{He}$ produit des photons de 17.5 MeV. Cette technique a été utilisée par Meason [Mea66]. Les flux obtenus sont de l'ordre de $10^6 \gamma/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$. Dans le cas de la capture d'un neutron, l'énergie de ces photons peut aller jusqu'à 11.4 MeV [Mor72, Ger00]. On voit ainsi que les énergies accessibles sont limitées. Le noyau peut également émettre plusieurs photons simultanément suite à la même capture. Il est donc également nécessaire de déconvoluer les spectres. Autre inconvénient, les flux obtenus sont extrêmement faibles.

1.1.2 Interactions photon-matière [Tam01]

Un photon qui traverse de la matière peut interagir avec elle. Plusieurs réactions sont possibles en fonction de son énergie cinétique. Nous présentons dans la suite de cette section les réactions les plus probables, c'est à dire l'effet photoélectrique, l'effet Compton, la diffusion Rayleigh, la création de paires et pour finir les réactions photonucléaires. Ces dernières nous intéressent tout particulièrement dans le cadre de cette thèse.

Effet photoélectrique

Un photon peut provoquer l'ionisation d'un atome si son énergie E est supérieure à l'énergie de liaison E_1 d'un des électrons du cortège. Ce photon est absorbé et communique toute son énergie à l'électron émis avec une énergie cinétique alors égale à $E - E_1$. L'effet photoélectrique est un processus à seuil. Il est dominant pour des photons ayant une énergie inférieure à 0.5 MeV.

Le réarrangement du cortège électronique de l'atome peut engendrer une cascade d'émission de photons. Les photons émis ont une énergie correspondant aux transitions entre les niveaux électroniques, soit de l'ordre de quelques dizaines d'eV. Compte tenu de la faible énergie cinétique de l'électron éjecté, celui-ci pourra perdre son énergie surtout par excitation et ionisation.

Effet Compton

Le photon incident subit une diffusion inélastique sur un électron libre ou peu lié à l'atome. Autrement dit, les énergies de liaison sont négligeables devant les transferts d'énergie mis en jeu. On peut expliquer l'effet Compton comme le résultat d'un choc élastique d'un photon sur un électron libre. C'est le mécanisme dominant de l'interaction photon-matière pour des énergies de photons voisines de 1 MeV.

Diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh est la diffusion d'un photon sur une distribution de charges. Lors de cette interaction tout le cortège électronique participe de façon cohérente au changement de direction du photon qui conserve son énergie.

Création de paires

Lorsque l'énergie du photon incident est supérieure à deux fois l'énergie de masse de l'électron (0.511 MeV), celui-ci peut se désintégrer dans le champ électrique du noyau en émettant un électron et un positron. L'énergie initiale est répartie aléatoirement entre les deux particules. Cependant, le positron est légèrement plus énergétique à cause de la répulsion coulombienne exercée par le noyau. L'énergie des particules produites étant relativement élevée, de nombreux photons sont créés par Bremsstrahlung essentiellement dans les matériaux lourds.

Interactions photon-noyau

Le photon peut directement interagir avec le noyau. Il lui transmet son énergie sous forme d'énergie d'excitation. Si le photon a une énergie suffisamment grande, le noyau se désexcite par émission de particules ou fission. Il s'agit également de réactions à seuil. Le seuil correspond à l'énergie de liaison de la particule la plus faiblement liée de l'atome.

Nous appellerons *réaction photonucléaire* l'absorption d'un photon par un noyau mais aussi toutes les réactions ou la fission causées suite à l'absorption. Ces réactions sont décrites plus en détail par la suite.

1.2 Réactions photonucléaires

L'effet photonucléaire a été mis en évidence pour la première fois en 1934 par Chadwick et Goldhaber [Cha34] lors de l'étude de la photodésintégration du deutérium. Les réactions photonucléaires, décrites en détail dans le livre de Fuller intitulé "*Photonuclear reactions*" [Ful76], sont dues à une interaction entre un photon et un noyau. Ces réactions à seuil (2 à 15 MeV mais majoritairement 6 MeV) peuvent se décomposer en deux étapes. Premièrement le photon est absorbé par le noyau et il y a alors formation d'un noyau composé excité. Cette étape est appelée *photoabsorption*. Ensuite le noyau composé évacue son excédent d'énergie en choisissant une voie de sortie parmi celles qui lui sont accessibles. Ces voies de sortie consistent le plus souvent en l'émission de particules mais certains noyaux, notamment les actinides, peuvent fissionner.

1.2.1 Photoabsorption

La section efficace de photoabsorption présente une allure générale commune à tous les noyaux, donnée par la figure 1.3. Sa valeur intégrale σ_0 est donnée par la règle de somme [Lev50], présentée aux équations (1.3) et (1.4).

$$\sigma_0 = \int_0^\infty \sigma_{abs}(E)dE = \frac{2\pi^2 e^2 \hbar}{Mc} \frac{NZ}{A} \quad (1.3)$$

$$\sigma_0 = 60 \frac{NZ}{A} \text{ (MeV.mb)} \quad (1.4)$$

Sa particularité est de présenter, pour tous les noyaux, une zone de résonance très large pour des photons ayant une énergie comprise entre 5 et 30 MeV. Cette région d'excitation s'appelle la région de résonance dipolaire géante ou GDR (pour *Giant Dipolar Resonance*). Nous nous intéresserons principalement à cette région dans la suite de cette thèse.

Lors d'une étude systématique dans la zone de GDR, Fuller [Ful73] a remarqué un écart de 20% entre les valeurs théoriques et expérimentales de σ_0 , pour les noyaux lourds et moyennement lourds ($A > 50$). Cet écart est confirmé par les mesures de Gurevich [Gur76]. Par la suite, nous utiliserons la formule (1.5) comme règle de somme dans la zone de GDR.

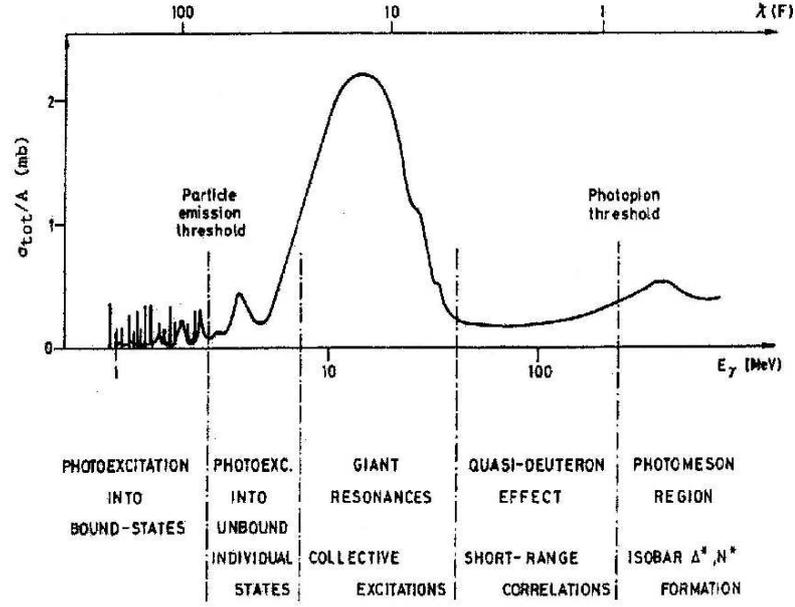


FIG. 1.3 – Allure générale de la section efficace de photoabsorption en fonction de l'énergie [Fin90]

$$\sigma_{0GDR} = \int_0^{\infty} \sigma_{GDR}(E) d(E)$$

$$\sigma_{0GDR} = 72 \frac{NZ}{A} (\text{MeV} \cdot \text{mb}) \quad (1.5)$$

La photoabsorption sur des noyaux sphériques peut être décrite par une lorentzienne dont les paramètres dépendent des caractéristiques des noyaux [Die88]. Pour les noyaux présentant dans leur état fondamental une déformation géométrique permanente, la section efficace de photoabsorption doit être modélisée par la somme de deux lorentziennes [Dan58], comme indiqué à l'équation (1.6). Celles-ci correspondent à l'oscillation des charges suivant le grand axe et les deux petits axes de l'ellipsoïde du noyau. Les deux petits axes sont considérés comme équivalents.

$$\sigma_{GDR}(E_\gamma) = \sum_{i=1}^2 \frac{\sigma_i E_\gamma^2 \Gamma_i^2}{[E_\gamma^2 - E_i^2]^2 + E_\gamma^2 \Gamma_i^2} \quad (1.6)$$

E_i énergie correspondant au pic de la i -ème lorentzienne

Γ_i largeur du pic

σ_i hauteur du pic

Pour les noyaux dont la charge est élevée, donc ayant une barrière coulombienne importante, il est possible d'approcher la section efficace totale de photoabsorption par la

somme des sections efficaces d'émission de neutrons et de fission suite à l'absorption d'un photon comme indiqué à l'équation (1.7). La barrière coulombienne supprime en effet l'émission de particules chargées.

$$\sigma_{GDR} = \sigma(\gamma, n) + \sigma(\gamma, xn) + \sigma(\gamma, F) \quad (1.7)$$

avec

$$\sigma(\gamma, F) = \sigma(\gamma, f) + \sigma(\gamma, nf) + \sigma(\gamma, xnf)$$

où x est un nombre entier strictement supérieur à 1.

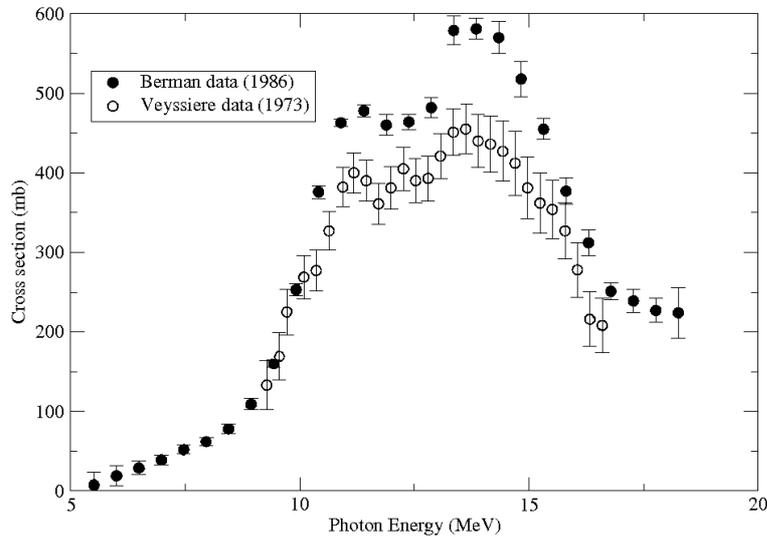


FIG. 1.4 – Sections efficaces expérimentales de photoabsorption du neptunium-237 dans la zone de GDR

Même si certaines études [Ber86, Vey73] divergent sur les valeurs des sections efficaces (figure 1.4), elles sont par contre toutes en accord sur leur allure. L'étude systématique de la section efficace de photoabsorption montre qu'elle varie peu d'un noyau à l'autre pour les noyaux lourds. Elle a un maximum d'environ 500 millibarns et une largeur d'environ 6 MeV.

1.2.2 Émission de photoparticules

Dans la zone de GDR, l'émission de particules est principalement due aux réactions (γ, n) , $(\gamma, 2n)$. Mais il existe également d'autres réactions telles que (γ, xn) où $x \geq 3$, (γ, p) , (γ, α) , (γ, d) , (γ, t) . Elles sont en général négligeables en raison des seuils élevés (barrière coulombienne, énergies de liaison), sauf pour les noyaux légers où la réaction (γ, p) peut devenir significative. Ces particules émises sont appelées *photoneutrons*, *photoprotons*...

Ces réactions sont d'autant plus probables que les noyaux-cibles sont lourds. Le seuil s'étend généralement de 6 MeV pour les actinides à 12 MeV pour des noyaux plus légers [IAE00]. Il varie toutefois en fonction du noyau : le béryllium-9 a un seuil à 1.67 MeV pour la réaction $(\gamma, n+2\alpha)$ car il s'agit d'un noyau faiblement lié. Par contre, pour des noyaux doublement magiques comme l'oxygène-16, le seuil de la réaction (γ, n) vaut 15.66 MeV. La section efficace est maximale aux environs de 15 MeV pour les noyaux ayant un seuil bas et 20-25 MeV pour les noyaux les plus liés.

Quelques exemples de seuils de réactions sont donnés dans le tableau 1.1. On constate que le seuil d'émission d'un proton est proche du seuil d'émission d'un neutron pour les noyaux lourds. On aurait pu penser que la barrière coulombienne avait un effet important sur le seuil. En fait, elle joue principalement sur la section efficace d'émission qui est très faible (quelques millibarns).

	${}^9\text{Be}$	${}^{16}\text{O}$	${}^{54}\text{Fe}$	${}^{208}\text{Pb}$	${}^{235}\text{U}$	${}^{238}\text{U}$
(γ, n)	1.67	15.66	13.38	7.37	5.3	6.15
$(\gamma, 2n)$	20.56	28.89	24.06	14.11	12.14	11.28
(γ, p)	16.89	12.13	8.85	8.01	6.71	7.62

TAB. 1.1 – Exemples de seuils de réactions photonucléaires (en MeV)

1.2.3 Photofission

La découverte de la fission en 1938 est communément attribuée à Hahn et Strassmann [Hah39], qui s'appuyèrent sur les travaux de Fermi. Cependant, dès 1925, Noddack et ses collaborateurs constatèrent l'apparition d'éléments légers lors de l'irradiation des noyaux d'uranium. Ils émirent alors l'hypothèse que ces éléments étaient le résultat de la division du noyau d'uranium [Wag91].

La description théorique de la fission est un des sujets les plus anciens de la physique nucléaire et de nombreux travaux ont été menés pour décrire, expliquer et prédire ce processus. Dans cette section nous décrirons brièvement la fission et ses caractéristiques. La *photofission* étant tout simplement la fission induite par photon, ses caractéristiques générales sont les mêmes que celle de la fission induite par neutron.

Processus de fission

Les conséquences de la fission d'un noyau sont les mêmes quelle que soit la manière dont est induite cette fission et elles dépendent principalement de l'énergie d'excitation du noyau composé formé. Pour illustrer la cascade d'événements que déclenche la fission d'un noyau, prenons l'exemple de l'uranium-235 bombardé par des neutrons thermiques.

Les valeurs données dans cette section peuvent être considérées comme des ordres de grandeurs caractéristiques de tous les types de fission.

Chaque fission donne naissance à deux fragments projetés à 180° l'un de l'autre dans le référentiel du centre de masse. On parle de *fission symétrique* si ces fragments de fission

sont de masse équivalente. Sinon on parle de *fission asymétrique*. Ces fragments emportent l'énergie libérée sous deux formes :

- énergie cinétique (168 MeV)
- excitation interne des fragments

Au cours du temps l'énergie d'excitation est libérée par différents vecteurs.

Des photons et des neutrons sont émis moins de 10^{-15} s après la fission par les fragments de fission. Ils sont appelés photons et neutrons *prompts*. Les photons ont une énergie moyenne comprise entre 0.5 et 2.5 MeV et ils évacuent au total environ 5 MeV. Il y a en moyenne trois neutrons prompts par fission qui emportent environ 2 MeV d'énergie chacun.

Malgré l'émission de neutrons prompts, les fragments restent riches en neutrons, en moyenne 1.54 neutron par proton contre 1.3 à 1.45 pour les noyaux stables. Chaque fragment subit donc plusieurs désintégrations β^- avant de rejoindre la vallée de stabilité.

Une fois sur cinq cents le noyau fissionne en trois fragments. Le troisième fragment est un noyau léger, généralement une particule alpha ayant une énergie cinétique comprise entre 5 à 25 MeV.

La figure 1.5 donne une représentation des durées séparant les différents phénomènes qui suivent la fission.

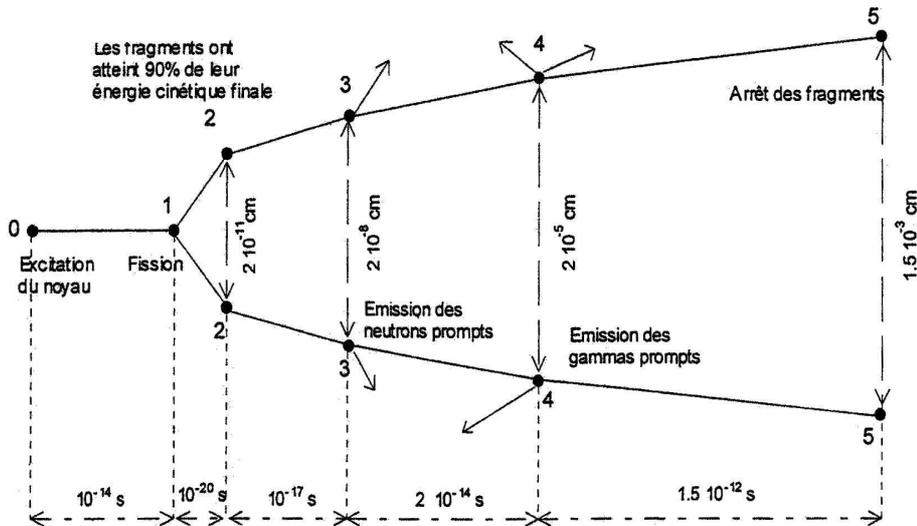


FIG. 1.5 – Temps caractéristiques des phénomènes suivant la fission [Bar93]

Barrière de fission

La *barrière de fission* est l'énergie qu'il faut fournir au noyau pour l'amener au point selle de sa courbe d'énergie potentielle. En ce point, le système est dans un état d'équilibre instable et peut évoluer vers le point de scission du noyau lourd en deux fragments de fission. La barrière détermine le seuil des réactions de fission. Ce seuil varie selon les

noyaux et les projectiles utilisés. Les données expérimentales suggèrent qu'il s'agit en fait d'une double voire d'une triple barrière de fission. Sur la figure 1.6, la forme du noyau ainsi que l'énergie potentielle calculée par deux modèles sont présentés : la goutte liquide (en trait pointillé) et la goutte liquide corrigée des effets de couches (en trait plein).

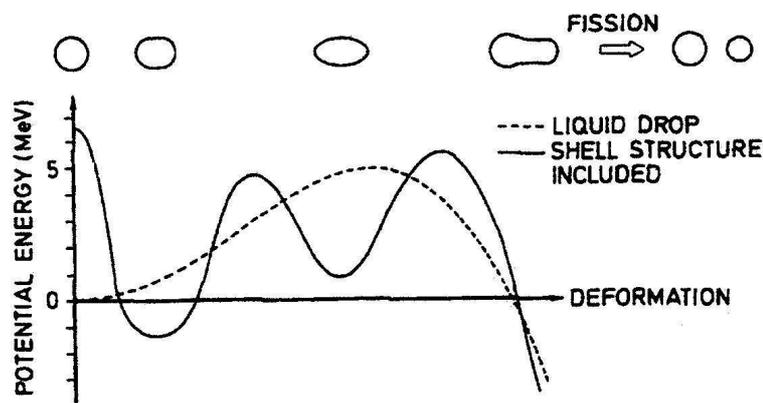


FIG. 1.6 – Schéma de la barrière de fission et déformation du noyau

Certains noyaux ont la possibilité de “traverser” spontanément cette barrière par effet tunnel, on parle alors de *fission spontanée*. Plus le noyau aura une charge élevée, plus l'effet tunnel sera important. On commence à voir de la fission spontanée pour l'uranium ($Z=92$). Elle ne devient vraiment importante que pour les noyaux au voisinage du californium ($Z=96$).

Fission de première et de deuxième chance

Après l'interaction entre le noyau et la particule incidente, le noyau composé peut décroître par émission d'un neutron. Si le noyau résiduel possède une énergie d'excitation interne supérieure à sa barrière de fission, il peut également fissionner. On parle alors de *fission de deuxième chance*. De même, il existe la fission de troisième, quatrième, n-ième chance.

Exemple de section efficace de photofission

Des mesures de sections efficaces de photofission ont été effectuées à Livermore [Cal80, Ber86] et à Saclay [Vey73] avec un faisceau de photons produit par annihilation de positrons. Ces mesures ont montré que le seuil de photofission est situé autour de 6 MeV. La section efficace présente en général deux maxima autour de 11 et 15 MeV. L'exemple de la section efficace de photofission de l'uranium-238 est présenté sur la figure 1.7.

Les écarts constatés sont liés à la méthode de mesure. La fission est en effet détectée par multiplicité de neutrons. Une mauvaise estimation sur l'émission de photoneutrons va directement induire des erreurs sur la section efficace de photofission.

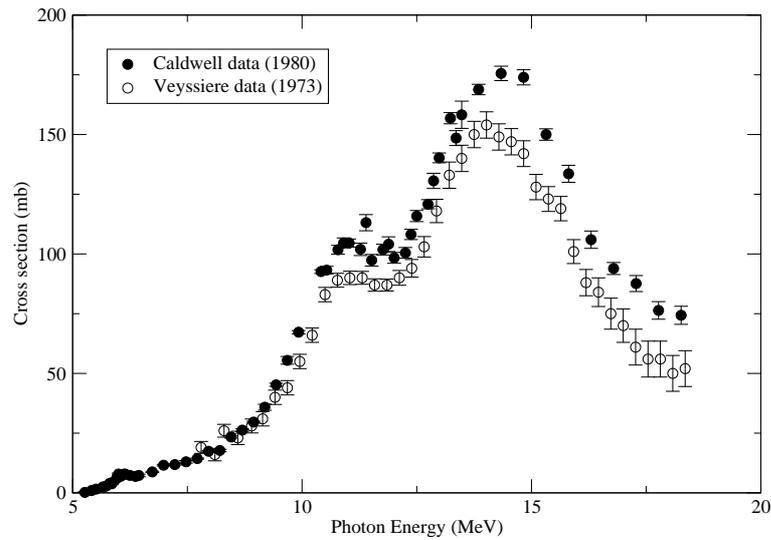


FIG. 1.7 – Section efficace expérimentale de photofission de l'uranium-238

1.3 Produits de fission

Comme nous l'avons précisé précédemment, la fission d'un noyau donne naissance la plupart du temps à deux fragments de fission. Dans cette section, nous nous intéresserons à leur évolution suite à la fission, ainsi qu'à leur probabilité de formation en fonction de leur masse et de leur charge indépendamment de la particule qui a induit la fission.

1.3.1 Terminologie

La fission d'un noyau lourd donne naissance à deux éléments plus légers de masses le plus souvent inégales. Ces deux éléments sont généralement instables et constituent le point de départ de la décroissance radioactive. Selon le moment où les éléments de fission sont pris en compte leur dénomination change :

- Le terme de *fragment de fission (primaire)* désigne chacun des noyaux formés par séparation du noyau lourd avant émission des neutrons prompts.
- Celui de *produit de fission primaire* regroupe les noyaux formés à partir des fragments de fission primaire après émission des neutrons prompts et avant toute décroissance.
- Enfin celui de *produit de fission secondaire* est réservé aux noyaux formés à partir des produits de fission primaires après émission β^- ou de neutrons retardés.

Chaque produit de fission a une probabilité de formation différente, liée à la nature du noyau qui fissionne et à l'énergie d'excitation du noyau composé. On définit communément deux types de probabilité :

- La *probabilité indépendante* de formation (ou *rendement indépendant*) : c'est la probabilité de formation du noyau (Z,A) comme produit de fission primaire.
- La *probabilité cumulée* (ou *rendement cumulé*) : c'est la probabilité de formation du noyau (Z,A) comme produit de fission primaire ou secondaire. Elle est égale

à la somme de la probabilité indépendante de formation du noyau (Z,A) et du produit des probabilités indépendantes de tous les produits de fission primaire qui contiennent dans leur chaîne de décroissance le noyau (Z,A) , par le taux d'embranchement. La probabilité cumulée est atteinte lorsque la production des produits de fission est à l'équilibre, c'est à dire lorsque la formation du noyau (Z,A) par réaction ou décroissance des pères est égale à sa disparition par réaction ou décroissance naturelle. C'est le cas si le temps d'irradiation est très grand devant le temps de demi-vie des produits de fission considérés.

Une distinction de vocabulaire est faite entre les particules émises par les fragments de fission et par les produits de fission. La durée de vie des fragments de fission étant extrêmement courte, on parle de photons et neutrons *prompts* pour leur décroissance et de photons et neutrons *retardés* pour la décroissance des produits de fission. Dans la suite de cette thèse nous étudierons plus particulièrement les neutrons retardés.

1.3.2 Distributions des produits de fission

L'étude des distributions des produits de fission porte souvent sur les distributions en masse, plus particulièrement sur les pics de masse et la répartition entre la fission symétrique et la fission asymétrique. La répartition neutron-proton à l'intérieur des produits de fission est également intéressante.

Pics de masse

Le pic de masse pour les produits lourds est quasiment indépendant du noyau de départ. Il se situe autour de $A=140$ (ligne sur la figure 1.8). Le pic des produits légers se déplace pour respecter la conservation de la masse. D'autres pics étroits peuvent se superposer à ce schéma général. Ils sont clairement visibles pour les actinides légers et s'estompent pour les plus lourds. Ces phénomènes sont visibles sur la figure 1.8.

Fission symétrique, fission asymétrique

Il a été montré expérimentalement [Gle81] que la fission est fortement asymétrique aux basses énergies d'excitation et tend à devenir symétrique lorsque l'énergie d'excitation du noyau composé augmente (voir figure 1.9 et tableau 1.2). Plus l'énergie de la particule incidente est importante, plus l'énergie d'excitation fournie au noyau sera grande. Cette évolution en fonction de l'énergie d'excitation peut être interprétée comme l'évolution du rapport des probabilités de fission symétrique et asymétrique. L'inverse de ce rapport est appelé *rapport pic/vallée*.

Dans le cas de la fission induite par un faisceau de photons créés par Bremsstrahlung d'énergie maximale E_{bs} , une équipe allemande [Gun80] a démontré que ce rapport pouvait être modélisé par l'équation (1.8) :

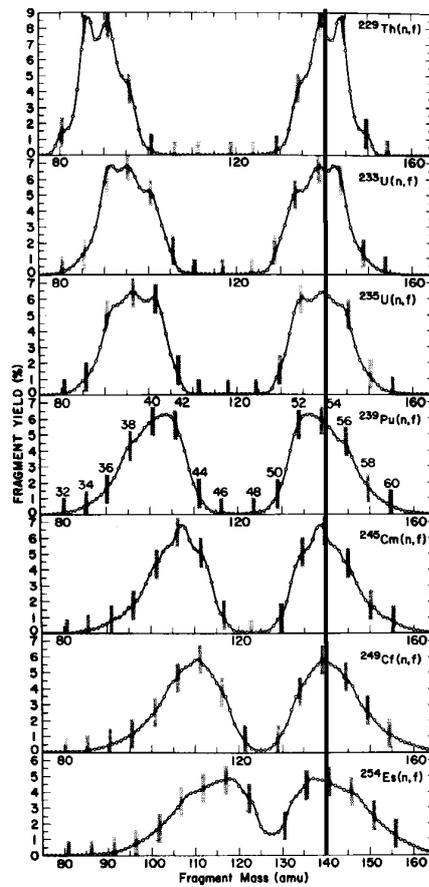


FIG. 1.8 – Distribution de masse des produits de fission pour différents noyaux [Uni73]

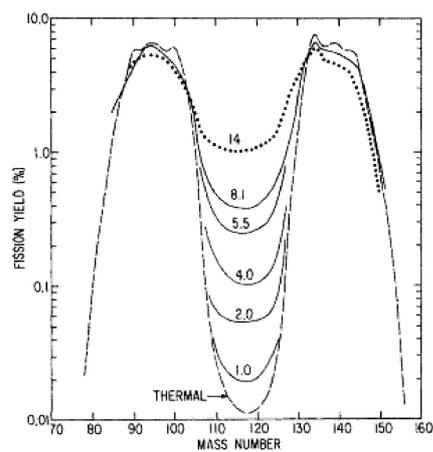


FIG. 1.9 – Distribution de masse suite à la fission de l'uranium-235 induite par des neutrons de différentes énergies [Gle81]

$$\frac{Y_{sym}}{Y_{asym}} = a + b e^{-c E_{bs}} \quad (1.8)$$

$$\frac{Y_{sym}}{Y_{asym}} \propto \frac{1}{\text{pic/vallée}}$$

- Y_{sym} probabilité de fission symétrique
 Y_{asym} probabilité de fission asymétrique
 E_{bs} énergie maximale de Bremsstrahlung
 a, b et c dépendent du noyau fissionnant

E_{bs} (MeV)	Rapport pic/vallée
12	78 ± 7
15	35 ± 4
20	22 ± 2
30	13.5 ± 0.9
70	8.2 ± 0.7

TAB. 1.2 – Variation du rapport pic/vallée en fonction de l'énergie maximale de Bremsstrahlung pour la photofission de l'uranium-238 [Jac79]

La relation (1.8) explique bien que la probabilité de fission symétrique augmente avec l'énergie d'excitation donc l'énergie maximale de Bremsstrahlung.

Répartition des protons et des neutrons

Les chaînes de décroissance des produits de fission sont majoritairement isobariques, l'émission de neutrons retardés étant relativement marginale. Pour une chaîne isobarique donnée, l'étude de la distribution des produits de fission permet de remonter à la dynamique de la fission. C'est dans cette optique qu'ont été menées des expériences afin d'étudier la distribution en masse mais également la distribution isotopique des produits de fission.

Wahl [Wah69] donne une expression analytique de la probabilité de répartition des charges dans une chaîne isobarique. Cette répartition est présentée par l'équation (1.9). Il s'agit d'une répartition gaussienne. Elle a été validée expérimentalement, en particulier pour des énergies d'excitation élevées.

$$P(Z/A) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_z} \exp \left[-\frac{(Z - Z_p)^2}{2\sigma_z^2} \right] \quad (1.9)$$

Il est nécessaire de déterminer la largeur σ_z de cette gaussienne, ainsi que la valeur Z_p de la charge la plus probable. La largeur de la gaussienne est souvent considérée comme indépendante de l'énergie d'excitation et prise égale à 0.40. Pour Z_p on choisit souvent la

valeur théorique Z_{ucd} (*ucd* pour *Unchanged Charge Density*). Cette valeur théorique est établie en supposant que la densité de charge (Z/A) reste constante entre le noyau et les produits de fission. Il existe toutefois un écart non négligeable entre les valeurs théoriques et expérimentales.

On a constaté de plus qu'aux basses énergies d'excitation une structure fine venait se superposer à cette répartition gaussienne. La formation des noyaux ayant un nombre de charge pair est favorisée. Ce phénomène disparaît avec l'augmentation de l'énergie d'excitation du noyau.

Expérimentalement, la répartition des produits de fission a été étudiée surtout pour les fissions induites par neutron. De ces études, il est possible de tirer des caractéristiques générales de la répartition des produits de fission. Celles-ci dépendent essentiellement de l'actinide irradié et de son énergie d'excitation. Théoriquement, si on connaissait la répartition des fragments de fission et leur énergie d'excitation il serait facile d'en déduire les caractéristiques des *émissions neutroniques* résultant de la fission c'est à dire des émissions de neutrons prompts et retardés. Il semble toutefois difficile de prédire de telles distributions.

1.4 Émission de neutrons retardés

1.4.1 Généralités

En 1939, Roberts [Rob39b] observe des neutrons émis après la fission de l'uranium et du thorium naturel avec un temps de demi-vie moyen de 12.5 ± 3 s. Il postule alors qu'ils sont, soit produits par photofission suite à l'activité gamma des produits de fission, soit émis directement par les produits de fission. Les mesures suivantes [Rob39a] ont montré qu'ils étaient émis directement par les produits de fission. Il s'agissait donc de la première observation de neutrons retardés.

Cette émission de neutrons s'explique par le fait que la fission produit des éléments riches en neutrons donc instables. La plupart de ces éléments décroissent par émission β^- . Or dans certains cas, l'énergie d'excitation des noyaux fils est supérieure au seuil d'émission d'un neutron. Ces noyaux continuent donc à se désexciter par l'émission d'un neutron. Le schéma de décroissance est présenté sur la figure 1.10. On appelle ces produits de fission des *noyaux précurseurs*. Près de 300 noyaux précurseurs sont connus [Eng94].

Les neutrons retardés représentent environ 1% des neutrons émis par fission. Comme pour les neutrons prompts, le nombre total de neutrons retardés émis par fission est lié à l'actinide et à son énergie d'excitation.

Ces noyaux ont un temps de demi-vie qui varie de la centaine de millisecondes à plusieurs dizaines de secondes. Ils sont également utiles en tant que marqueurs de la fission. Si l'on détecte des neutrons quelques secondes après une irradiation, le matériau irradié contient donc des produits fissiles [Lyo00]. Le temps de vie moyen des précurseurs produits par fission induite par neutron permet d'identifier sans ambiguïté le système fissionnant, s'il n'y a pas de fission de seconde chance [Pik02]. On peut raisonnablement supposer qu'il en est de même pour la photofission.

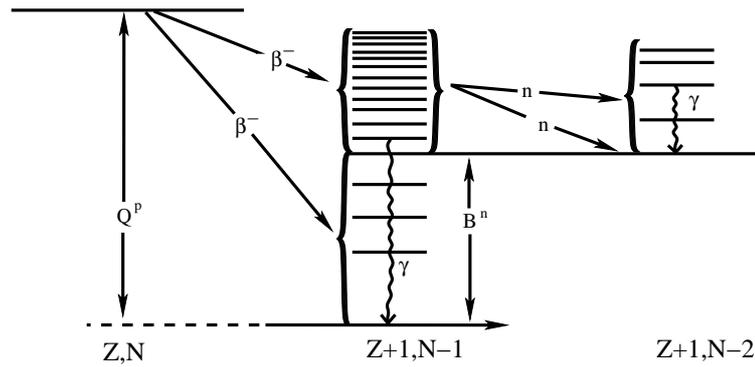


FIG. 1.10 – Schéma de décroissance par émission d'un neutron retardé

1.4.2 Décroissance par émission de neutrons retardés

Le spectre d'émission en temps de neutrons retardés ($Y_{dn}(t)$) est donné par la formule (1.10), si la production des produits de fission est à l'équilibre, c'est à dire si le temps d'irradiation est très grand devant le temps de demi-vie des précurseurs.

$$Y_{dn}(t) = \sum_{\text{prec}} Y_c P_{dn} \exp(-\lambda_{dn} t) \quad (1.10)$$

prec	ensemble des noyaux précurseurs
Y_c	taux de production cumulatif du noyau précurseur
P_{dn}	probabilité de décroissance du noyau précurseur par émission de neutrons retardés
λ_{dn}	période de demi-vie du noyau précurseur

Malgré le très grand nombre de noyaux précurseurs, les études de Keepin [Kee65] ont montré que l'analyse temporelle de l'émission des neutrons retardés pouvait être simplifiée en classant les précurseurs en six groupes selon leur temps de vie. La répartition des précurseurs entre les six groupes est présentée dans le tableau 1.3. Depuis Keepin, d'autres représentations à huit ou à douze groupes ont été proposées [Spr99, Isa02] cependant elles ne sont pas utilisées. La représentation en six groupes est celle utilisée en physique des réacteurs et la plupart des mesures expérimentales ont été interprétées avec cette représentation.

Groupe	$T_{1/2}$ minimal (s)	$T_{1/2}$ maximal (s)	Exemple de précurseur
1	30	Infini	^{87}Br
2	10	30	^{137}I - ^{88}Br
3	3	10	^{138}I
4	1	3	^{139}I - $^{92-94}\text{Kr}$
5	0.3	1	^{95}Rb
6	0	0.3	^{96}Rb

TAB. 1.3 – Temps de demi-vie des différents groupes et exemple de précurseurs

La formule (1.10) peut donc s'écrire sous la forme (1.11).

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 a_i \exp(-\lambda_{dn_i} t) \quad (1.11)$$

où

$$a_i = \sum_{\text{prec} \in \text{groupe } i} Y_c P_{dn}$$

$$\lambda_{dn_i} = \frac{\sum_{\text{prec} \in \text{groupe } i} Y_c P_{dn} \lambda_{dn}}{a_i}$$

Le nombre total de neutrons retardés émis par fission ($\bar{\nu}_d$) est défini par l'équation (1.12). Si la production de précurseur est à l'équilibre, $\bar{\nu}_d$ est égal à la somme des contributions des différents groupes.

$$\bar{\nu}_d = \sum_{i=1}^6 a_i \quad (1.12)$$

La contribution absolue de chaque groupe (A_i) peut être calculée à partir des contributions relatives de chaque groupe (a_i) et du nombre total de neutrons retardés émis par fission ($\bar{\nu}_d$).

$$A_i = a_i \bar{\nu}_d \quad (1.13)$$

Cas particuliers

Si le temps d'irradiation est grand devant le temps de demi-vie des précurseurs, la production de précurseurs est à l'équilibre. $\bar{\nu}_d$ peut également être calculé, à partir de l'équation (1.11), par la formule suivante.

$$\bar{\nu}_d = Y_{dn}(t = 0) \quad (1.14)$$

Si le temps d'irradiation (T_{irr}) est du même ordre de grandeur que le temps de demi-vie des précurseurs, la distribution cumulative n'est pas atteinte. Les formules (1.10) et (1.11) ne sont plus valables. Elles doivent être corrigées pour tenir compte du temps d'irradiation (1.15) et (1.16).

$$Y_{dn}(t) = \sum_{\text{prec}} Y_c P_{dn} \exp(-\lambda_{dn}t) (1 - \exp(-\lambda_{dn}T_{irr})) \quad (1.15)$$

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 a_i \exp(-\lambda_{dn_i}t) \underbrace{(1 - \exp(-\lambda_{dn_i}T_{irr}))}_{\text{facteur correctif}} \quad (1.16)$$

Si le temps d'irradiation est petit devant le temps de demi-vie des précurseurs, alors en approchant le facteur correctif de l'équation (1.16) on peut réécrire l'équation (1.11).

$$1 - \exp(-\lambda_{dn_i}T_{irr}) \simeq \lambda_{dn_i}T_{irr}$$

d'où

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 a_i \exp(-\lambda_{dn}t) \lambda_{dn_i}T_{irr} \quad (1.17)$$

À partir de cette équation, on peut déterminer la valeur de \bar{v}_d grâce à l'équation (1.18).

$$\bar{v}_d = \frac{1}{T_{irr}} \int_0^{\infty} Y_{dn}(t) dt \quad (1.18)$$

On déduit des équations (1.14) et (1.18) qu'il est possible d'obtenir la valeur de \bar{v}_d par deux méthodes :

- en mesurant le nombre de neutrons retardés émis à $t = 0$ par un échantillon irradié suffisamment longtemps pour que les précurseurs soient à l'équilibre (équation (1.14))
- en mesurant le nombre total de neutrons retardés émis suite à une irradiation très courte (équation (1.18))

Ces deux méthodes ont été utilisées lors des expériences de mesures de neutrons retardés décrites aux chapitres 5 et 6.

1.4.3 Spectre en énergie des neutrons retardés

Le spectre en énergie des neutrons retardés est mal connu. Il s'étend de 100 keV à 1 MeV environ, sa valeur moyenne vaut environ 500 keV. L'énergie des neutrons émis par les précurseurs ayant un temps de vie long est plus faible [Bat56]. Ces spectres sont différents selon le groupe et ils dépendent fortement des précurseurs produits lors de la fission. Il est donc difficile de prédire ces spectres et très peu de mesures existent. Les spectres en énergie des neutrons retardés émis par l'uranium-235 suite à la fission induite

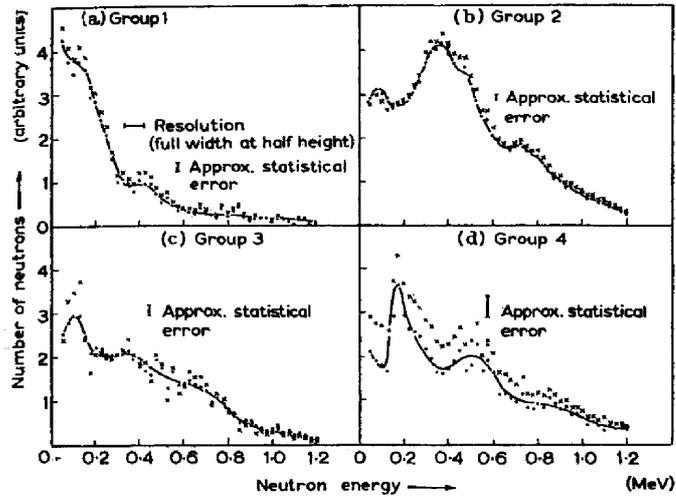


FIG. 1.11 – Spectres en énergie des quatre premiers groupes de neutrons retardés de l’uranium-235 issus de la fission induite par des neutrons thermiques [Bat56]

par des neutrons thermiques sont présentés sur la figure 1.11 pour différents groupes. Dans ce cas, l’énergie des neutrons retardés est inférieure à 1.2 MeV avec un maximum autour de 200-300 keV.

Lors de notre étude nous considérerons donc que le spectre en énergie des neutrons retardés s’étend de 100 keV à 1 MeV. N’ayant pas de données expérimentales sur l’émission angulaire, nous la supposerons isotrope. L’émission des neutrons retardés ayant lieu alors que les produits de fission sont au repos, il semble logique qu’il n’y ait pas de direction privilégiée.

1.5 Synthèse

Nous avons présenté ici les réactions photonucléaires, la production de produits de fission et les neutrons retardés. Ces trois sujets sont importants pour la mesure de spectres d’émission de neutrons retardés et la création de la bibliothèque d’activation photonucléaire. Cette bibliothèque doit contenir les sections efficaces d’activation photonucléaires pour de nombreux noyaux, mais aussi les distributions des produits de fission pour les noyaux fissiles et les spectres d’émission de neutrons retardés.

Chapitre 2

Les codes de calcul

Dans le cadre du travail présenté ici, il est indispensable de pouvoir calculer des sections efficaces photonucléaires et des distributions de produits de photofission pour de nombreux noyaux. Ce type de données expérimentales est effectivement rare pour les réactions qui nous intéressent. Nous avons utilisé trois codes différents qui nous ont permis de calculer ou d'évaluer les données manquantes. Il s'agit des codes HMS-ALICE [Bla96], GNASH [You96] et ABLA [Ben98, Jun98]. HMS-ALICE et GNASH ont été utilisés pour le calcul de sections efficaces photonucléaires, HMS-ALICE et ABLA pour le calcul des distributions de produits de photofission.

Afin de préparer nos expériences, des simulations préliminaires sont par ailleurs nécessaires. Nous avons utilisé MCNPX [Wat02] pour le calcul de transport et CINDER'90 [Wil99] pour le calcul d'activation.

Afin d'étudier en détail l'émission de neutrons retardés, un programme a été développé pour prédire les spectres en temps d'émission de neutrons retardés à partir d'une distribution de produits de fission individuelle ou cumulative.

Ces codes seront présentés à tour de rôle dans les sections suivantes.

2.1 Codes de calcul de sections efficaces et de distribution de produits de fission

Il existe deux types de codes de calcul de sections efficaces. Les codes à caractère prédictif permettent d'obtenir des valeurs de sections efficaces pour des noyaux sur lesquels aucune mesure n'existe. Les paramètres de ces codes sont ajustés globalement. Les codes d'évaluation, quant à eux, permettent d'obtenir des informations supplémentaires comme les distributions en angle et en énergie à partir de mesures expérimentales de sections efficaces. Les paramètres sont ajustés pour chaque noyau afin de reproduire au mieux les résultats expérimentaux.

Les codes de calcul de sections efficaces sont tous basés sur le même schéma de calcul :

- absorption de la particule incidente
- répartition de l'énergie de la particule incidente sous forme d'excitation du noyau et émission de particules
- désexcitation du noyau par émission de particules et/ou fission

Ce schéma de calcul ainsi que les codes HMS-ALICE, GNASH et ABLA seront présentés plus en détail dans la suite de cette section.

2.1.1 Principe du calcul de sections efficaces de réactions

La section efficace d'absorption est une donnée essentielle pour le calcul de sections efficaces à l'aide de modèles nucléaires. Elle peut, soit être calculée directement par un modèle théorique, soit être donnée comme paramètre d'entrée à partir de données expérimentales. La plupart des modèles déterminent quelle est la probabilité relative d'avoir telle ou telle réaction en fonction de l'énergie d'excitation. La section efficace d'absorption permet alors de normaliser les résultats obtenus, c'est à dire de calculer la valeur absolue des sections efficaces des différentes réactions.

Pour ce type de calcul, deux modèles de réactions successifs sont pris en considération : le modèle de *prééquilibre* [Gri66, Bla71] et le modèle d'*évaporation* [Wei37, Wei40, Hau52]. Le prééquilibre décrit les interactions nucléon-nucléon à l'intérieur du noyau suite à l'interaction avec une particule incidente et ce jusqu'à l'équilibre thermique du noyau. Des nucléons peuvent être émis pendant la phase de prééquilibre.

Il existe au moins deux versions du modèle de prééquilibre, le *modèle de l'exciton* [Gri66] et le *modèle hybride* [Bla71], qui dérive toutefois du modèle de l'exciton. Toutes deux décrivent une succession d'états caractérisée par le nombre d'excitons n . On part d'un niveau initial n_0 pour arriver à l'état \bar{n} pour l'équilibre par une série d'interactions à deux corps. À chaque étape le noyau peut émettre une particule ou décroître dans un état plus complexe. Pour les réactions photonucléaires, l'état initial est à deux particules et un trou soit $n_0 = 2p1h$ [Bla83]. Le prééquilibre est atteint lorsqu'il n'y a plus d'interaction à deux corps possible.

Une fois le prééquilibre atteint, un modèle d'évaporation est employé. Il peut être décrit par la théorie de Weisskopf-Ewing [Wei40] ou par la théorie d'Hauser-Feshbach [Hau52] qui tient compte de la conservation du spin et de la parité. L'évaporation décrit la probabilité associée aux différentes voies employées par le noyau pour revenir à l'équilibre. Dans le cas des actinides, il faut ajouter un modèle additionnel qui décrit la compétition entre la fission et l'évaporation.

2.1.2 HMS-ALICE

HMS-ALICE [Bla05] est un code de calcul de sections efficaces à caractère prédictif. Il est toujours en cours de développement à Los Alamos. Son utilisation est simple grâce au petit nombre de paramètres libres. Il demande en entrée la nature du projectile – neutron, proton ou photon – son énergie qui doit être comprise entre 100 keV et le seuil de création de pion et la nature de la cible qui doit être plus lourde que le béryllium-9. Il permet d'effectuer rapidement de nombreux calculs.

Ce code utilise le modèle hybride pour le calcul du prééquilibre et la théorie de Weisskopf-Ewing pour le calcul de l'évaporation. La probabilité de fission est décrite par le modèle de Bohr et Wheeler [Boh39].

HMS-ALICE a déjà été utilisé pour calculer des réactions photonucléaires mais juste au delà de la zone de GDR, entre 25 et 132 MeV [Bla83]. Les sections efficaces de production

de photoneutrons et la multiplicité moyenne sont bien reproduites pour l'oxygène-16, l'étain, le cérium, le tantale et le plomb. Si les prédictions de HMS-ALICE sont parfois sujettes à caution, dans le cas des réactions photonucléaires les résultats semblent plutôt bons.

Dans sa dernière version, HMS-ALICE permet également de calculer les distributions de produits de fission à l'aide du modèle décrit par Mashnik et Gudima [Mas02] et utilisé dans CEM2k [Mas00]. Cette capacité n'a jusqu'à présent jamais été testée ni en fission induite par neutron, ni en photofission.

2.1.3 GNASH

Selon Oblozinsky [Obl02], GNASH est le meilleur code d'évaluation qui possède la possibilité d'émettre plusieurs particules lors du prééquilibre et de l'émission statistique de particules à l'équilibre. À la différence de HMS-ALICE de nombreux paramètres peuvent être ajustés afin de reproduire les résultats des sections efficaces expérimentales. GNASH est un code destiné à l'évaluation de données et non un code à caractère prédictif comme HMS-ALICE.

GNASH a été largement utilisé par le laboratoire de Los Alamos qui l'a développé pour évaluer des sections efficaces de réactions induites par neutron. Plus récemment, il a été modifié et utilisé lors de l'estimation de sections efficaces photonucléaires de douze isotopes [Cha03b] pour le "*Handbook on photonuclear data for applications*" [IAE00]. Le plus lourd des isotopes étudiés est le plomb. Les actinides et la photofission n'ont donc pas été pris en compte lors de cette étude.

De nombreux fichiers d'entrée sont requis, en particulier ceux contenant les coefficients de transmission et les niveaux d'excitation de chaque noyau étudié. Les fichiers d'entrée sont longs à produire mais ils ne dépendent que du noyau cible. Pour les réactions photonucléaires, il est donc possible d'utiliser les fichiers produits lors de l'évaluation de sections efficaces de réactions induites par neutron.

GNASH utilise le modèle de l'exciton puis la théorie d'Hauser-Feshbach. Les modèles utilisés dans GNASH ainsi que son utilisation sont décrits en détail dans le manuel d'utilisation [You96].

Dans le cadre de cette thèse, GNASH est utilisé pour évaluer des sections efficaces photonucléaires sur des actinides. La première étape consiste à lui fournir une section efficace de photoabsorption. Elle n'est pas obligatoire mais cela permet d'avoir des résultats plus précis que si elle est calculée par GNASH. Les fichiers d'entrée utilisés sont les mêmes que pour les réactions induites par neutron après quelques modifications mineures : la voie d'absorption d'un neutron est supprimée et l'on précise que la particule incidente n'est plus un neutron mais un photon. Après un premier calcul utilisant ces fichiers, il est nécessaire de réitérer les calculs afin d'ajuster au mieux les paramètres pour reproduire les données.

La plus grosse partie du travail consiste enfin à ajuster les différents paramètres afin de reproduire au mieux les données expérimentales. Nous avons modifié essentiellement les paramètres des barrières de fission pour les actinides. En utilisant une méthode dichotomique, nous avons pu ajuster au mieux les paramètres des barrières de fission afin de reproduire les données expérimentales.

2.1.4 ABLA

ABLA [Jun98] est un code qui décrit la désexcitation d'un noyau composé par émission de particules légères ou par fission. Cette désexcitation est décrite par la théorie de Weisskopf-Ewing. Le code ABLA est connu pour donner de bons résultats pour la description du processus de désexcitation suite à la spallation, où le noyau perd son énergie par évaporation et/ou fission. La désexcitation est basée sur un modèle statistique où la fission est en compétition directe avec l'émission de particules. Le code donne donc les sections efficaces d'émission de neutron (et de proton), celles de fission mais aussi les distributions de produits de fission à l'aide du modèle semi-empirique PROFI [Ben98]. La fission multichance est elle aussi prise en compte. La fission est traitée par la méthode de Bohr et Wheeler.

On commence par décrire l'absorption du photon et l'excitation du noyau. Le noyau est produit directement à l'équilibre thermique. Ensuite, la désexcitation du noyau est calculée. Lors des calculs avec ABLA, le prééquilibre est négligé.

Ce code est utilisé, dans le cadre de cette thèse, pour calculer les distributions des produits de fission. Lors de ces calculs, les résultats ont été jugés suffisamment bons sans avoir à rajouter le prééquilibre.

2.2 Codes de simulation

Avant de lancer une expérience, il est souvent nécessaire de faire de nombreuses simulations. C'est en particulier le cas lorsque l'on utilise des faisceaux de Bremsstrahlung. Ils sont difficiles à mesurer directement et ne peuvent pas être déterminés par un calcul simple si la cible employée est trop épaisse [Sch51, Ber70]. La simulation des réactions photonucléaires est donc indispensable pour nos études. Nous avons choisi d'utiliser MCNPX car il intègre les réactions photonucléaires. Il est en outre basé sur le code MCNP qui est très largement utilisé en physique nucléaire.

En ce qui concerne les calculs d'activation, nous avons choisi CINDER'90 car il s'agit d'un code multigroupe, donc plus précis que les codes monogroupes. De plus, après d'utiles discussions avec Bill Wilson (l'auteur du code), nous avons conclu que CINDER'90 pouvait facilement être modifié afin d'intégrer une bibliothèque d'activation photonucléaire.

2.2.1 MCNPX

Il s'agit d'un code de transport dérivé de MCNP [Bri00] basé sur du calcul Monte Carlo. Toutes les fonctions de MCNP sont présentes dans MCNPX. Par contre, sa fonctionnalité est étendue aux hautes énergies, supérieures à 20 MeV, grâce à l'utilisation de LAHET [Pra01] et de bibliothèques de données jusqu'à 150 MeV. Il peut être utilisé avec de nombreux types de particules (neutrons, protons, photons, alpha, ...). Il est nécessaire de lui fournir en entrée une description géométrique en trois dimensions de l'environnement où sont transportées les particules. Il décrit l'historique de chaque particule incidente et des particules créées au cours du transport. Ceci permet d'avoir une description complète des flux de particules dans l'environnement. Plus de détails sont disponibles dans le manuel d'utilisation [Wat02].

Un effort pour développer les bibliothèques de sections efficaces photonucléaires a été fait par l'IAEA et cela a abouti au "*Handbook on photonuclear data for applications*" [IAE00] et à la production d'une bibliothèque de sections efficaces pour 164 isotopes. Grâce à cette bibliothèque les réactions photonucléaires ont pu être ajoutées aux capacités de MCNPX pour ces isotopes [Whi03].

Nous avons essentiellement utilisé ce code lors de la phase de préparation de nos expériences de mesure de neutrons retardés et lors de l'analyse des résultats.

2.2.2 CINDER'90

CINDER'90 est un code de calcul d'activation multigroupe. Il est utilisé pour calculer l'activation induite par des neutrons ayant une énergie inférieure à 25 MeV.

Nous nous sommes inspirés de la structure de sa bibliothèque d'activation multigroupe afin de créer la nôtre.

Description

CINDER'90 décrit les concentrations temporelles des nucléides détruits et/ou créés dans des matériaux soumis à un flux de neutrons. Ce code d'évolution qui fournit l'inventaire des éléments à l'aide d'une bibliothèque de sections efficaces calculées pour 63 groupes d'énergie [Wil95, Wil99]. Il utilise pour cela une bibliothèque basée sur des données nucléaires afin de déterminer tous les chemins possibles et ainsi calculer les concentrations partielles et l'activité associée à chaque nucléide.

CINDER'90 a besoin en entrée, de la description du flux de particules et de la probabilité de production de nucléides pour des réactions hors du domaine défini dans ses bibliothèques. Le flux de particules est décrit à l'aide d'autres codes comme MCNP. Des programmes sont nécessaires pour coupler ces codes entre eux [Wil99]. Pour chaque étape en temps décrite dans un fichier d'entrée, CINDER'90 calcule uniquement la densité atomique, la densité d'activité, la densité de neutrons retardés et les événements de fission induite par neutrons.

Structure de la bibliothèque d'activation de CINDER'90

La structure de la bibliothèque d'activation de CINDER'90 nous intéresse tout particulièrement puisque nous souhaitons créer une bibliothèque d'activation. Nous allons donc l'étudier ici en détail. Pour chaque noyau, la bibliothèque contient :

- la durée de vie
- les énergies, en MeV, des particules émises par la décroissance naturelle ; en particulier le spectre de décroissance gamma en 25 groupes
- les décroissances naturelles et le taux d'embranchement pour les noyaux radioactifs
- les différentes distributions des éventuels produits de fission en fonction de l'énergie des neutrons
- le nombre de produits de réaction avec pour chacun :
 - le produit de réaction
 - la section efficace en 63 groupes pour des énergies allant jusqu'à 25 MeV

La valeur de la section efficace pour un groupe est la moyenne de la section efficace pondérée par un flux de neutrons. Suivant l'énergie du groupe, on choisira un flux typique de réacteur thermique ou rapide. Les sections efficaces utilisées dans cette bibliothèque proviennent de différentes sources (EAF, ENDF, JEFF).

La bibliothèque contient 3400 noyaux. L'activation est calculée pour 736 de ces noyaux. Les noyaux dont les sections efficaces d'activation sont négligées, sont des noyaux à courte période radioactive. Pour ces noyaux, seule la décroissance radioactive est prise en compte lors de calcul d'activation. Cela permet également d'alléger les calculs.

Si les matériaux activés contiennent des noyaux fissiles, il est nécessaire de disposer des distributions des produits de fission pour calculer l'activité induite. La bibliothèque contient donc quatre types de distributions de produits de fission, en fonction de l'énergie des neutrons incidents, pour une trentaine d'actinides : distribution suite à une fission induite par un neutron thermique (n_{th}), rapide (n_f) ou de 14 MeV (n_h) ou par fission spontanée. Ces différentes distributions sont listées dans le tableau 2.1.

Th-227 + n_{th}	Th-229 + n_{th}	Th-232 + n_f	Th-232 + n_h
Pa-231 + n_f	U-232 + n_{th}	U-233 + n_{th}	U-233 + n_f
U-233 + n_h	U-234 + n_f	U-234 + n_h	U-235 + n_{th}
U-235 + n_f	U-235 + n_h	U-236 + n_f	U-236 + n_h
U-237 + n_{th}	U-237 + n_f	U-237 + n_h	U-238 + n_f
Np-237 + n_{th}	Np-237 + n_f	Np-237 + n_h	Np-238 + n_f
Pu-238 + n_f	Pu-239 + n_{th}	Pu-239 + n_f	Pu-239 + n_h
Pu-240 + n_{th}	Pu-240 + n_f	Pu-240 + n_h	Pu-241 + n_{th}
Pu-241 + n_f	Pu-242 + n_{th}	Pu-242 + n_f	Pu-242 + n_{th}
Am-241 + n_{th}	Am-241 + n_f	Am-241 + n_h	Am-242*
Am-243 + n_f	Cm-242 + n_f	Cm-243 + n_{th}	Cm-243 + n_h
Cm-244	Cm-244 + n_f	Cm-245 + n_{th}	Cm-246
Cm-246 + n_f	Cm-248	Cm-248 + n_f	Cm-249 + n_{th}
Cm-250	Cm-251 + n_{th}	Cm-252	Es-253
Es-253 + n_{th}	Fm-254	Fm-255 + n_{th}	Fm-256

TAB. 2.1 – Liste des noyaux pour lesquels des distributions de produits de fission sont disponibles dans la bibliothèque d'activation de CINDER'90

Un des objectifs de cette thèse est de développer une bibliothèque d'activation photonucléaire. Celle-ci pourrait, entre autres, permettre d'étendre les calculs d'évolution de CINDER'90 à des flux de photons. Nous avons donc choisi d'utiliser la même structure que la bibliothèque de CINDER'90 afin de faciliter son intégration dans le code. La création de la bibliothèque d'activation photonucléaire est présentée dans le chapitre 3.

2.3 Code de calcul de spectres d'émission de neutrons retardés à partir de distributions de produits de fission

En connaissant les caractéristiques des produits de fission – temps de vie, taux d'embranchement et taux de production – il est *a priori* possible de calculer le spectre d'émission de neutrons retardés. C'est ce que fait le code présenté ici.

2.3.1 Présentation du calcul

Le schéma de principe du calcul est donné sur la figure 2.1. Une distribution individuelle de produits de fission est nécessaire en entrée sous la forme $Z A Y_{(Z,A)}$, où $Y_{(Z,A)}$ est le taux de production du noyau (Z,A) .

Dans le cas des résultats fournis par ABLA, tous les isotopes sont produits dans leur état fondamental. Pourtant, lors de la fission, certains sont produits dans un état excité. Certains noyaux dans leur état isomérique sont des précurseurs de neutrons retardés comme, par exemple, le yttrium-98. L'isomère n'appartient pas forcément au même groupe que l'état fondamental et il n'a pas la même probabilité d'émission de neutron. Il est nécessaire de connaître le rapport de production isomérique afin d'en tenir compte lors du calcul de spectres de neutrons retardés.

Les rapports de production isomérique sont contenus dans le fichier *bib_isomere.dat*. Ce rapport varie en fonction du projectile et de son énergie. Dans cette version du calcul, nous avons choisi d'utiliser ceux de la fission induite par neutron rapide sur l'uranium-238 issu de l'étude systématique d'England [Eng94]. *JCD2splprods.x* regarde si chaque produit de fission peut exister à l'état isomérique et distribue la probabilité de production entre l'état fondamental et isomérique selon le rapport de production. Ces distributions sont normalisées à 200% et converties en un fichier *splprods* lisible par CINDER'90. Ce fichier est considéré comme une source de produits de réaction supplémentaire.

On fait évoluer les distributions individuelles à l'aide de CINDER'90 jusqu'aux distributions cumulatives. Elles sont inscrites dans le fichier *results*.

Ensuite *g6.x* extrait les précurseurs parmi les produits de fission, multiplie la probabilité de production par le taux d'embranchement de décroissance par émission de neutrons retardés. La liste des noyaux précurseurs est contenue dans le fichier *prec.txt*. Elle contient, pour chaque précurseur, son temps de demi-vie et le taux d'embranchement pour l'émission de neutrons retardés en pourcent. On obtient ainsi les temps de demi-vie et la contribution de chaque groupe.

2.3.2 Validation de *g6.x*

Nous avons validé ce code par des calculs de spectres d'émission de neutrons retardés dans le cas de la fission induite par neutron. Pour ces tests, les distributions de produits de fission induites par neutron choisies sont extraites de l'étude systématique d'England [Eng94]. Elles contiennent aussi les distributions isomériques donc le fichier *bib_isomere.dat* n'est pas utilisé ici.

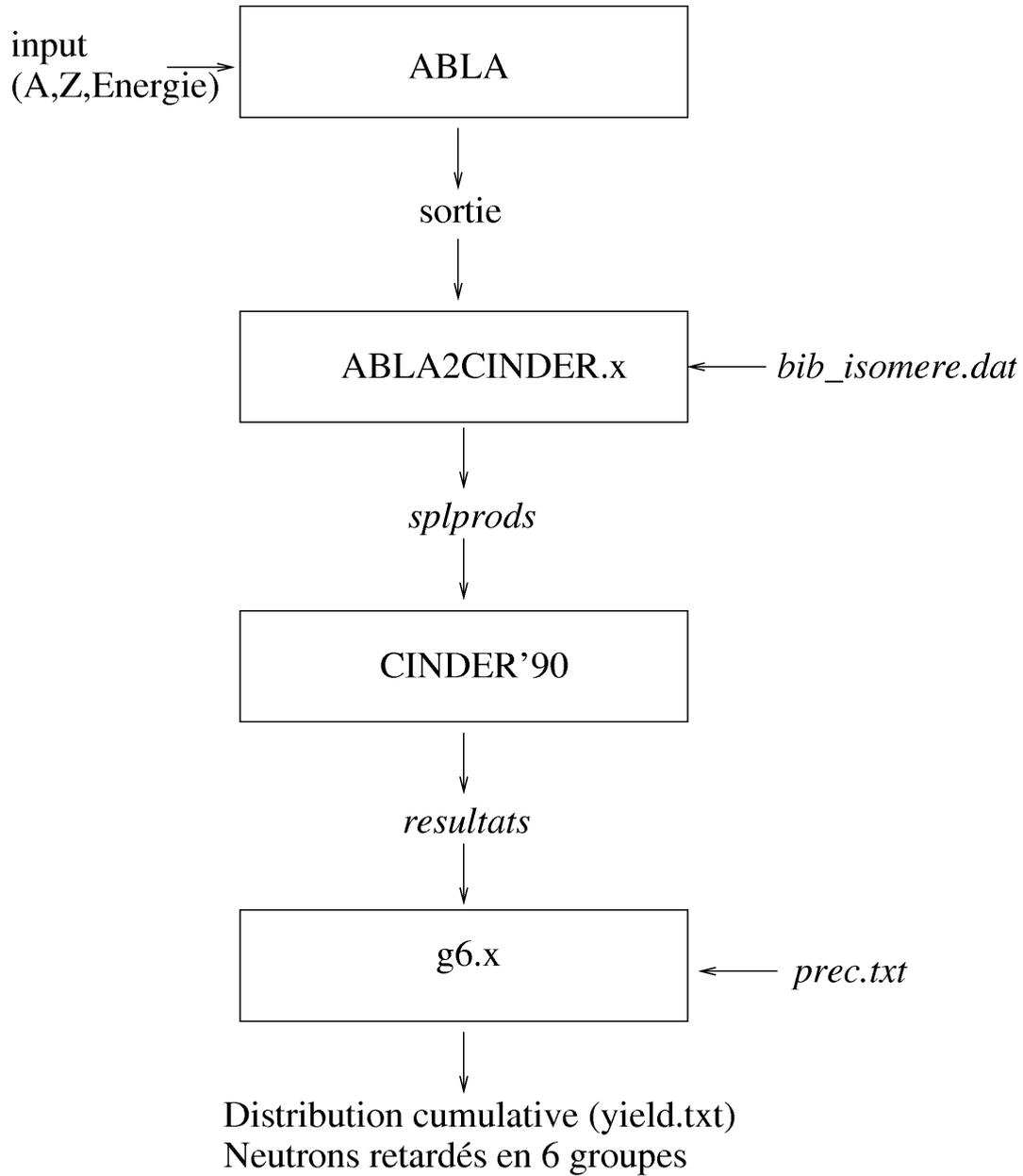


FIG. 2.1 – Principe du calcul des six groupes de neutrons retardés

Plusieurs listes de noyaux précurseurs [Eng94, Tul00, Pfe01] ont été testées. Dans un souci de cohérence, nous avons choisi de garder les listes intégralement. Les données d'England donnent les meilleurs résultats, ce sont donc celles que nous avons retenues pour le calcul de spectre de neutrons retardés. Elles sont présentées en annexe A.

Un exemple de résultat dans la cas de la fission de l'uranium-235 induite par des neutrons thermiques est présentée dans la tableau 2.2. D'autres exemples sont fournis dans l'annexe B.

$n_{th} + {}^{235}\text{U}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	55.72 ± 1.28	55.6	-	0.052 ± 0.005	0.054	+3.8%
2	22.72 ± 0.71	21.48	-5.5%	0.346 ± 0.018	0.343	-0.9%
3	6.22 ± 0.23	5.16	-17.0%	0.310 ± 0.036	0.300	-3.2%
4	2.30 ± 0.09	1.93	-16.1%	0.624 ± 0.026	0.678	+8.7%
5	0.610 ± 0.083	0.478	-21.6%	0.182 ± 0.015	0.177	-2.7%
6	0.230 ± 0.025	0.214	-7.0%	0.066 ± 0.008	0.180	+172%
Total				1.58 ± 0.05	1.73	+9.5%

TAB. 2.2 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur l'uranium-235 (en gras les écarts supérieurs à 20%)

Les écarts supérieurs à 20% et supérieurs aux barres d'erreur expérimentales sont indiqués en gras. Ces écarts ont deux origines possibles : une méconnaissance des caractéristiques des précurseurs (temps de vie, taux d'embranchement) ou une méconnaissance des distributions des produits de fission. La plupart des écarts observés concernent les groupes 5 et 6. Ceci est certainement lié à la méconnaissance des données pour les précurseurs à vie courte.

Le nombre moyen de neutrons retardés émis par fission est reproduit par le code avec une erreur d'environ 10%. Si les temps de vie des différents groupes sont reproduits de manière satisfaisante, les écarts sont plus grands pour la contribution individuelle de chaque groupe. Les erreurs obtenues pour les différents groupes se compensent au niveau du nombre total.

Les résultats obtenus sont néanmoins bons. Ce code va donc nous permettre de tester partiellement les distributions des produits de fission dans le cas de la photofission.

2.4 Synthèse

À l'aide de HMS-ALICE et de GNASH, il est possible de calculer des sections efficaces photonucléaires. C'est le travail que nous présentons à la section 3.1. Il semble toutefois que HMS-ALICE, avec son jeu de paramètres globaux, soit plus intéressant à utiliser lors du calcul de sections efficaces photonucléaires pour un grand nombre de noyaux.

Les distributions de produits de fission peuvent être calculées à l'aide de HMS-ALICE et ABLA. Les résultats obtenus pour ces différents codes sont présentés à la section 3.2.

Aucun des deux codes n'ayant été testé auparavant par rapport à des données expérimentales dans le cadre de la photofission, il est difficile d'en choisir un *a priori*.

Pour nos simulations, nous avons choisi d'utiliser les codes MCNPX et CINDER'90 qui nous paraissent les mieux adaptés pour répondre à nos besoins.

Nous avons également développé une procédure de prédiction des spectres d'émission de neutrons retardés à partir des distributions des produits de fission. Les premiers tests effectués sur des distributions issues de la fission induites par neutron sont encourageants. Ils montrent que des améliorations restent cependant nécessaires sur les données des précurseurs à vie très courte ($T_{1/2} < 1$ s), en particulier pour les valeurs des taux d'embranchement.

Chapitre 3

Création d'une bibliothèque d'activation photonucléaire

Pendant des années, la physique des réactions photonucléaires a été totalement négligée dans l'étude du transport de rayonnements. Les bibliothèques d'évaluation de sections efficaces n'incluaient pas de sections efficaces photonucléaires jusqu'à très récemment. La quantité de neutrons produits par réactions photonucléaires dans le processus de fission, la fusion ou bien la spallation par des protons de haute énergie est en effet considérée comme négligeable. Mais la production de photoparticules ne peut plus être négligée quand on étudie des technologies comprenant des accélérateurs d'électrons et des cibles de Bremsstrahlung. Ces particules sont particulièrement importantes lors d'études de radioprotection, de blindage et de démantèlement.

Les évaluations des sections efficaces photonucléaires se sont développées dans les années 1990 sous l'impulsion de l'IAEA [IAE00]. Cela a permis de les inclure dans les codes de transports [Ver02, Whi03], améliorant ainsi les études de radioprotection et de blindage. Pour les études de démantèlement, une bibliothèque d'activation par réactions photonucléaires est par contre nécessaire. Une telle bibliothèque n'existant pas, nous avons donc décidé d'en créer une.

Nous nous sommes inspirés pour sa structure d'une bibliothèque déjà existante de sections efficaces d'activation et de distribution de produits de fission pour les réactions induites par neutron (voir section 2.2.2 p. 31). Il s'agit de la bibliothèque d'activation utilisée par le code d'évolution CINDER'90 [Wil99]. Elle est divisée en deux parties : une première partie contenant les sections efficaces d'activation et une seconde partie contenant les distributions de produits de fission. La structure a été conservée, seules les valeurs ont été modifiées. Elle contient les mêmes 3400 noyaux dont 736 peuvent être activés. Les sections efficaces sont pondérées par un flux de Bremsstrahlung d'énergie maximale 30 MeV, simulé par MCNPX. Les distributions de produits de fission suite à la fission spontanée sont conservées. Pour tous les noyaux ayant une distribution de produits de fission dans la bibliothèque de CINDER'90, nous avons calculé les distributions de produits de photofission pour trois énergies maximales de Bremsstrahlung différentes (12, 15 et 25 MeV). Des spectres d'émission de neutrons retardés sont également mis à disposition.

3.1 Bibliothèque d'activation : sections efficaces

La première étape de la construction de la bibliothèque d'activation photonucléaire consiste à déterminer tout d'abord quels sont les noyaux pris en compte dans la bibliothèque. Un fois ces noyaux choisis, il est important de savoir s'ils peuvent être activés ou si l'on ne tient compte que de leur décroissance naturelle. Il faut ensuite trouver les valeurs des sections efficaces d'activation pour les noyaux pouvant être activés dans la bibliothèque [Gia04]. Ces valeurs peuvent provenir de deux types de sources : des données ou des calculs.

3.1.1 Différences entre la version photonucléaire et la version neutronique

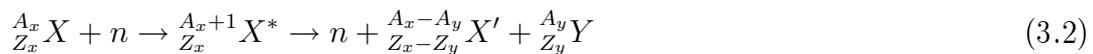
La bibliothèque d'activation photonucléaire doit permettre de calculer l'activation induite par des réactions photonucléaires pour des photons ayant une énergie entre 0 et 25 MeV. Si la bibliothèque est utilisée avec CINDER'90, le domaine en énergie couvert par le code est alors le même, qu'il s'agisse d'un flux de neutrons ou de photons.

Le flux de photons est représenté par 25 groupes couvrant chacun un MeV. Ce pas régulier a été choisi car les sections efficaces photonucléaires ont des variations lentes et ne présentent pas de résonances très marquées – sauf pour les noyaux très légers – contrairement aux réactions induites par neutron.

Par rapport aux réactions induites par neutron aucun produit de réaction supplémentaire n'a été ajouté à la bibliothèque d'activation photonucléaire. Un photon excite un noyau X qui décroît en un noyau X' en émettant une particule Y . Cette réaction est décrite par l'équation suivante :



À partir du même noyau X on peut obtenir le même noyau X' grâce à la réaction induite par neutron décrite ici :



Les réactions (γ, n) et $(n, 2n)$, (γ, p) et (n, d) , ..., aboutissent au même produit d'activation. Ceux-ci sont conservés lors du passage de la bibliothèque d'activation en neutron à celle d'activation photonucléaire.

3.1.2 Provenance des sections efficaces photonucléaires

Pour les sections efficaces, trois sources différentes de données ont été utilisées. Elles sont décrites en détail dans la suite de ce chapitre. Les évaluations de données de l'IAEA [IAE00] constituent la base de la bibliothèque. Ces évaluations sont en accord avec les données expérimentales et on peut donc les considérer comme fiables. Elles sont disponibles pour 164 noyaux.

Pour combler les lacunes dans la bibliothèque, soit 572 noyaux, deux codes de calcul de sections efficaces ont été utilisés. HMS-ALICE [Bla96], développé à Los Alamos, a fourni la majorité des données. Pour certains noyaux, les résultats ont été améliorés en utilisant GNASH [You96]. Ces codes ont été décrits à la section 2.1 (p. 27).

Des actinides déjà présents dans la bibliothèque de l'IAEA (uranium-235, uranium-238, plutonium-239) ont été réévalués à l'aide de GNASH. Ces évaluations n'ont pas été incluses dans la bibliothèque mais elles ont permis de valider la démarche. Nous avons ainsi pu évaluer pour la première fois d'autres actinides – neptunium-237, plutonium-240, américium-241 – et obtenir des résultats plus précis que ceux de HMS-ALICE.

3.1.3 Évaluations de l'IAEA [IAE00]

En 1996, constatant le manque de données évaluées pour les réactions photonucléaires, l'IAEA a décidé d'initier un projet de compilation et d'évaluation de données photonucléaires [Obl02]. Son objectif était de préparer un guide sur les données photonucléaires et de créer une bibliothèque internationale de données photonucléaires évaluées. Avec cette bibliothèque, les codes de transport peuvent tenir compte des réactions photonucléaires aussi précisément que pour les réactions induites par neutron.

Dans notre cas, il est nécessaire de transformer ces évaluations de sections efficaces de réactions en sections efficaces d'activation sous la forme de 25 groupes. Comme elles ont un pas inférieur à celui de la bibliothèque d'activation, elles sont pondérées par un flux de Bremsstrahlung d'énergie maximale 30 MeV avant d'être incluses dans la bibliothèque d'activation photonucléaire. Le flux de Bremsstrahlung est obtenu par simulation MCNPX.

Dans le cadre de ce projet, 164 isotopes allant du deutérium au plutonium-241 ont été évalués, pour la plupart jusqu'à 150 MeV. Les évaluations étant de bonne qualité, tous ces isotopes ont été directement inclus dans la bibliothèque d'activation photonucléaire. Les éléments présents dans la bibliothèque de l'IAEA sont les éléments les plus utilisés lors de calculs de transport. Ils peuvent être classés en quatre catégories :

- les matériaux de structure, de blindage et les cibles de Bremsstrahlung (Be, Al, Si, Ti, V, Cr, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Zr, Mo, Sn, Ta, W, Au, Pb)
- les matériaux biologiques (C, N, O, Na, S, P, Cl, Ca)
- les matériaux fissiles (Th, U, Pu)
- les autres matériaux (H, Mg, Ar, Mn, K, Ge, Sr, Nb, Pd, Ag, Cd, Sb, Te, I, Pr, Cs, Sm, Tb, Ho, Bi)

Les évaluations des sections efficaces photonucléaires pour les actinides ne sont disponibles que jusqu'à 20 MeV. Dans le cadre de la bibliothèque d'activation, on a considéré qu'au-delà de 20 MeV la section efficace est constante. Pour les actinides, après 20 MeV, on se situe en effet dans la zone du quasi-deuton et on a vu sur la figure 1.3 (p. 13) que la section efficace d'absorption est faible et constante.

3.1.4 Comparaison des calculs de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA

Avant d'utiliser HMS-ALICE pour compléter la bibliothèque, il est nécessaire de tester ses résultats dans le cas des réactions photonucléaires. La seule étude publiée [Bla83] porte sur des énergies au-delà de 25 MeV. Pour la plupart des noyaux manquants, il existe très peu de données expérimentales. Il n'est donc pas possible de tester directement HMS-ALICE sur les noyaux qui nous intéressent. Nous faisons donc une comparaison entre les résultats de HMS-ALICE et les évaluations de l'IAEA pour différents types de noyaux : les noyaux légers, les noyaux lourds, les noyaux déformés et/ou les noyaux fissiles.

Les paramètres utilisés lors du calcul de sections efficaces, tels que la densité d'état, ont été ajustés globalement par Marshall Blann (l'auteur du code). Il est possible de les modifier individuellement afin d'améliorer les résultats. Les résultats présentés ici sont ceux obtenus avec les paramètres par défaut à cause du grand nombre d'isotopes à calculer, de l'ordre de 600.

Noyaux légers ($Z < 20$)

Les figures 3.1 et 3.2 présentent la comparaison entre les résultats de HMS-ALICE et les évaluations de l'IAEA pour l'émission d'un photoneutron et d'un photoproton dans le cas du carbone-12 et de l'aluminium-27. Ce sont des noyaux difficiles à modéliser car les sections efficaces sont faibles et de nombreuses réactions sont possibles ; en particulier l'émission de particules chargées à cause de la faible barrière coulombienne.

Pour le carbone-12, on a un facteur 2 ou 3 entre les prédictions et les évaluations de l'IAEA. Les résultats sont meilleurs pour l'aluminium : la production de photoproton est bien reproduite, alors que l'on a un facteur 2 d'écart sur l'émission de photoneutrons.

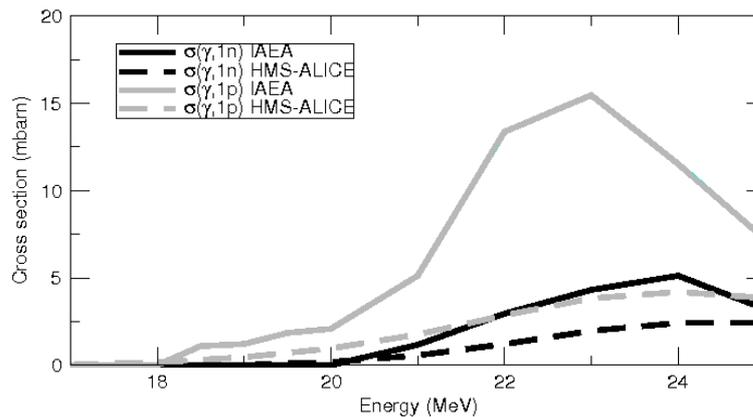


FIG. 3.1 – Comparaison des résultats de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA pour le calcul de sections efficaces du carbone-12

HMS-ALICE suppose un retour à l'équilibre par une décroissance successive à deux corps. Or, pour les noyaux légers, cette décroissance peut avoir lieu avec trois ou quatre corps. L'utilisation du *Fermi breakup* [Fer50] pourrait améliorer le pouvoir prédictif de

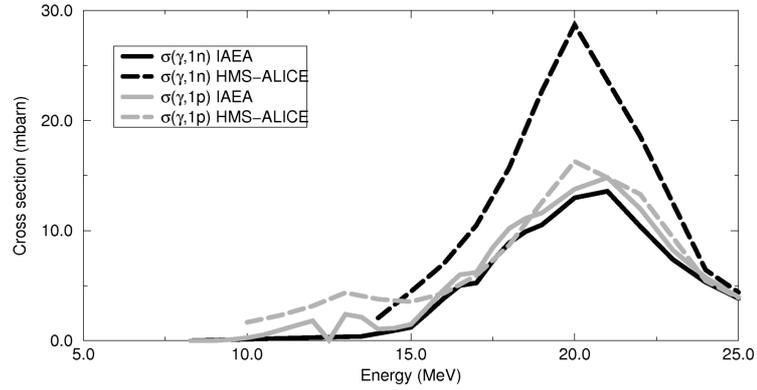


FIG. 3.2 – Comparaison des résultats de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA pour le calcul de sections efficaces de l'aluminium-27

HMS-ALICE pour les noyaux légers. Ce modèle statistique est en cours d'insertion dans le code [Bla05].

Les noyaux légers ont des sections efficaces d'activation faible, de l'ordre de la dizaine de millibarns, ils ont donc peu d'influence dans le calcul d'activation. Les écarts observés ont donc peu d'importance.

Noyaux lourds

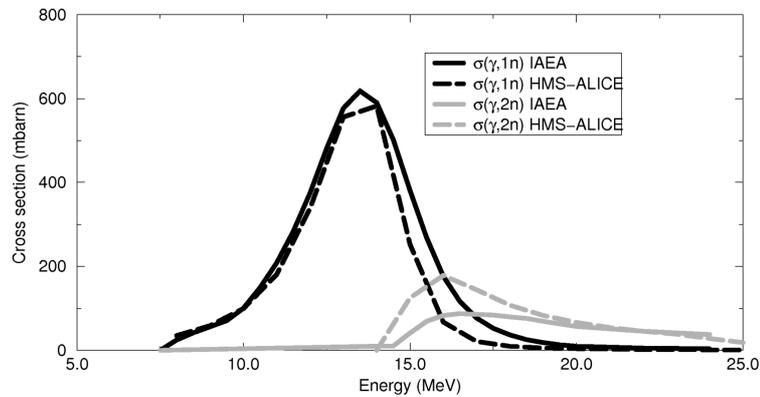


FIG. 3.3 – Comparaison des résultats de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA pour le calcul de sections efficaces du plomb-208

Les noyaux plus lourds sont plus faciles à modéliser : le nombre de réactions possibles est limité à cause de l'importance de la barrière coulombienne. On peut voir sur la figure 3.3 que l'émission d'un seul photoneutron est bien reproduite jusqu'à 15 MeV pour le plomb. Au-delà elle est sous-estimée alors que l'émission simultanée de deux photoneutrons est surestimée. La production de photoproton est négligeable à cause de l'influence de la barrière coulombienne.

Pour les noyaux lourds, la section efficace d'émission d'un photoneutron est en général bien reproduite. L'émission de deux photoneutrons est par contre surestimée dans le cas des noyaux pairs et sous-estimée dans le cas des noyaux impairs. Ceci est peut-être dû à une mauvaise modélisation de l'énergie de liaison de l'avant-dernier neutron. Les résultats sont toutefois satisfaisants et l'on peut en conclure que HMS-ALICE est bien adapté au calcul de sections efficaces photonucléaires pour les noyaux de masse intermédiaire ($Z > 20$) et les noyaux lourds sphériques.

Noyaux déformés

Dans la version de HMS-ALICE utilisée au début de ce travail, la section efficace de photoabsorption des noyaux déformés était mal modélisée. Ceci a induit des erreurs sur les sections efficaces d'émission de particules. Pour le tantale-181 présenté sur la figure 3.4 par exemple, la section efficace d'émission d'un photoneutron a une forme différente de celle mesurée par Berman [Ber68] et évaluée par l'IAEA. Elle ne présente qu'un seul maximum au lieu de deux. Cette différence est liée à une mauvaise modélisation de la section efficace de photoabsorption. Dans cette version du code, cette dernière est en effet modélisée par une seule lorentzienne. Or nous avons vu à la section 1.2.1 (p. 12) que pour les noyaux déformés elle doit être représentée par deux lorentziennes.

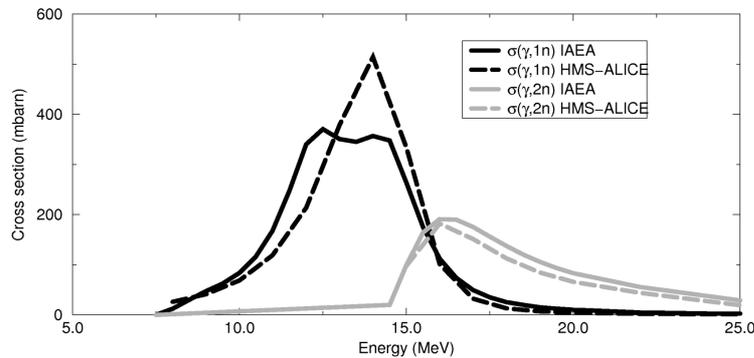


FIG. 3.4 – Sections efficaces de production de photoneutrons pour le tantale-181 calculées par HMS-ALICE (modélisation avec une seule lorentzienne) comparées aux évaluations de l'IAEA

Afin d'améliorer les résultats de HMS-ALICE la section efficace de photoabsorption a été modifiée afin de tenir compte de la déformation des noyaux.

Modification de la section efficace de photoabsorption dans HMS-ALICE

Rappelons tout d'abord l'équation (1.6) décrivant la photoabsorption dans la zone de GDR.

$$\sigma_{GDR}(E_\gamma) = \sum_{i=1}^n \frac{\sigma_i E_\gamma^2 \Gamma_i^2}{[E_\gamma^2 - E_i^2]^2 + E_\gamma^2 \Gamma_i^2}$$

n	vaut 1 si le noyau n'est pas déformé, 2 sinon
E_i	énergie correspondant au pic de la i -ème lorentzienne
Γ_i	largeur de la i -ème lorentzienne
σ_i	hauteur de la i -ème lorentzienne

La bibliothèque de données RIPL-2 [Bel03] fournit les valeurs de E_i et Γ_i pour près de 6000 noyaux ayant une charge comprise entre 14 et 110. Ces prédictions utilisent le modèle de Goldhaber-Teller [Gol48] en tenant compte de la déformation des noyaux.

Pour les noyaux sphériques les valeurs de E et de Γ sont calculés par les formules suivantes :

$$E \equiv E_0 = 31.2 A^{-1/3} + 20.6 A^{-1/6} \text{ (MeV)}$$

$$\Gamma = 0.026 E^{1.91} \text{ (MeV)}$$

Dans le cas des noyaux déformés, les formules utilisées sont les suivantes [Bel04] :

$$E_1 = \frac{E_2}{0.911 \frac{a}{b} + 0.089} \text{ (MeV)} \quad E_2 = E_0 \frac{1}{b} \left[1 - 1.51 \cdot 10^{-2} (a^2 + b^2) \right] \text{ (MeV)}$$

$$\Gamma_1 = 0.026 E_1^{1.91} \text{ (MeV)} \quad \Gamma_2 = 0.026 E_2^{1.91} \text{ (MeV)}$$

où a et b sont les longueurs relatives des demi-axes du sphéroïde qui peuvent être représentés par les formules suivantes :

$$a = \frac{1 + \alpha_2}{1 + \frac{3}{5} \alpha_2^2 + \frac{2}{35} \alpha_2^3}$$

$$b = \frac{1 - 0.5 \alpha_2}{1 + \frac{3}{5} \alpha_2^2 + \frac{2}{35} \alpha_2^3}$$

où α_2 est la déformation quadripolaire du noyau. Le calcul de α_2 est décrit en détail dans l'article proposant ces formules [Bel04].

Il reste cependant à déterminer les valeurs de σ_i . On utilise alors la règle de somme dipolaire modifiée par Fuller [Ful76] présentée à l'équation (1.5) et rappelée ici.

$$\int_0^\infty \sigma_{GDR}(E) d(E) = 72 \frac{NZ}{A} \text{ (MeV.mb)}$$

Si on calcule littéralement l'intégrale on obtient le résultat (3.3).

$$\int_0^\infty \sigma_{GDR}(E)dE = \frac{\pi}{2} \sum_{i=1}^2 \sigma_i \Gamma_i \quad (3.3)$$

Pour les noyaux prolates, donc les actinides, la théorie [Dan58] prédit la relation (3.4). Elle a été confirmée par les mesures de Gurevich [Gur76].

$$\sigma_1 \Gamma_1 = \frac{\sigma_2 \Gamma_2}{2} \quad (3.4)$$

À partir des équations (1.5), (3.3) et (3.4) on obtient :

$$\sigma_1 = 72 \frac{NZ}{A} \frac{2}{\pi} \frac{1}{3\Gamma_1} \quad (3.5)$$

et

$$\sigma_2 = 2 \frac{\sigma_1 \Gamma_1}{\Gamma_2} \quad (3.6)$$

Tous les paramètres nécessaires au calcul de la section efficace de photoabsorption sont ainsi déterminés à partir de la masse du noyau, de sa charge et de sa déformation.

Résultats

Dans son atlas de données photonucléaires, Dietrich [Die88] a ajusté les paramètres des lorentziennes décrivant la section efficace de photoabsorption sur les données expérimentales. En comparant les prédictions de RIPL-2 et les résultats de Dietrich, on trouve un bon accord entre les deux sauf en ce qui concerne la valeur de E_1 . Cette dernière est systématiquement inférieure aux données expérimentales (voir tableau 3.1). La moyenne de cet écart est de 0.17 MeV. Il a donc été décidé d'augmenter la valeur de E_1 de 0.17 MeV afin de mieux reproduire les données expérimentales.

Grâce à l'aide de Marshall Blann, auteur de HMS-ALICE, les résultats obtenus ici pour le calcul de la photoabsorption ont pu être implémentés dans le code. Nous avons ainsi amélioré son pouvoir prédictif comme on peut le voir par la suite. Même si la probabilité associée à chaque voie de réaction est correcte, le fait de ne pas avoir une bonne normalisation avec la section efficace d'absorption empêche de reproduire les résultats expérimentaux.

La figure 3.5 présente la section efficace de photoabsorption du tantale-181 évaluée par l'IAEA comparée aux résultats obtenus par HMS-ALICE avant et après modification. On peut constater la très nette amélioration du calcul de la section efficace de photoabsorption. Une comparaison des calculs de la photoabsorption en utilisant les valeurs de RIPL-2 aux données expérimentales et aux évaluations de l'IAEA est présentée dans l'annexe C pour d'autres noyaux.

Isotope	RIPL-2	[Ber86, Cal80]	[Bra63, Vey73]
^{181}Ta	12.30	-	12.54
^{232}Th	10.92	11.03	11.26
^{233}U	10.8	11.08	-
^{234}U	10.78	11.13	-
^{235}U	10.84	10.90	-
^{236}U	10.83	10.92	-
^{238}U	10.90	10.77	10.94
^{237}Np	10.82	10.98	11.02
^{239}Pu	10.72	11.28	-

TAB. 3.1 – Comparaison des valeurs de E_1 pour différents noyaux (données expérimentales et RIPL-2)

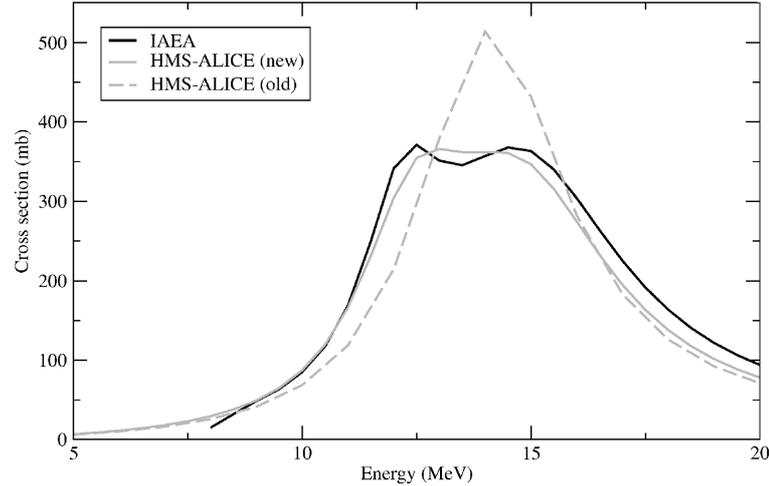


FIG. 3.5 – Comparaison de sections efficaces de photoabsorption pour le tantale-181 (évaluation de l'IAEA, calcul HMS-ALICE avec une et deux lorentziennes)

Les sections efficaces photonucléaires prédites par HMS-ALICE, dans le cas du tantale-181 avec la nouvelle section efficace de photoabsorption, sont représentées sur la figure 3.6. On peut voir que les résultats pour les sections efficaces photonucléaires de HMS-ALICE sont grandement améliorés par l'utilisation de la nouvelle paramétrisation de la photoabsorption. Ceci montre l'importance de la section efficace de photoabsorption dans le calcul de sections efficaces. On voit que l'on obtient un bon accord entre les calculs de HMS-ALICE et les évaluations de l'IAEA.

Avec la nouvelle modélisation de la section efficace de photoabsorption, on améliore le calcul de sections efficaces de réactions pour les noyaux déformés. On peut désormais étendre les calculs aux actinides qui sont un cas particulier de noyaux déformés.

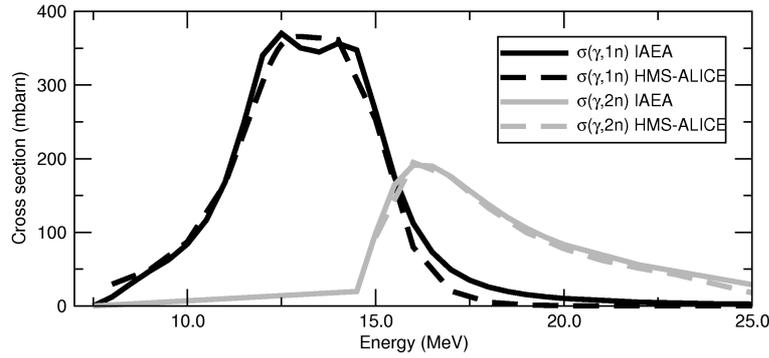


FIG. 3.6 – Sections efficaces de production de photoneutrons pour le tantale-181 calculées par HMS-ALICE après modification de la section efficace de photoabsorption et comparées aux évaluations de l'IAEA

Noyaux fissiles

Les prédictions de HMS-ALICE avant la modification de la photoabsorption (en traits pointillés) et après (en traits pleins) sont présentées sur la figure 3.7. Elles sont comparées aux évaluations de l'IAEA (en traits épais). Comme pour les noyaux déformés non fissiles, on constate une très nette amélioration des résultats, en particulier pour la section efficace de photofission.

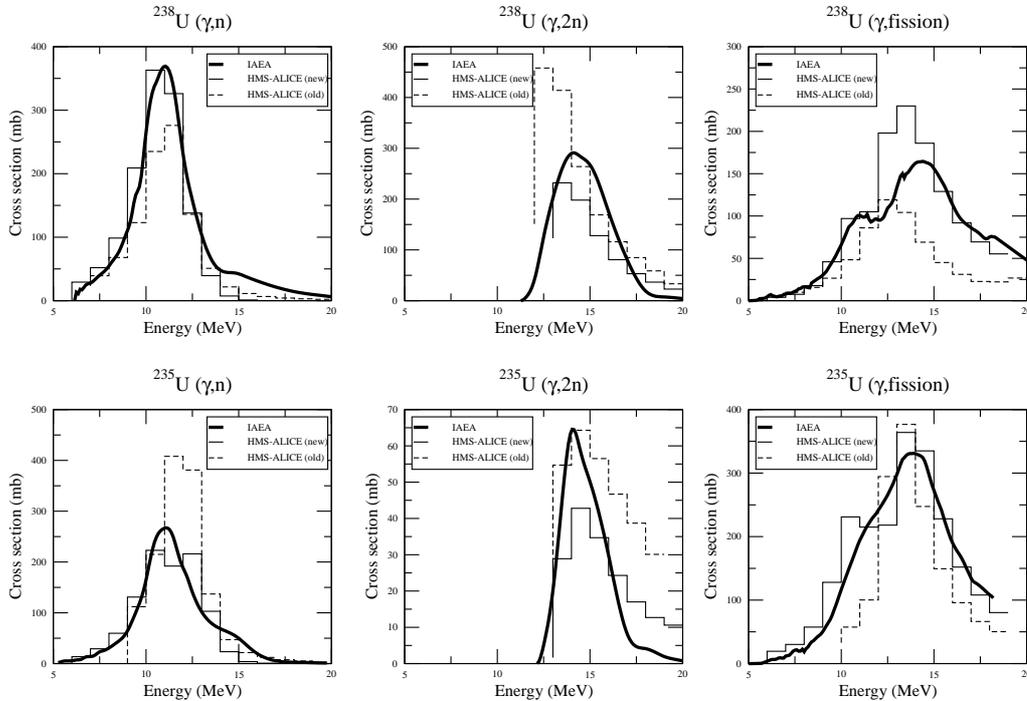


FIG. 3.7 – Comparaison des deux versions de HMS-ALICE aux évaluations de l'IAEA pour l'uranium-235 et l'uranium-238

HMS-ALICE reproduit plus difficilement l'émission de deux photoneutrons. Cet écart se retrouve dans la section efficace de photofission. Il est plus important pour l'uranium-238 que l'uranium-235, la section efficace $(\gamma,2n)$ étant beaucoup plus importante pour un noyau pair. Comme on l'a dit précédemment, ceci est peut-être dû à une mauvaise modélisation de l'énergie de liaison de l'avant-dernier neutron. Toutefois les résultats obtenus sont satisfaisants.

Conclusion

Les performances de HMS-ALICE sont suffisantes pour compléter la bibliothèque même si les résultats pour les noyaux légers pourraient être améliorés. Leur contribution à l'activation est généralement faible. Toutefois, il est important de noter qu'une précision d'un facteur 2-3 est suffisante dans la plupart des études d'activation. Afin de générer cette bibliothèque, les évaluations de l'IAEA ont été utilisées pour les sections efficaces de 164 noyaux alors que pour les 572 noyaux restants les calculs de HMS-ALICE ont été utilisés. Les évaluations de l'IAEA ont été effectuées pour les noyaux les plus couramment utilisés.

Au moment où ces résultats ont été obtenus, seul HMS-ALICE permettait de tels calculs sans l'ajustement d'aucun paramètre. Désormais ABLA [Ben98, Jun98], TALYS [Kon04] et CEM2k [Mas00] permettent également ce type de calculs. Si une nouvelle version de la bibliothèque est développée, il sera intéressant de comparer les résultats de ces différents codes et de choisir le plus performant.

3.1.5 Utilisation de GNASH pour l'évaluation de sections efficaces photonucléaires pour les actinides

Comme on l'a vu, HMS-ALICE donne des résultats suffisamment précis pour fournir les sections efficaces d'activation des noyaux de la bibliothèque. Toutefois, il nous a semblé intéressant d'évaluer avec plus de précision certains actinides : l'uranium-235, l'uranium-238, le neptunium-237, le plutonium-239, le plutonium-240 et l'américium-241. Après avoir testé la possibilité d'effectuer ses évaluations avec GNASH sur les trois premiers noyaux cités, nous avons décidé d'évaluer les autres noyaux pour lesquels aucune évaluation n'existait. La réévaluation des sections efficaces photonucléaires de l'uranium-235, de l'uranium-238 et du plutonium-239 a permis de valider l'utilisation de GNASH pour le calcul de la section efficace de photofission. Après ces premiers résultats nous avons évalué pour la première fois le neptunium-237, le plutonium-240 et l'américium-241.

Dans la suite de cette section, nous présentons l'intérêt de telles évaluations ainsi que la méthode employée et les résultats obtenus pour l'évaluation des six noyaux déjà cités.

Intérêt et procédure de l'évaluation de données

On pourrait se demander quel est l'intérêt d'évaluer des sections efficaces alors que des données expérimentales existent. Il faut savoir que pour les codes de transport, il est important d'avoir un ensemble homogène de données sur les sections efficaces mais aussi sur les spectres d'émission et les distributions angulaires des particules secondaires. Dans

le cas particulier des réactions photonucléaires, les spectres en énergie et les distributions angulaires n'ont jamais été mesurés avec un faisceau monoénergétique.

L'évaluation se base sur un modèle théorique qui est ajusté sur des données expérimentales. Les résultats sont, en général, validés sur les sections efficaces d'émission de particules. Dans le cas des réactions photonucléaires pour les actinides, les sections efficaces utilisées pour la validation sont (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et $(\gamma, \text{fission})$.

Plus on dispose de données expérimentales et plus l'évaluation est proche de ces données, plus la confiance que l'on peut avoir dans les spectres d'émission est grande.

La méthode générale lors de l'évaluation de données est la suivante :

- collecte et critique de toutes les données expérimentales
- évaluation de la section efficace d'absorption à partir de données purement expérimentales et de modèles
- calcul des sections efficaces exclusives d'émission de neutrons, de protons, etc, et comparaison avec les données expérimentales et les mesures intégrales
- ajustement des paramètres dans leur domaine de validité pour optimiser l'accord avec les expériences

Une fois obtenue une représentation satisfaisante des données expérimentales, on utilise le modèle pour prédire les sections efficaces et les spectres d'émission pour lesquels il n'existe aucune donnée. Il est recommandé de convertir les résultats au format ENDF [Cro01] pour qu'ils soient directement utilisables par les codes de transport.

Les points les plus délicats de l'évaluation sont la bonne connaissance des domaines de validité des paramètres que l'on ajuste et la critique des données expérimentales. Faire cette critique est difficile, en particulier lorsque les données sont anciennes et que peu de détails sont fournis sur les conditions expérimentales et/ou la méthode d'analyse.

Méthode d'évaluation spécifique à GNASH dans le cadre des réactions photonucléaires

GNASH a été utilisé pour le calcul de sections efficaces photonucléaires de noyaux non fissiles dans le cadre du projet de l'IAEA. GNASH n'a par contre jamais été utilisé pour le calcul de sections efficaces de réactions photonucléaires pour les actinides. En collaboration avec le groupe T-16 du *Los Alamos National Laboratory*, nous avons évalué les sections efficaces de réactions photonucléaires de l'uranium-235, de l'uranium-238, du neptunium-237, du plutonium-239, du plutonium-240 et de l'américium-241 [Gia05a, Gia05b].

Il a été nécessaire de modifier GNASH afin de pouvoir calculer les sections efficaces photonucléaires. La modification a été testée lors de l'évaluation des sections efficaces photonucléaires de treize noyaux allant du deuton au plomb-208 [Cha03b]. Les mêmes fichiers d'entrée que pour le calcul de réactions induites par neutron pour le même noyau ont été utilisés comme point de départ mais la voie de photoabsorption du neutron a été supprimée. Nous aurions pu également utiliser les fichiers d'entrée conduisant au même noyau composé. Comme nous avons deux choix possibles, nous avons préféré utiliser les fichiers les plus détaillés.

La section efficace de photoabsorption utilisée est modélisée par la somme de deux lorentziennes. Les paramètres de cette courbe sont, soit les paramètres donnés par régression sur les données expérimentales, soit les valeurs RIPL-2. Ces dernières sont utilisées

dans le cas où les paramètres expérimentaux ne concordent pas ou bien si aucune donnée n'existe.

Un calcul préliminaire est mené sans modifier les entrées. On utilise donc les mêmes paramètres que pour les réactions induites par neutron. À partir de ce résultat, les paramètres de la barrière de fission et l'importance relative de chaque réaction sont ajustés afin d'améliorer l'accord entre l'évaluation et les données expérimentales.

Présentation des données expérimentales

Les données expérimentales sont rares, en particulier celles mesurées avec un faisceau de photons monoénergétiques. La section efficace de photofission n'a presque jamais été détectée directement mais plutôt déduite de la multiplicité de neutrons. Tous les événements ayant une multiplicité supérieure à 3 sont considérés comme des fissions si l'énergie maximale des photons est inférieure au seuil de la réaction ($\gamma,3n$). On peut ensuite séparer l'émission d'un ou de deux neutrons suite à une fission des réactions (γ,n), ($\gamma,2n$).

Les principales données utilisées sont [Ber86, Var99, Vey73]. Berman et Veyssière ont mesuré les sections efficaces photonucléaires par annihilation de positrons à Livermore et à Saclay. Varlamov a ré-analysé ces données en étudiant précisément le système de détection [Var04]. Quelques mesures [Kor79, Sol94, Sol00] ont été effectuées en Russie avec un faisceau de Bremsstrahlung. Elles nécessitent donc une déconvolution.

Des mesures intégrales de taux de fission permettent de compléter l'évaluation, en particulier quand les données sont en désaccord ou trop peu nombreuses. La plupart de ces mesures sont des mesures relatives : le taux de fission d'un élément X est mesuré relativement à celui de l'uranium-238 (évaluation de l'IAEA [IAE00]). Ce taux (R) peut également être calculé grâce à la formule suivante :

$$R = \frac{\int_0^{E_{max}} \sigma_{f_X}(E)\phi(E)dE}{\int_0^{E_{max}} \sigma_{f_{238U}}(E)\phi(E)dE} \quad (3.7)$$

où ϕ est le spectre en énergie des photons arrivant sur la cible.

Évaluation de l'uranium-235

Le but de cette réévaluation est de montrer qu'en utilisant GNASH il est possible de retrouver l'évaluation de l'IAEA. Nous validons ainsi notre démarche puisque GNASH n'a jamais été utilisé pour évaluer les sections efficaces photonucléaires d'actinides.

Choix de l'absorption

Il existe deux jeux de données expérimentales pour la photoabsorption [Gur76, Cal80]. Ils sont présentés sur la figure 3.8. Les données de Gurevich [Gur76] sont des mesures directes alors que la photoabsorption donnée par Caldwell [Cal80] est égale à la somme des sections efficaces (γ,n), ($\gamma,2n$) et ($\gamma,fission$). Cette méthode est valable si le noyau est suffisamment chargé pour que la barrière coulombienne supprime l'émission de particules chargées, ce qui est le cas ici (voir section 1.2.1 (p.12)). Les données de Caldwell ont été mesurées avec un faisceau monoénergétique alors que Gurevich utilise un spectre de Bremsstrahlung. Elles sont en désaccord autour de 14 MeV. Ce désaccord semble lié à la

méthode d'analyse des résultats de Gurevich qui déconvolue ses résultats du spectre de Bremsstrahlung mais également de la réponse de son détecteur en fonction de l'énergie des photons incidents.

Nous avons donc choisi d'utiliser la photoabsorption évaluée par l'IAEA et non les données expérimentales.

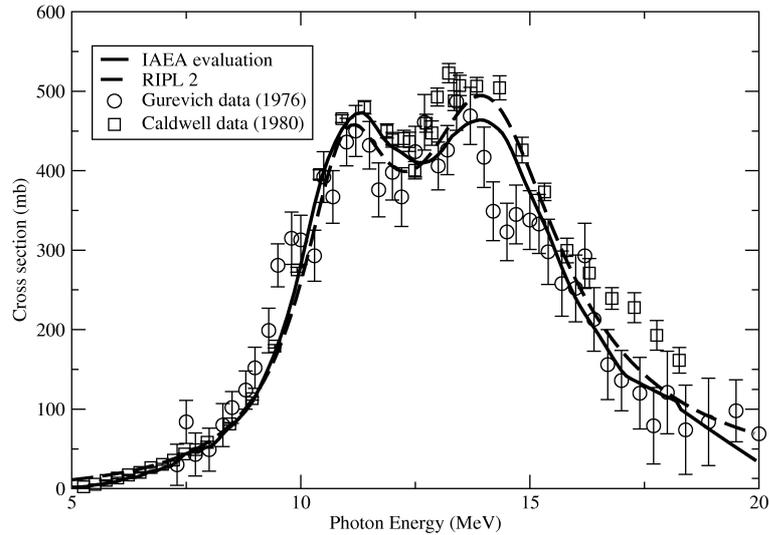


FIG. 3.8 – Sections efficaces de photoabsorption pour l'uranium-235

Critique des données expérimentales

Il n'existe qu'un seul ensemble de mesures de sections efficaces photonucléaires pour l'uranium-235 [Cal80] dans le cas des réactions (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et $(\gamma, \text{fission})$. Ces mesures ont été effectuées à l'aide de la multiplicité de neutrons. Les données de la photofission ont été réévaluées par Varlamov et il en a déduit que les données expérimentales étaient surestimées.

Pour la photofission, à l'instar de l'IAEA, les évaluations sont comparées aux valeurs fournies par de Varlamov [Var99]. Pour l'émission de photoneutrons, on cherche à reproduire les données de Caldwell.

Résultats

Les résultats obtenus après ajustement des paramètres sont présentés sur la figure 3.9. On peut constater que les sections efficaces expérimentales sont bien reproduites par le calcul jusqu'à 15 MeV. Au-delà, notre évaluation sous-estime les données, mais le même désaccord existe dans les évaluations de l'IAEA (non présenté ici). Ceci est lié au fait que l'on doit mal reproduire la section efficace de photoabsorption pour les énergies élevées, en particulier parce que l'absorption sur le quasi-deuton est négligée.

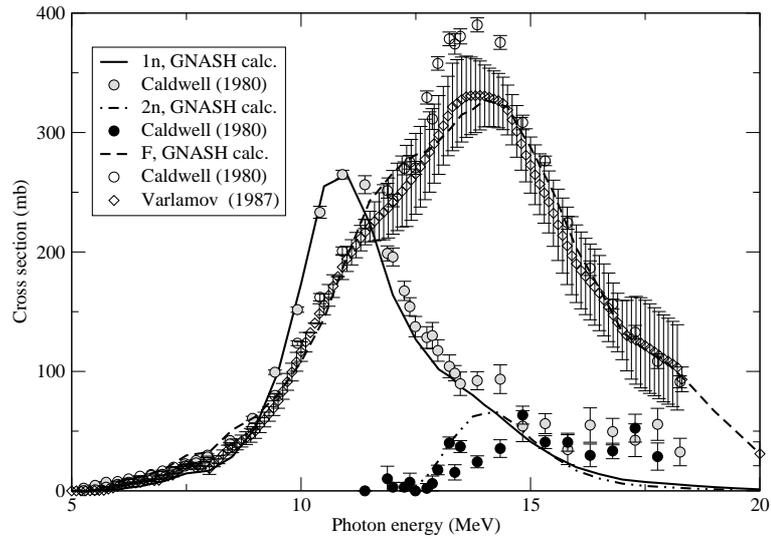


FIG. 3.9 – Résultat de l'évaluation GNASH pour l'uranium-235 comparé aux données expérimentales

Évaluation de l'uranium-238

Choix de l'absorption

Gurevich [Gur76] et Caldwell [Cal80] ont mesuré la section efficace de photoabsorption de l'uranium-238 en utilisant les méthodes présentées pour l'uranium-235. Veysière [Vey73] fournit une autre mesure de section efficace de photoabsorption par multiplicité de neutrons.

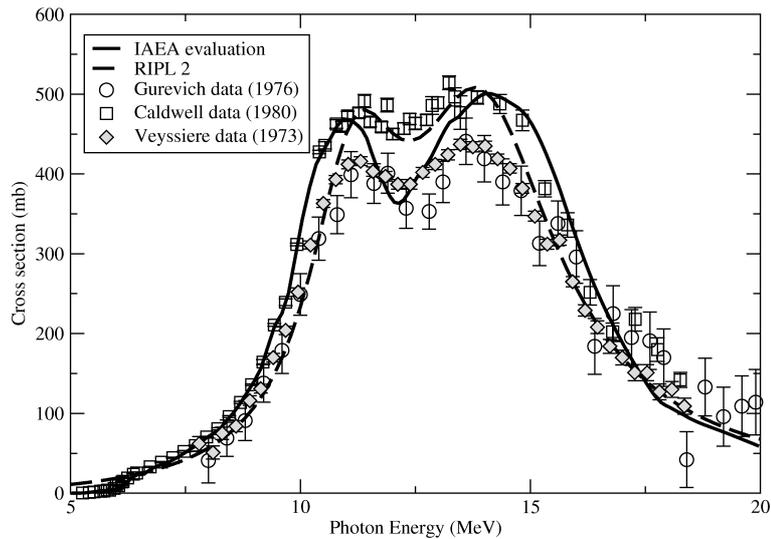


FIG. 3.10 – Sections efficaces de photoabsorption pour l'uranium-238

Comme on peut le voir les données sont en désaccord ; nous avons donc préféré utiliser la section efficace de photoabsorption obtenue avec les paramètres RIPL-2. À l'instar de l'évaluation de l'IAEA, celle-ci est plus proche des données de Caldwell.

Critique des données expérimentales

Comme pour l'uranium-235, Varlamov a ré-analysé la section efficace de photofission de l'uranium-238 à partir des données de Caldwell [Cal80] et Veysière [Vey73]. Pour la photofission, les trois jeux de données concordent comme on peut le voir sur la figure 3.11.

Ce n'est pas le cas pour la production de neutrons. Comme la section efficace de photoabsorption est plus proche des données expérimentales de Caldwell, il nous a semblé judicieux de reproduire ses sections efficaces expérimentales de production de photoneutrons. Ses mesures ont également été choisies comme base de travail pour l'évaluation de l'IAEA.

Résultats

L'évaluation des sections efficaces (γ,n) , $(\gamma,2n)$ et $(\gamma,fission)$ obtenues avec GNASH est présentée sur la figure 3.11. Un très bon accord est obtenu entre notre évaluation et les données de Varlamov en ce qui concerne la photofission. Pour la production de photoneutrons, tout comme l'évaluation de l'IAEA, les données de Caldwell sont bien reproduites.

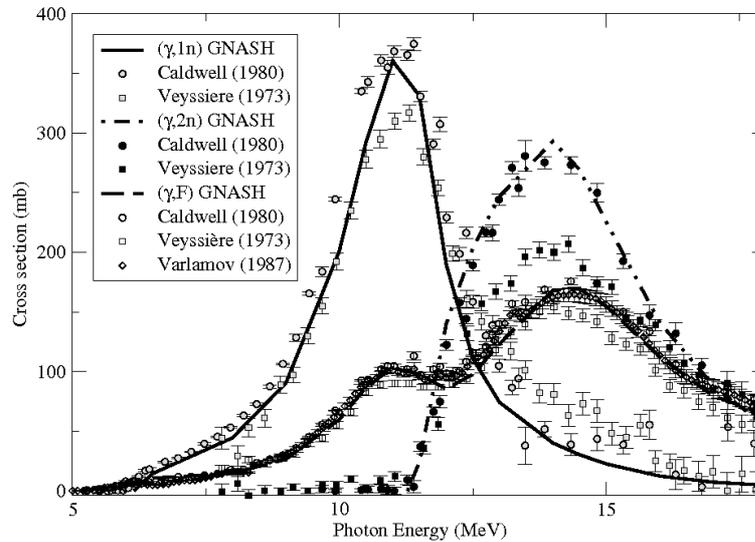


FIG. 3.11 – Résultat de l'évaluation GNASH pour l'uranium-238 comparé aux données expérimentales

Entre 12 et 16 MeV, notre évaluation sous-estime les données de Caldwell et de Veysière pour la production d'un photoneutron. La section efficace (γ,n) est liée aux sections efficaces $(\gamma,2n)$ et $(\gamma,fission)$ car leur somme est égale à la section efficace de photoabsorption. Cette dernière est fixée dès le début du calcul. Il est donc possible que notre évaluation de la section efficace de la réaction $(\gamma,2n)$ soit surestimée bien que nous ayons

choisi de reproduire les données de Caldwell. Seule une nouvelle mesure peut permettre de trancher entre les deux mesures de section efficace de production de deux neutrons.

Le choix de la section efficace de photoabsorption a influencé le choix des données expérimentales. Si elle avait été plus faible, les données de Veyssière auraient vraisemblablement été choisies comme base de travail.

Évaluation du plutonium-239

Choix de l'absorption

Comme pour l'uranium-235 il existe deux jeux de données [Gur76, Ber86] qui sont présentés sur la figure 3.12. Les mesures ont été effectuées dans les mêmes conditions expérimentales que lors des mesures sur l'uranium-235. Berman a suivi la même démarche que Caldwell. Les données sont en désaccord autour de 11 MeV comme on peut le voir sur la figure 3.12. Comme lors de la mesure pour l'uranium-235, on peut penser que la différence est due à la méthode d'analyse de Gurevich.

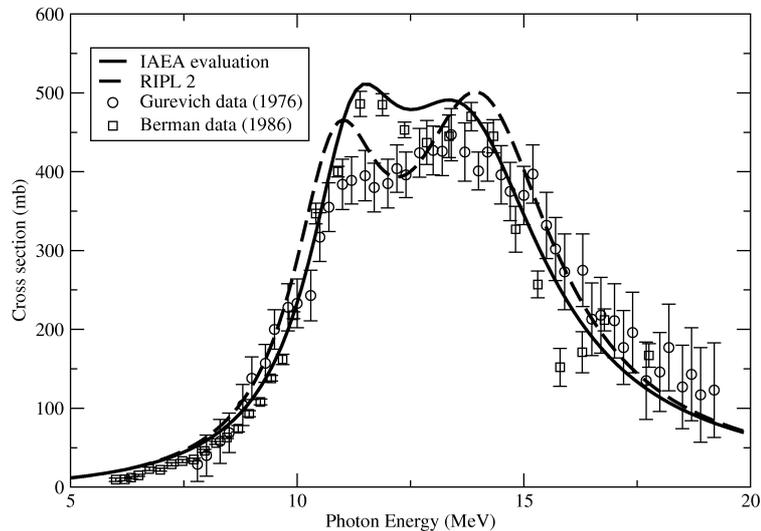


FIG. 3.12 – Sections efficaces de photoabsorption pour le plutonium-239

Dietrich, dans son atlas [Die88], donne les paramètres ajustés sur les mesures de Berman pour décrire les deux lorentziennes de la photoabsorption sur le plutonium-239. Ces valeurs sont utilisées pour modéliser la photoabsorption lors de cette évaluation de sections efficaces photonucléaires.

Critique des données expérimentales

Seul Berman a mesuré les sections efficaces qui nous intéressent au-delà de 10 MeV avec un faisceau monoénergétique. Ses données servent de base à notre évaluation. Ceci justifie l'utilisation le choix de la section efficace de photoabsorption.

Résultats

Les sections efficaces (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et $(\gamma, \text{fission})$ obtenues avec GNASH après ajuste-

ment des paramètres sont présentées sur la figure 3.13. Comme précédemment, un bon accord entre les données expérimentales et l'évaluation est obtenu pour la production de photoneutrons. La section efficace de photofission est sous-estimée au delà de 15 MeV. C'est aussi le cas pour l'évaluation de l'IAEA.

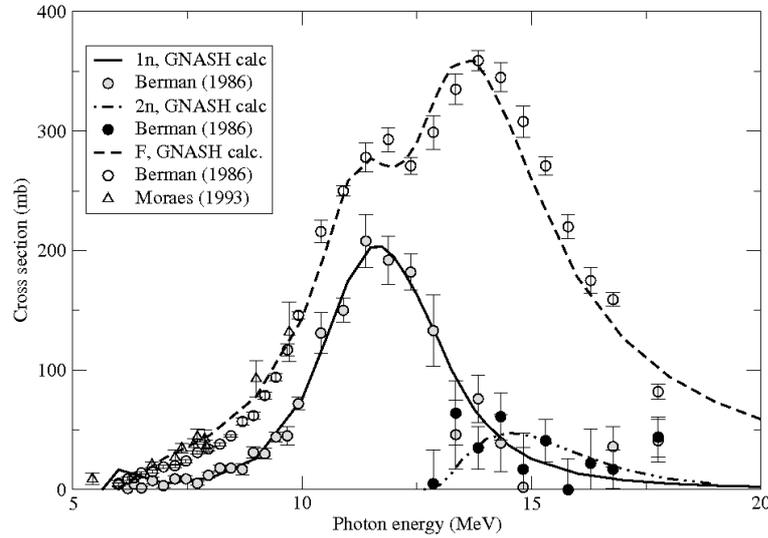


FIG. 3.13 – Résultat de l'évaluation GNASH pour le plutonium-239 comparé aux données expérimentales

Comme on peut le voir sur la figure 3.12, des écarts existent entre les données expérimentales au-delà de 15 MeV, comme c'était déjà le cas pour l'uranium-235. On peut penser que cela est également dû à la section efficace de photoabsorption.

En réévaluant les sections efficaces photonucléaires pour l'uranium-235, l'uranium-238 et le plutonium-239, nous avons montré qu'il est possible d'obtenir des résultats équivalents aux évaluations de l'IAEA en utilisant GNASH. Il est prévu que nos évaluations soient incluses dans la bibliothèque ENDF-B VII. Cette étape importante de l'évaluation permet d'inclure les évaluations réalisées ici dans des codes de transports tels que MCNP. Les capacités de ces codes sont ainsi développés et la validation des évaluations est facilitée.

Évaluation du neptunium-237

Le neptunium-237 est le premier noyau évalué par nos soins pour lequel il n'y a pas d'évaluation faite par l'IAEA.

Choix de l'absorption

Deux jeux de données existent [Ber86, Vey73]. Les mesures ont été effectuées de la même manière que pour l'uranium-238.

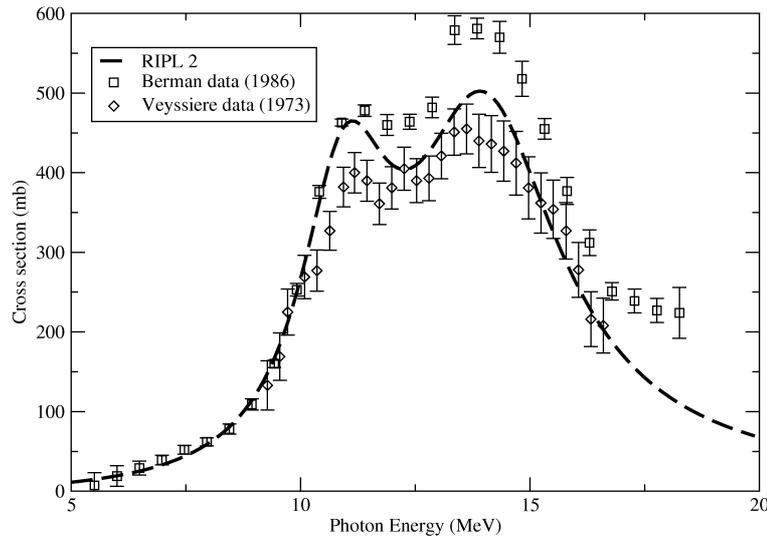


FIG. 3.14 – Sections efficaces de photoabsorption pour le neptunium-237

Comme on peut le voir sur la figure 3.14, de gros écarts existent entre ces mesures. La comparaison entre l'intégrale de la section efficace de photoabsorption sur la gamme d'énergie 0 à 20 MeV et la règle de somme est présentée dans le tableau 3.2. On constate que les données de Berman ne correspondent pas à la règle de somme (18% d'écart) alors que les données de Veysière sont plus proches (4% d'écart).

	Intégrale (MeV.barn)	$\frac{\text{Int}}{\text{Int RIPL-2}}$
Berman [Ber86]	4.01	1.18
Veysière [Vey73]	3.24	0.96
RIPL-2	3.40	1

TAB. 3.2 – Comparaison de l'intégrale des sections efficaces de photoabsorption pour le neptunium-237

Les paramètres RIPL-2 ont été préférés aux données expérimentales pour décrire la photoabsorption. La photoabsorption choisie est alors située entre les données expérimentales. Jusqu'à 11 MeV, la section efficace de photoabsorption obtenue est proche des données de Berman. Ensuite le calcul est plus proche des données de Veysière.

Critique des données expérimentales

Comme la section efficace de photoabsorption est quasiment égale à la somme des sections efficaces (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et $(\gamma, \text{fission})$ dans le cas des actinides, il est normal que les sections efficaces individuelles expérimentales soient également en désaccord. Le désaccord porte sur la section efficace de photofission. Des mesures intégrales de taux de fission ont été effectuées (voir tableau 3.3). Elles n'ont toutefois pas permis de valider l'une ou l'autre

des mesures. Elles tendent à confirmer que la section efficace de photofission se situe entre les valeurs mesurées par Berman et Veyssièrè.

Lors de l'évaluation, nous avons commencé par chercher à reproduire les sections efficaces de production de photoneutrons. Puis nous avons cherché une section efficace de photofission entre les valeurs expérimentales en essayant de reproduire les mêmes écarts que pour la photoabsorption. Nous avons en particulier essayé de reproduire les données de Berman jusqu'à 11 MeV.

Résultats

Les sections efficaces (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et $(\gamma, \text{fission})$ obtenues avec GNASH sont présentées sur la figure 3.15. Les sections efficaces de production de photoneutrons sont bien reproduites. Pour la section efficace de photofission les écarts entre les données expérimentales et l'évaluation ressemblent à ceux de la section efficace de photoabsorption.

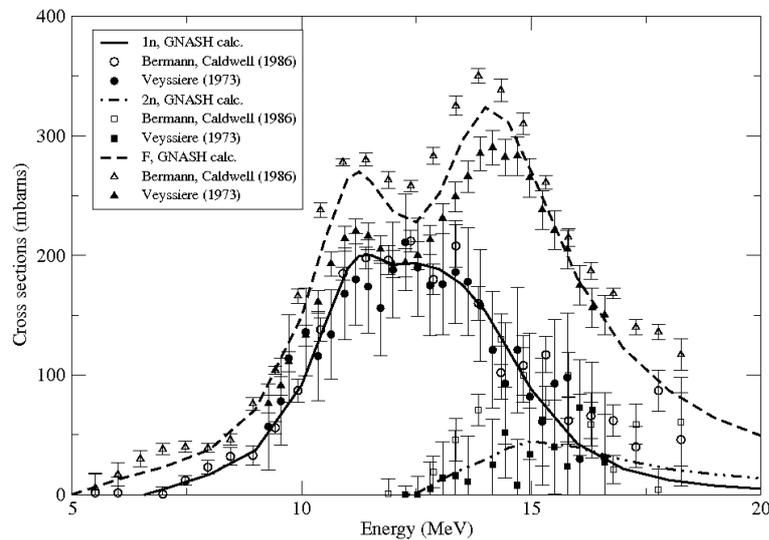


FIG. 3.15 – Résultat de l'évaluation GNASH pour le neptunium-237 comparé aux données expérimentales

Par ailleurs, des mesures intégrales existent pour le neptunium-237. Elles peuvent nous permettre de choisir entre différentes données expérimentales si ces dernières sont en désaccord.

Huizenga [Hui54] a mesuré le taux de fission relatif entre le neptunium-237 et l'uranium-238 en utilisant un faisceau de Bremsstrahlung avec différentes énergies maximales. Le taux de fission relatif (R) a été calculé selon la formule (3.7). L'évaluation de l'IAEA pour la section efficace de photofission de l'uranium-238 a été utilisée comme référence. Nous avons comparé les résultats obtenus en utilisant l'évaluation de GNASH et les données de Berman et Veyssièrè pour la section efficace de photofission du neptunium-237 dans le tableau 3.3. Comme on l'a vu à la section 3.1.5 (p. 51), l'évaluation de GNASH pour la section efficace de photofission de l'uranium-238 est très proche de celle de l'IAEA et des données expérimentales. Les valeurs entre parenthèses sont obtenues en utilisant notre

évaluation de la section efficace de photofission de l'uranium-238 avec GNASH à la place de l'évaluation de l'IAEA. Ceci permet d'avoir une idée de l'erreur systématique liée au choix de la section efficace de référence. Cette erreur est de l'ordre de 3%.

Énergie (MeV)	12	17	20
Données expérimentales [Hui54]	2.53 ± 0.16	2.39 ± 0.10	2.40 ± 0.11
Évaluation GNASH	2.54 (2.50)	2.24 (2.26)	2.11 (2.15)
Données de Berman	2.92 (2.83)	2.50 (2.54)	2.38 (2.42)
Données de Veyssièrè	2.62 (2.54)	2.08 (2.11)	1.99 (2.04)

TAB. 3.3 – Comparaison du taux de fission relatif du neptunium-237 (données expérimentales et évaluées) par rapport à l'uranium-238 (données de l'IAEA et évaluation GNASH entre parenthèses) pour différentes énergies de Bremsstrahlung

La figure 3.16 présente le taux de fission par photon ayant une énergie supérieure à 5 MeV. Ce taux a été calculé avec la section efficace de photofission évaluée par GNASH pour chacune des trois énergies utilisées par Huizenga. Seule la fission de première chance compte à 12 MeV. La différence pour le taux de fission entre 17 et 20 MeV est minime, la plupart des photofissions étant induites par des photons ayant une énergie entre 10 et 15 MeV.

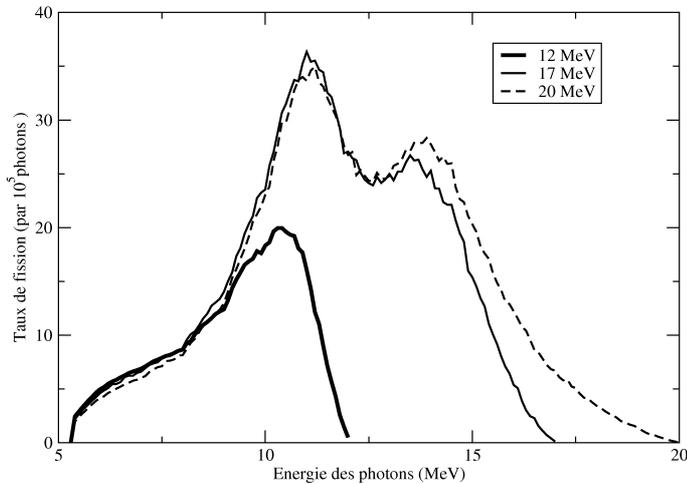


FIG. 3.16 – Taux de fission du neptunium-237 pour différentes énergies de Bremsstrahlung

On constate qu'à 12 MeV l'accord entre l'évaluation GNASH et les données expérimentales est très bon. Sur cette partie, les données expérimentales sont proches et donc l'évaluation est plus précise. Par contre, quand l'énergie augmente les valeurs expérimentales semblent être sous-estimées. Il s'agit de la partie où les données expérimentales sont en désaccord, il est donc difficile de faire une évaluation fiable. De plus, entre 18 et 20 MeV, il n'y a aucune donnée. Comme nous l'avons en outre déjà constaté pour d'autres actinides, il est possible que la section efficace d'absorption à haute énergie soit trop faible

parce que nous ne tenons pas compte de la photoabsorption sur le quasi-deuton. Nos évaluations sont donc systématiquement inférieures aux données expérimentales. Ceci peut expliquer les différences obtenues dans le tableau 3.3 et dont l'écart croît quand l'énergie augmente.

Pour le calcul avec les données expérimentales, l'interpolation linéaire entre le seuil de photofission et le premier point expérimental a été choisie. Pour Veyssière, le premier point est à 9.28 MeV, ce qui explique que l'on surestime la valeur à 12 MeV, alors que l'on pouvait s'attendre au contraire car les données expérimentales sont inférieures à l'évaluation. On constate que les valeurs de Veyssière sont sous-estimées alors que celles de Berman sont surestimées, au moins aux basses énergies.

En plus des mesures intégrales du taux de fission par Huizenga, Kase [Kas92] a mesuré l'efficacité d'incinération (E_{inc}) du neptunium-237. Il s'agit du nombre de noyaux de neptunium-237 qui ont fissionné par photon incident. Cette méthode permet de s'affranchir de la section efficace de photofission de l'uranium-238. Ce taux peut être calculé par la formule (3.8).

$$E_{inc} = \frac{\int_{E_{th}}^{E_{max}} \sigma_{f_{237\text{Np}}}(E) \phi(E) dE}{S \int_{E_{th}}^{E_{max}} \phi(E) dE} \quad (3.8)$$

S surface de la cible
 E_{th} énergie du seuil de fission

Seuls les résultats avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 20 MeV sont intéressants. Au delà, il faudrait trop extrapoler les données et les sources d'erreur deviendraient nombreuses. Le flux de Bremsstrahlung a été simulé avec MCNPX. La section efficace de photofission utilisée est celle de GNASH. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.4.

	Efficacité de transmutation (atome/ 10^{25} γ $E > E_{th}$)
[Kas92]	0.941
Calcul	0.895

TAB. 3.4 – Efficacité de transmutation du neptunium-237 dans un flux de photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 20 MeV

Comme on peut le voir, notre calcul permet de reproduire la mesure intégrale de Kase à 5% près, ce qui est excellent. Kase a comparé ses résultats expérimentaux à un calcul du taux de transmutation en utilisant les sections efficaces de Berman et de Veyssière et un flux de Bremsstrahlung simulé. En utilisant les valeurs de Veyssière, il sous-estime le taux de transmutation d'environ 10%, avec les valeurs de Berman il le surestime de 20%. Ces écarts correspondent à ceux relevés sur les sections efficaces de photoabsorption.

Les résultats obtenus lors de l'évaluation de la section efficace de photofission permettent de reproduire différentes mesures intégrales. Ceci valide notre choix de répercuter

les écarts obtenus pour la section efficace de photoabsorption uniquement sur la section efficace de photofission.

En même temps que notre évaluation, une autre évaluation des sections efficaces photo-nucléaires pour le neptunium-237 a été faite pour la bibliothèque JENDL [Kis04] mais elle se base uniquement sur les données de Veysière. Ces données ne permettent cependant pas de retrouver les valeurs obtenues lors de mesures intégrales. On peut raisonnablement penser que l'évaluation présentée ici est de meilleure qualité.

Évaluation du plutonium-240

Choix de l'absorption

Il n'existe pas de données expérimentales pour la photoabsorption sur le plutonium-240. Nous avons donc choisi de la calculer avec les paramètres RIPL-2.

Critique des données expérimentales

Les seules données expérimentales disponibles ont été mesurées avec un faisceau de Bremsstrahlung et ce jusqu'à 10 MeV [Sol00] pour la section efficace de photofission. Cette dernière est obtenue à partir de la mesure du taux de fission relatif. Soldatov a également fait des mesures sur l'uranium-235, l'uranium-238 et le plutonium-239 [Sol94, Sol00]. Après déconvolution du spectre de Bremsstrahlung, ses résultats sont en accord avec les valeurs mesurées à l'aide un faisceau monoénergétique par Berman, Caldwell et Veysière. On peut penser que la déconvolution du spectre est bien effectuée et que ses données sont fiables.

En fait, seuls les paramètres de la fission de première chance sont à ajuster puisque les paramètres de la barrière de fission de deuxième chance ont déjà été ajustés lors de l'évaluation du plutonium-239. Les données au-dessus du seuil de fission de deuxième chance ne sont pas indispensables.

Résultats

Les sections efficaces (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et $(\gamma, \text{fission})$ obtenues avec GNASH après ajustement des paramètres sont présentées sur la figure 3.17.

Les données expérimentales sont bien reproduites. Aucune mesure intégrale n'a été effectuée pour le plutonium-240. Nous n'avons donc pas pu tester notre évaluation comme cela a été fait pour le neptunium-237.

On peut toutefois avoir confiance dans l'évaluation au-delà des données expérimentales puisque nous utilisons pour décrire la barrière de fission de deuxième chance des paramètres qui ont été ajustés auparavant sur des données expérimentales. Cependant seules des mesures supplémentaires permettraient de valider notre évaluation.

Évaluation de l'américium-241

Choix de l'absorption

Comme pour le plutonium-240, il n'existe pas de données expérimentales pour la photoabsorption sur l'américium-241. Nous avons donc choisi de la calculer avec les paramètres RIPL-2.

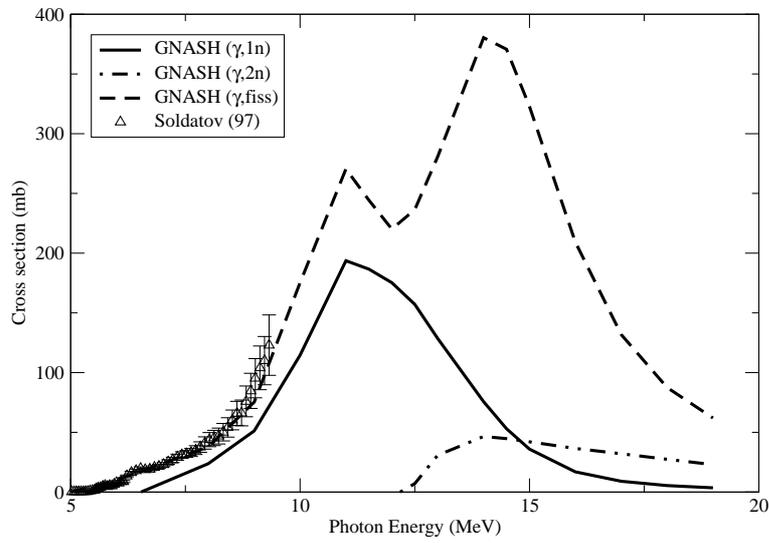


FIG. 3.17 – Résultat de l'évaluation GNASH pour le plutonium-240 comparé aux données expérimentales

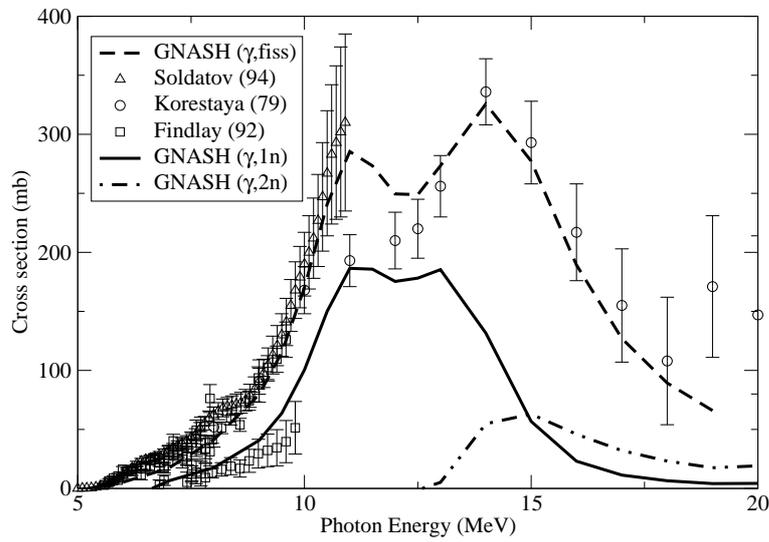


FIG. 3.18 – Résultat de l'évaluation GNASH pour l'américium-241 comparé aux données expérimentales

Critique des données expérimentales

Il existe deux jeux de données expérimentales pour la photofission [Kor79, Sol94]. Toutes deux ont été mesurées avec un faisceau de Bremsstrahlung. Les données de Soldatov ont été choisies comme base de l'évaluation jusqu'à 11 MeV. Après, celles de Koretskaya ont été utilisées. Comme Soldatov, Koretskaya a mesuré le taux de fission relatif de l'américium-241 par rapport à l'uranium-238 et en a déduit la section efficace de photofission.

Les données pour la production de neutrons jusqu'à 10 MeV proviennent des mesures de Findlay [Fin92].

Résultats

Les sections efficaces obtenues avec GNASH sont présentées sur la figure 3.18.

Jusqu'à 11 MeV, l'évaluation est en accord avec les données de Soldatov. Entre 11 et 13 MeV les données, en désaccord, ne sont pas reproduites. Au delà de 13 MeV, l'évaluation rejoint les données de Koretskaya. L'évaluation surestime légèrement les données de Findlay pour la production d'un photoneutron entre 9 et 10 MeV.

Cette évaluation peut être comparée à des mesures intégrales comme dans le cas du neptunium-237. Deux mesures du taux de fission relatif de l'américium-241 par rapport à l'uranium-238 [Vin76, Ale86] existent pour différentes énergies de Bremsstrahlung. La comparaison de ces valeurs avec les résultats obtenus en utilisant l'évaluation de GNASH est présentée dans le tableau 3.5. Les mesures sont bien reproduites même si elles sont légèrement surestimées. Comme pour le neptunium-237, quand on monte en énergie l'écart entre l'évaluation et les données expérimentales croît.

Énergie (MeV)	GNASH	Expérimental
11.5	2.54 (2.43)	2.45±0.07 [Ale86]
14.5	2.51 (2.52)	2.42±0.06 [Vin76]
16.6	2.34 (2.37)	2.18±0.07 [Vin76]

TAB. 3.5 – Comparaison du taux de fission relatif de l'américium-241 (données expérimentales et évaluées) par rapport à l'uranium-238 (données de l'IAEA et évaluation GNASH entre parenthèses) pour différentes énergies de Bremsstrahlung

Comme précédemment on constate que l'écart lié au choix de la section efficace de référence est faible. Le résultat obtenu pour un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 11.5 MeV valide le fait que l'on préfère les données de Soldatov à celles de Koretskaya. Il serait intéressant de refaire des mesures de sections efficaces de photofission au dessus de 10 MeV pour valider notre évaluation.

3.1.6 Conclusion sur l'insertion des sections efficaces dans la bibliothèque d'activation photonucléaire

En utilisant les évaluations de l'IAEA complétées par les résultats de HMS-ALICE et de GNASH, la partie de la bibliothèque contenant les sections efficaces d'activation a pu être produite. Les évaluations de l'IAEA ont fourni les valeurs pour 164 noyaux, les

sections efficaces pour les 572 noyaux restants ont été calculés grâce à HMS-ALICE. Trois noyaux non évalués par l'IAEA, le neptunium-237, le plutonium-240 et l'américium-241, ont été évalués à l'aide de GNASH pour la première fois. Cette méthode d'évaluation a été validée sur l'uranium-235, l'uranium-238 et le plutonium-239. Les nouvelles évaluations ont été comparées à des mesures intégrales lorsque de telles mesures existent.

Il est prévu d'inclure les évaluations de GNASH pour ces six noyaux dans la bibliothèque ENDF-B VII. Le manque de données expérimentales ne permet cependant pas d'étendre ces évaluations à d'autres actinides.

Cette partie de la bibliothèque permet déjà d'effectuer des calculs d'activation s'il n'y a pas de fission. Pour tenir compte de la fission, il est nécessaire de connaître les distributions des produits de photofission.

3.2 Bibliothèque d'activation : produits de photofission

Quand de la fission a lieu dans un matériau, l'activation totale ne peut être calculée que si les distributions isotopiques des produits de fission sont connues. Ces derniers contribuent grandement à l'activité au début de la période de décroissance. En ce qui concerne les actinides, ces distributions sont bien connues pour la fission induite par neutron. Dans le cas de la photofission, quelques rares distributions ont été mesurées avec un flux de Bremsstrahlung.

3.2.1 Première approche

Une recherche bibliographique a montré que très peu de données concernant les distributions de produits de photofission existent. La bibliothèque ne peut être remplie en utilisant des données expérimentales. Il faut donc calculer ces distributions.

La première approche lors de l'étude des distributions de produits de photofission a été de considérer que la production des produits de fission dépend uniquement du noyau composé et de son énergie d'excitation [Dav03]. Nous avons donc commencé par chercher une relation entre la distribution des produits issus de la fission induite par neutron et ceux issus de photofission. Cette étude a tout d'abord montré (figure 3.19) que les distributions en masse pouvaient être reproduites en utilisant les distributions de la fission induite par neutron sur le même noyau composé ayant la même énergie d'excitation.

Sur la figure 3.19, les distributions massiques créées par la photofission induite par un faisceau de Bremsstrahlung de 25 MeV (données de Thierens [Thi76] en rouge et calcul ABLA en vert) semblent équivalentes aux distributions qui seraient créées par des neutrons de 6-8 MeV. Cependant lorsque l'on regarde les distributions isotopiques (figure 3.20), on s'aperçoit qu'il existe des différences importantes entre les deux types de fission. Les données expérimentales [DeF82] proviennent de la photofission de l'uranium-235 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV. Les données en neutrons proviennent de l'étude systématique d'England [Eng94].

Cette figure montre qu'il est difficile d'établir un lien entre les distributions isotopiques issues de la fission induite par neutron et de la photofission. Les données nécessaires seraient en outre celles de la fission induite par des neutrons d'environ 8 MeV, or peu

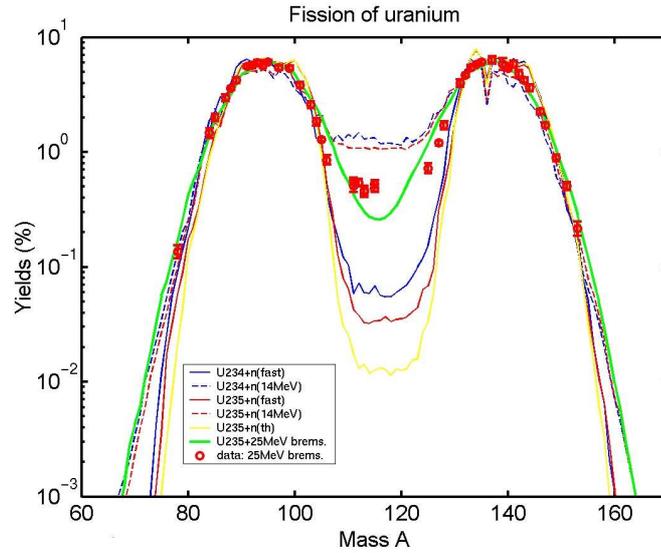


FIG. 3.19 – Correspondance entre les distributions de produits de fission produits par fission induite par neutron et par photofission

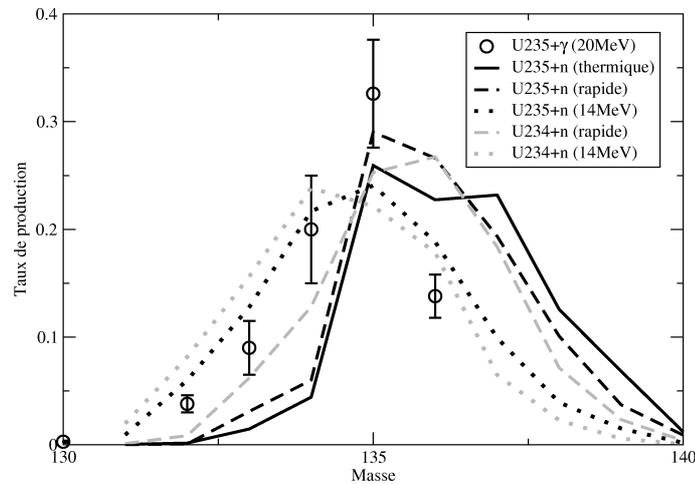


FIG. 3.20 – Distribution isotopique de l'iode lors de la fission de l'uranium-234 et de l'uranium-235 comparée à la photofission de l'uranium-235 par des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV

de données expérimentales existent dans ce domaine en énergie. Nous avons donc décidé d'utiliser les codes de calcul ABLA ou HMS-ALICE afin d'estimer les distributions de produits de fission plutôt que de chercher un lien.

3.2.2 Comparaison ABLA/HMS-ALICE pour le calcul des distributions de produits de photofission

Une relation entre les distributions des produits de fission issues de la fission induite par neutron et celles issues de photofission ne semble pas évidente à trouver. Pour cette raison, de telles distributions doivent être calculées si les données sont insuffisantes. Nous avons alors testé deux codes : HMS-ALICE et ABLA qui ont été présentés au chapitre 2.

Afin de déterminer lequel choisir pour calculer les distributions à intégrer dans la bibliothèque, nous avons étudié les méthodes utilisées lors du calcul des distributions. Nous avons ensuite comparé les résultats obtenus à différentes données expérimentales, mesurées avec des faisceaux monoénergétiques ou de Bremsstrahlung. Ces distributions ont également été testées pour prédire les spectres d'émission de neutrons retardés.

Méthode de calcul de la distribution de produits de fission

Dans cette section, nous présentons les méthodes utilisées par HMS-ALICE et ABLA pour calculer les distributions isotopiques des produits de fission.

HMS-ALICE

La distribution des produits de fission dans HMS-ALICE est calculée selon le principe décrit pour CEM2k dans l'article de Mashnik [Mas02]. Il s'agit d'une méthode phénoménologique. La distribution en masse est tout d'abord calculée. La probabilité de fission asymétrique en fonction de l'énergie E de la particule incidente est calculée par la formule suivante.

$$P_{asy} = \frac{4870 \exp(-0.36E)}{1 + 4870 \exp(-0.36E)} \quad (3.9)$$

Dans le cas de la fission asymétrique du noyau (Z, A) , la masse du produit lourd (A_1) est distribuée selon une gaussienne dont la moyenne (A_f) vaut 140 et la largeur σ_M 6.5. La masse du noyau léger (A_2) est calculée par différence : $A_2 = A - A_1$. Dans le cas de la fission symétrique, la masse est toujours répartie selon une gaussienne où $A_f = A/2$ et σ_M est calculé par la formule de Mashnik [Mas02].

$$\sigma_M = 0.122 \left(Z^2/A \right)^2 - 7.77 \left(Z^2/A \right) + 0.0332 (E - B_f) + 134 \quad (3.10)$$

où

$$B_f = C - 0.36 \left(Z^2/A \right)$$

$$C = \begin{cases} 18.8 \text{ MeV} & \text{noyaux impairs - impairs} \\ 18.1 \text{ MeV} & \text{noyaux pairs - impairs} \\ 18.5 \text{ MeV} & \text{noyaux pairs - pairs} \end{cases}$$

La distribution en charge pour une masse A_1 donnée est une gaussienne dont la moyenne Z_f est calculée grâce à la formule (3.11) et dont la largeur vaut 0.75.

$$Z_f = \frac{Z + Z'_1 + Z'_2}{2} \quad (3.11)$$

où

$$Z'_i = \frac{65.5A_i}{131 + A_i^{2/3}}, \quad i = 1 \text{ ou } 2$$

Les largeurs des gaussiennes et les constantes des équations (3.9) et (3.10) ont été ajustées sur des données expérimentales. Ce modèle [Mas02], purement phénoménologique, calcule directement les produits de fission.

ABLA

ABLA [Jun98] ne calcule pas analytiquement les distributions en masse comme HMS-ALICE mais utilise une méthode Monte Carlo avec un modèle semi-empirique. ABLA calcul en outre les distributions des fragments de fission. Les distributions de produits de fission sont obtenues après un calcul d'évaporation. Le modèle est basé sur le poids statistique des états de transitions au-dessus de la barrière de potentiel. Un exemple de barrière de potentiel est donné sur la figure 3.21. La parabole principale représente le potentiel de fission symétrique. Les deux autres sont dues au modèle en couche et conduisent à la fission asymétrique. Les paramètres de ces différentes courbes doivent être ajustés sur des données expérimentales.

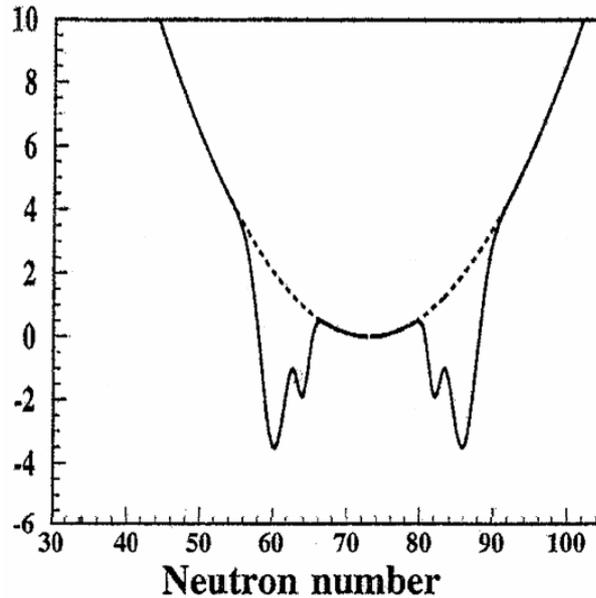


FIG. 3.21 – Exemple de barrière de potentiel utilisée dans ABLA (cas de l'uranium-238) [Ben98]

Dans ABLA, les distributions sont également basées sur des gaussiennes. Elles sont au nombre de cinq. Une pour la fission symétrique, deux pour le pic lourd de fission asymétrique et leurs deux symétriques pour le pic léger. Comme dans HMS-ALICE, on commence par déterminer le type de fission. Pour chaque valeur du nombre de neutrons dans un produit de fission (N) on détermine quelle est la probabilité d'avoir tel ou tel type de fission [Ben98] en fonction de l'énergie d'excitation.

$$Y_{sym}(E^*, N) = \exp(S_{sym}) \exp\left(-\frac{(N_{CN}/2 - N)^2}{\sigma_{sym}^2}\right) \quad (3.12)$$

où

$$S_{sym} = 2\sqrt{aE^*}$$

$$\sigma_{sym}^2 = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{E^*}}{C_{sym}\sqrt{a}}$$

E^*	énergie d'excitation du noyau fissionnant
N_{CN}	nombre de neutrons du noyau fissionnant
a	paramètre de densité de niveau ici, $a = A/8$
C_{sym}	courbure du potentiel de fission symétrique

Dans le cas de la fission asymétrique, il faut tenir compte des effets de couche pour un nombre de neutrons $N_{asym,1}$ égal à 82 et $N_{asym,2}$ compris entre 86 et 90 et de leur symétrique. Ces effets sont ajustés sur des données expérimentales. La distribution des neutrons en cas de fission asymétrique est donnée par la formule (3.13).

$$Y_{asym,i}(N) = \exp(S_{asym,i}(N)) \exp\left(-\frac{(N_{asym,i} - N)^2}{\sigma_{asym,i}^2}\right) - Y_{sym}(E^* - N) \quad (3.13)$$

où

$$S_{asym}(N) = 2\sqrt{a\left(E^* - C(N_{CN}/2 - N)^2 - \delta U_i(E^*, N)\right)}$$

$$\sigma_{asym,1}^2 = 21$$

$$\sigma_{asym,2}^2 = 14 \left(\frac{Z_{CN}^2}{A_{CN}} - 33 \right)$$

$$\delta U_i(E^*, N) = \left(\delta U_i + C_{asym,i} (N_{asym,i} - N)^2 \right) \exp\left(-\frac{a}{0.4A_{CN}^{4/3}} \epsilon\right)$$

$$\epsilon = E^* - C(N_{CN}/2 - N)^2 + C_{asym,i} (N_{asym,i} - N)^2 + \delta U_i$$

3.2. BIBLIOTHÈQUE D'ACTIVATION : PRODUITS DE PHOTOFISSION

δU_i	profondeur de la parabole de l'effet de couche
$C_{asym,i}$	courbure du potentiel de fission asymétrique i
A_{CN}	masse du noyau fissionnant
Z_{CN}	charge du noyau fissionnant

Les valeurs données ici pour $\sigma_{asym,i}^2$ ont été obtenues par ajustement sur des données expérimentales.

La probabilité d'avoir une fission symétrique, asymétrique I ou II est proportionnelle à l'aire de leur distribution respective. À l'aide d'un tirage aléatoire, on détermine le type de fission.

Le nombre de neutrons du fragment de fission est tiré aléatoirement dans une distribution gaussienne correspondant au type de fission déterminé. La valeur moyenne vaut, selon le cas, $N_{CN}/2$, ou $N_{asym,i}$ et la largeur σ_{sym} ou $\sigma_{asym,i}$.

La distribution en charge est également tirée dans une gaussienne basée sur la conservation de la densité de charge c'est à dire que le rapport N/Z est le même dans le noyau qui fissionne et dans les fragments de fission. La valeur de la charge est modulée par une polarisation ΔZ dans le cas de la fission asymétrique, positive pour les fragments légers, négative pour les fragments lourds. La valeur moyenne de la gaussienne $Z(N)$ est donnée par la formule (3.14).

$$Z(N) = N \frac{Z_{CN}}{N_{CN}} \pm \Delta Z \quad (3.14)$$

Le calcul de la largeur de la gaussienne est plus compliqué. Il est présenté ici.

$$\sigma_{Z|N} = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{E^* - C_{Z|N} (N_{CN}/2 - N)^2}}{\sqrt{a} C_{Z|N}} + 0.4$$

$$C_{Z|N} = B(Z+1, N) + B(Z-1, N) - 2B(Z, N) - \frac{e^2}{r_0^2} \left[\frac{(Z+1)(Z-1)}{(A+1)^{1/3} + (A-1)^{1/3}} - \frac{Z^2}{2A^{1/3}} \right]$$

$$r_0 = 1.22 \text{ fm}$$

e charge de l'électron

$B(N, Z)$ énergie de liaison d'un noyau avec N neutrons et Z protons

Un effet de parité δ_p dépendant de la fissilité est ajouté aux distributions en charge pour les noyaux ayant un nombre de charges pair.

$$\delta_p = \exp(29.86 - 0.74Z_{CN}^2/A_{CN})$$

Cet effet est modulé en fonction de l'énergie de la particule incidente.

$$\delta_p(E) = \begin{cases} \delta_p & 0 \leq E \leq E_1 \\ \delta_p \exp\left(-\frac{E-E_1}{T}\right) & E > E_1 \end{cases}$$

$$T = 1 \text{ MeV}$$

$$E_1 = V_B + 2\Delta$$

$$\Delta = 12/\sqrt{A_{CN}}$$

où V_B est la hauteur du point selle.

Contrairement à HMS-ALICE, un effet de parité disparaissant quand l'énergie augmente est pris en compte dans le calcul. Cet effet ne porte pas sur la distribution du nombre de neutrons.

Le calcul de la distribution des produits de fission avec ABLA est basé sur un modèle physique dont les paramètres sont ajustés pour correspondre aux données expérimentales. Lors des calculs pour la photofission, les paramètres de la fission asymétrique I ont été modifiés. Les premiers résultats obtenus sont présentés dans l'article de David [Dav04].

A priori il semble que le modèle de ABLA soit plus adapté à nos besoins car il est semi-empirique. Le modèle de HMS-ALICE est lui complètement phénoménologique et les valeurs n'ont pas été ajustée pour la photofission.

Distribution mesurée avec un faisceau monoénergétique

Une seule mesure de distribution massique de produits de photofission avec des photons monoénergétiques existe [Mea66]. Cette mesure a été effectuée pour douze masses différentes par spectrométrie gamma et normalisée de manière à ce que la contribution de la masse 140 soit égale à 6%. Selon l'auteur, la valeur obtenue pour la masse 135 est anormalement basse sans qu'aucune explication ne soit donnée. Les résultats des calculs de distribution massique obtenus avec ABLA et HMS-ALICE et comparés aux résultats expérimentaux sont donnés sur la figure 3.22.

Les deux codes donnent un résultat semblable pour le pic de noyaux légers. Pour le pic lourd, il y a un léger décalage. Nous ne tiendrons pas compte du point pour la masse 135 conformément à ce qui été dit dans l'article. Le point pour la masse 131 nous semble aussi sujet à condition. On peut tout de suite constater que la vallée est nettement plus creusée dans le cas du calcul avec HMS-ALICE. En l'absence de points expérimentaux il est cependant difficile de trancher sur cet aspect du calcul.

ABLA prédit des élément plus lourds que ceux de HMS-ALICE. Il prédit une somme des masses moyennes des produits de photofission légers et lourds de 234.5 contre 233.5

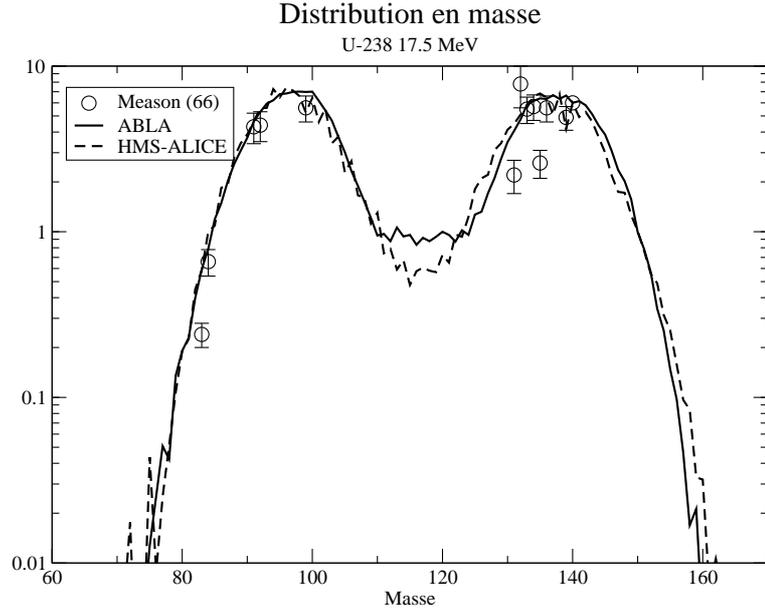


FIG. 3.22 – Distribution en masse des produits de photofission de l'uranium-238 avec des photons monoénergétiques de 17.5 MeV (données expérimentales, calcul ABLA et HMS-ALICE)

pour HMS-ALICE, ceci est lié au décalage du pic lourd. Il est facile de déduire de ces valeurs le nombre de neutrons prompts émis par fission. Veyssière [Vey73] et Caldwell [Cal80] donnent chacun une formule, (3.15) et (3.16) respectivement, pour le nombre de neutrons prompts en fonction de l'énergie des photons incidents. Ces formules sont obtenues par régression linéaire sur leurs données expérimentales. Elles ne sont valables que pour des faisceaux monoénergétiques.

$$\bar{\nu}_p(E) = 0.158E + 1.5 \quad (3.15)$$

$$\bar{\nu}_p(E) = 0.123E + 1.862 \quad (3.16)$$

Les résultats de ces formules sont comparés aux valeurs fournies par HMS-ALICE et ABLA dans le tableau 3.6. On peut s'apercevoir que le nombre de neutrons prompts émis pour ABLA est inférieur aux données alors que dans le cas de HMS-ALICE, il est supérieur. Cette différence peut être imputable à différentes causes. Les neutrons émis emportent une trop grande fraction de l'énergie d'excitation, l'énergie d'excitation des fragments légers n'est pas assez élevée. Ceci est peut-être dû à une mauvaise répartition de l'énergie d'excitation ou bien le rapport entre la fission de première chance et la fission de deuxième chance n'est pas correct.

Cet écart sur le nombre de neutrons prompts émis par fission explique le décalage du pic léger entre les deux calculs. Il est possible qu'il joue aussi sur la vallée.

Les distributions fournies par ABLA ne sont pas ou très peu affectées par l'effet pair impair contrairement à HMS-ALICE. Les données en faisceau monoénergétique ne sont

	$\bar{\nu}_p$
ABLA	3.5
HMS-ALICE	4.5
Veyssière [Vey73]	4.3
Caldwell [Cal80]	4.0

TAB. 3.6 – Comparaison du nombre de neutrons prompts émis

pas assez nombreuses pour permettre de trancher sur cet effet. Les effets de structure disparaissent généralement quand l'énergie d'excitation augmente. On pourrait penser que c'est déjà le cas avec des photons de 17.5 MeV. Nous avons donc également étudié les distributions produits de photofission créés avec un faisceau de Bremsstrahlung afin d'apporter une réponse aux questions qui se sont posées ici.

Distribution mesurée avec un faisceau de Bremsstrahlung

Les distribution de produits de photofission $Y(A, Z)$ créées par un faisceau de Bremsstrahlung sont calculées grâce à la formule (3.17) à partir des distributions issues de calcul avec des photons monoénergétiques. Les distributions calculées sont normalisées à 200%.

$$Y_{Brem}(A, Z, E) = \frac{\sum \sigma_{Y(A,Z)}(E_\gamma)}{\sum_{A,Z} \sigma_{Y(A,Z)}(E_\gamma)} 200, \quad E_\gamma < E \quad (3.17)$$

$$\sigma_{Y(A,Z)}(E_\gamma) = \frac{\phi(E_\gamma)Y(A, Z, E_\gamma)}{\left(\sum_{E_\gamma} \phi(E_\gamma)\right) \left(\sum_{E_\gamma} Y(A, Z, E_\gamma)\right)} \sigma_f(E_\gamma)$$

$Y(A, Z, E_\gamma)$ probabilité de formation du noyau (A, Z) après la fission induite par un photon d'énergie E_γ

$Y_{Brem}(A, Z, E)$ probabilité de formation du noyau (A, Z) après la fission induite avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale E

E_γ énergie des photons incidents

$\phi(E_\gamma)$ flux de photons en fonction de l'énergie

$\sigma_f(E_\gamma)$ section efficace de photofission

De nombreuses mesures avec un faisceau de Bremsstrahlung ont été effectuées pour l'uranium-238. Les distributions calculées par ABLA et HMS-ALICE peuvent ainsi être comparées aux données expérimentales. Sur la figure 3.23, on constate que l'allure générale de la courbe est mieux reproduite par HMS-ALICE mais qu'expérimentalement les effets pairs-impairs prédits ne sont pas vus. Ceci est particulièrement visible pour les masses 99 et 101.

Aucun des deux codes ne parvient à reproduire la partie gauche du pic des produits lourds (de la masse 120 à 140). Les distributions sont globalement basées sur des gaus-

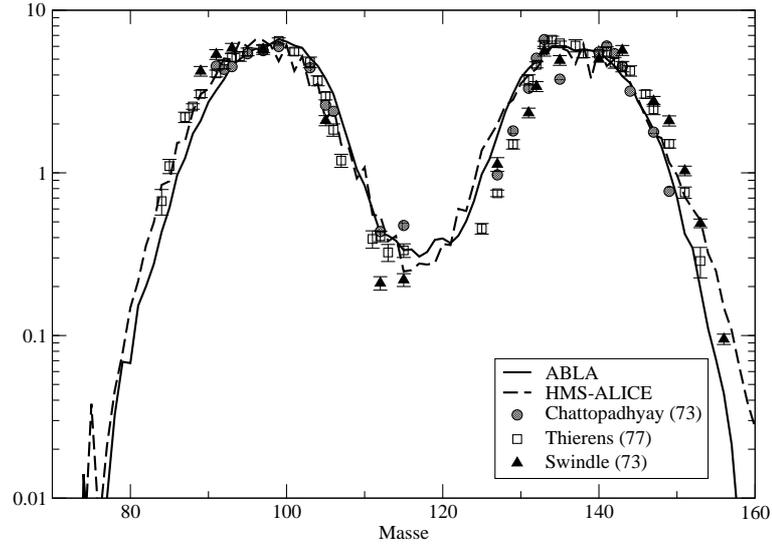


FIG. 3.23 – Distribution en masse suite à la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 25 MeV (données expérimentales, calcul ABLA et HMS-ALICE)

		P/V	$\langle \mu_L \rangle$	$\langle \mu_H \rangle$	$\langle \nu_p \rangle$
Uranium-238 15 MeV	ABLA	32.3	98.0	137.2	2.8
	HMS-ALICE	37.4	96.4	136.6	3.7
	Expérimental [Jac79]	35±4	97.01±0.07	137.8±0.07	3.39±0.12
Uranium-238 25 MeV	ABLA	19.8	98.0	137.1	2.9
	HMS-ALICE	22.5	96.2	136.4	4.0
	Expérimental [Thi76]	19±2	97.1±0.3	138±0.3	3.0±0.4
	Expérimental [Cha73]	12.9	-	-	-

TAB. 3.7 – Caractéristiques de différentes distributions de photofission

siennes, il est possible que ce modèle soit trop simple pour bien reproduire les données expérimentales. Au niveau de la vallée, les données sont par contre bien reproduites. L'écart entre les deux codes est également moins marqué.

Les distributions en masse ont été calculées pour différentes énergies de Bremsstrahlung avec ABLA et HMS-ALICE. Les caractéristiques de ces distributions, comparées aux données expérimentales sont fournies dans le tableau 3.7. Le maximum et les masses moyennes de chaque pic est déterminé par un ajustement numérique sur les données. La valeur de la vallée est prise égale au minimum de chaque distribution. Le nombre de neutrons prompts est pris égal à la différence entre la somme de la masse moyenne des produits et la masse du noyau composé comme expliqué précédemment.

D'autres énergies et d'autres noyaux ont également été étudiés [Dav04]. Les résultats obtenus sont comparables à ceux de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV. ABLA semble donc fournir de meilleurs résultats pour le

calcul de distribution de produits de photofission.

Bien qu'utilisant un modèle purement phénoménologique, HMS-ALICE permet de bien reproduire globalement les distributions des produits de photofission. Par contre l'effet de parité est beaucoup trop fort. ABLA utilise un modèle plus physique mais celui-ci ne permet pas de bien reproduire le pic léger. Pour ABLA, il est en outre nécessaire de réajuster les paramètres de la fission asymétrique I pour chaque élément. Son utilisation est donc limitée pour des éléments pour lesquels aucune donnée expérimentale n'existent. D'autres comparaisons sont nécessaires pour valider ces deux codes et ajuster les paramètres sur les données expérimentales. Il est en outre intéressant de comparer les distributions isotopiques des produits de photofission. Malheureusement, ces données sont très peu nombreuses par rapport au distribution en masse.

3.2.3 Test des distributions isotopiques des produits de photofission

Peu d'expériences ont été effectuées pour mesurer les distributions isotopiques des produits de photofission, la plupart d'entre elles mesurent les distributions massiques. Il est donc difficile de tester les distributions calculées par ABLA ou HMS-ALICE.

Comparaison aux données expérimentales

Quelques mesures de distribution en charge existent [DeF82, DeF84]. Nous avons montré précédemment que les distributions en masse sont assez bien reproduites par les deux codes utilisés. Si les distributions en charge sont également bien reproduites, on peut penser que les distributions isotopiques sont bonnes. La figure 3.24 présente la distribution en charge suite à la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV. HMS-ALICE est en accord avec les données sauf dans le cas de l'iode ($Z=53$). Pour ABLA aussi les résultats sont bons. Les données sont cependant trop peu nombreuses pour valider ce résultat. On peut toutefois constater que les résultats des deux codes sont proches.

Le tableau 3.8 présente la masse moyenne d'un élément pour les distributions présentées à la figure 3.24. On peut constater que cette valeur est bien reproduite par HMS-ALICE sauf pour l'étain et l'iode. Cet écart est vraisemblablement dû à l'effet pair-impair qui est plus important que celui constaté lors de mesures expérimentales. Dans le cas du calcul avec ABLA, les résultats sont tout aussi bons sauf pour l'iode et le xénon où l'on remarque un décalage d'une unité de masse.

Quelques mesures partielles de distributions isotopiques existent. La figure 3.25 présente la distribution des isotopes de l'iode. Elle confirme le décalage de masse vu précédemment. HMS-ALICE semble bien reproduire les résultats pour les isotopes de masses impairs. Comme précédemment, on peut déduire de cette figure que l'effet de parité est trop important lors des calculs de HMS-ALICE. Dans le cas du calcul effectué avec ABLA, il semble que la forme de la distribution soit respectée. On peut logiquement penser que pour les éléments où il n'y a pas de décalage de masse la distribution est bien reproduite.

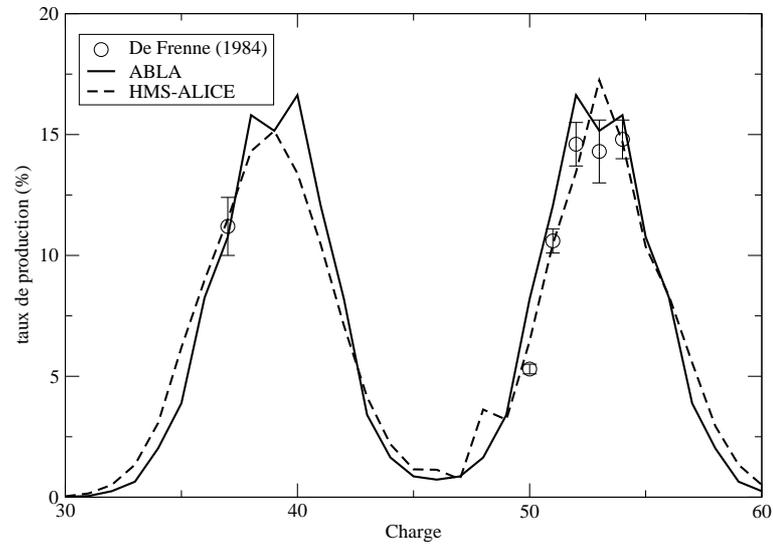


FIG. 3.24 – Distribution en charge de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV (données expérimentales, calcul ABLA et HMS-ALICE)

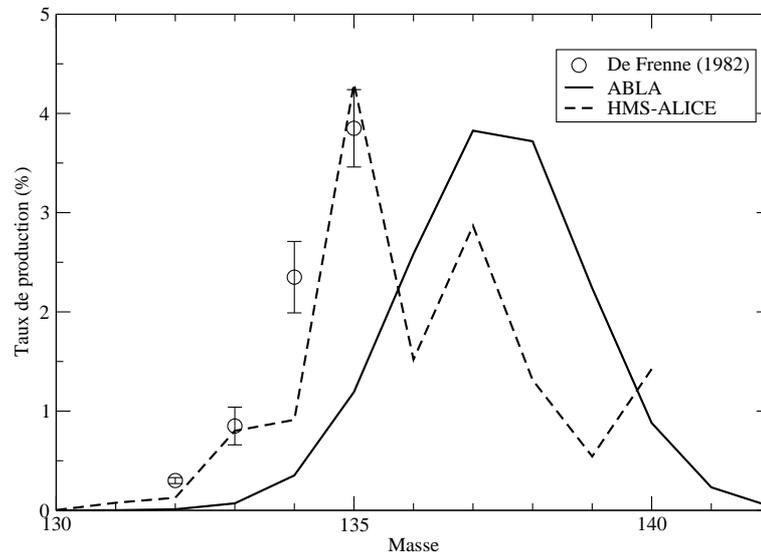


FIG. 3.25 – Distribution des isotopes de l'iode produits lors de la photofission de l'uranium238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV

	[DeF84]	ABLA	HMS-ALICE
Rubidium	93.0±0.6	93.3	92.9
Étain	130.9±0.2	129.9	128.9
Antimoine	131.8±0.3	132.4	131.8
Tellure	134.1±0.4	134.9	134.1
Iode	136.3±0.5	137.4	137.4
Xénon	138.8±0.3	139.8	139.1

TAB. 3.8 – Masse moyenne de quelques éléments produits lors de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV

Validation partielle grâce aux spectres d'émission de neutrons retardés

Une validation partielle peut être fournie par le calcul des spectres d'émission de neutrons retardés. Nous avons développé pour cela un programme qui extrait les précurseurs de neutrons retardés parmi une distribution isotopique de produits de fission et donne leur répartition en six groupes. Ce programme est présenté en détail à la section 2.3 (p. 33).

Commençons par regarder les distributions de quelques précurseurs dans le tableau 3.9 et les résultats de calcul de spectre d'émission de neutrons retardés pour les photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV présentés dans le tableau 3.10.

Précurseur	$T_{1/2}$ (s)	Distribution cumulative (%)		Contribution absolue	
		ABLA	HMS-ALICE	ABLA	HMS-ALICE
¹³⁷ I	24.5	5.59	3.09	0.389	0.216
¹³⁸ I	6.50	4.30	2.25	0.216	0.121
⁸⁹ Br	4.38	1.10	1.76	0.143	0.246
¹³⁵ Sb	1.82	0.77	0.20	0.172	0.036
⁹⁰ Br	1.80	0.58	0.40	0.150	0.099
⁹¹ Br	0.60	0.23	0.77	0.070	0.139
⁹⁵ Rb	0.38	1.56	1.58	0.139	0.202

TAB. 3.9 – Distribution cumulative et contribution absolue de quelques précurseurs pour la photofission de l'uranium-238 avec des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV

Comme on peut le voir, les écarts entre les résultats des deux codes sont importants (tableaux 3.9 et 3.10). Il sont plus marqués pour les noyaux à vie courte donc riches en neutrons. Cet écart avait déjà été observé lors de l'étude des neutrons retardés produits dans une cible de spallation [Rid05]. Le modèle de Mashnik [Mas02] tend en effet à produire beaucoup plus de noyaux riches en neutrons que ABLA. C'est cette différence que l'on retrouve ici. Il semble toutefois que ABLA donne de meilleurs résultats que HMS-ALICE au moins pour les quatre premiers groupes.

Le tableau 3.11 présente le calcul du spectre de neutrons retardés à partir des distributions calculées par ABLA mais avec deux bibliothèques de précurseurs différentes.

3.2. BIBLIOTHÈQUE D'ACTIVATION : PRODUITS DE PHOTOFISSION

$\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV)						
Groupe	$T_{1/2}$ (s)			A_i		
	ABLA	HMS-ALICE	[Nik65]	ABLA	HMS-ALICE	[Nik65]
1	55.6	55.6	56.2±0.8	0.028	0.033	0.061±0.010
2	22.36	21.91	21.3±0.3	0.52	0.324	0.489±0.070
3	5.43	5.14	5.50±0.20	0.47	0.437	0.545±0.070
4	1.86	1.54	2.15±0.10	1.38	1.293	0.970±0.150
5	0.47	0.465	0.70±0.06	0.47	1.497	0.552±0.080
6	0.19	0.173	0.19±0.02	0.165	1.017	0.502 ^{+0.120} -0.200
			Total	3.033	4.602	3.1±0.4

TAB. 3.10 – Répartition en six groupes du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV

$\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV) calcul ABLA						
Groupe	$T_{1/2}$ (s)			A_i		
	Données précurseurs		[Nik65]	Données précurseurs		[Nik65]
	[Eng94]	[Pfe01]		[Eng94]	[Pfe01]	
1	55.6	55.6	56.2±0.8	0.028	0.036	0.061±0.010
2	22.36	19.32	21.3±0.3	0.52	0.554	0.489±0.070
3	5.43	5.76	5.50±0.20	0.47	0.355	0.545±0.070
4	1.86	1.74	2.15±0.10	1.38	1.711	0.970±0.150
5	0.47	0.449	0.70±0.06	0.47	0.437	0.552±0.080
6	0.19	0.190	0.19±0.02	0.165	0.093	0.502 ^{+0.120} -0.200
			Total	3.033	3.19	3.1±0.4

TAB. 3.11 – Répartition en six groupes du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV calculés avec deux bibliothèques de précurseurs différentes

En utilisant les données d'England [Eng94], les groupes 2 à 4 sont bien reproduits par contre la valeur de $\bar{\nu}_d$ est inférieure à la valeur de Nikotin de plus 20%. En utilisant les données de Pfeiffer [Pfe01], la valeur de $\bar{\nu}_d$ est bien reproduite mais on constate des écarts importants au niveau des contributions des groupes 3 et 4 et des temps de vie des groupes 4 et 5. On constate que le choix de la bibliothèque de précurseurs influence beaucoup les résultats. Comme dans le cas de la fission induite par neutron, on préférera utiliser les données d'England car les groupes 2 à 4 sont bien reproduits. L'écart sur la contribution du groupe 1 n'est pas lié à la bibliothèque de précurseurs mais au calcul du taux de production du brome-87.

3.2.4 Choix du code de calcul pour les distributions des produits de photofission

Les distributions de produits de photofission calculés par ABLA et les données d'England, pour les précurseurs, semblent donner de meilleurs résultats lors du calcul des spectres de neutrons retardés. Les effets de structure sont en outre quasi-inexistants à haute énergie comme cela a été vu expérimentalement avec les neutrons. La forme de la distribution des isotopes d'un élément semble respectée même si parfois il existe un décalage notable au niveau des masses. On utilisera donc préférentiellement ABLA. Il est, par contre, nécessaire de faire des ajustements élément par élément. Pour le moment, seules les données pour l'uranium ont été ajustés et testées sur plusieurs isotopes. Pour les autres éléments, on utilisera donc les distributions de produits de photofission calculées par HMS-ALICE.

3.3 Bibliothèque d'activation : spectres d'émission de neutrons retardés

À partir des distributions de produits de photofission de la bibliothèque calculées soit avec ABLA soit avec HMS-ALICE, il est possible de déterminer les spectres en temps d'émission de neutrons retardés à l'aide du code décrit à la section 2.3 (p. 33). Pour chacune des distributions de la bibliothèque, nous avons ainsi obtenu le spectre sous forme de six groupes.

Cependant, comme il a été montré précédemment, les spectres dépendent fortement du modèle utilisé pour calculer les produits de fission. Seule la partie riche en neutrons des distributions est utilisée. De plus les données manquent pour certains précurseurs. Il est donc très difficile d'obtenir des résultats fiables.

L'idéal serait de faire une mesure systématique des spectres de neutrons retardés pour toutes les distributions de la bibliothèque. Les premières études en vue de cette série d'expérience sont présentées dans la deuxième partie de cette thèse.

3.4 Applications de la bibliothèque d'activation photo-nucléaire

Nous avons présenté la construction de la première bibliothèque d'activation photo-nucléaire. Cette bibliothèque, dans une version partielle ne contenant pas les produits de photofission, a été incluse dans CINDER'90 (voir section 2.2.2 (p. 31)) afin d'effectuer des calculs d'activation. Les premières applications de la bibliothèque sont présentées ici. La bibliothèque a été utilisée pour calculer l'activation des bétons lors du démantèlement de l'accélérateur LURE à Orsay et pour le calcul de la transmutation du césium-137 et du strontium-90.

3.4.1 Étude de l'activation du béton lors du démantèlement du LURE

Lors du démantèlement d'une installation nucléaire, il est nécessaire de déterminer la quantité de radioactivité ajoutée dans toute l'installation afin de classer les déchets. Comme il est impossible de mesurer la radioactivité en chaque point de l'installation, des calculs sont nécessaires.

C'est ce travail qui nous a été demandé lors de l'étude du démantèlement de l'accélérateur LURE. Dans la suite de cette section, nous présenterons le LURE et la méthode utilisée pour calculer la radioactivité ajoutée. Pour finir nous comparerons nos résultats à des prélèvements effectués dans l'enceinte du LURE.

Présentation du LURE

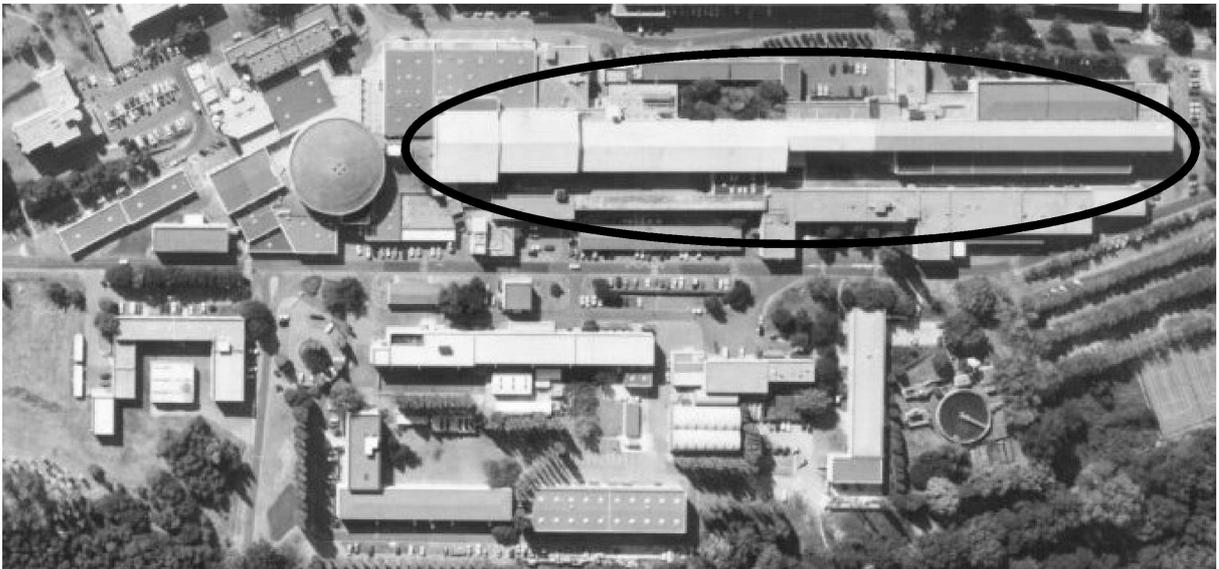


FIG. 3.26 – Vue d'avion du LURE. Les bâtiments entourés sont ceux de l'accélérateur.

Le LURE ou Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Électromagnétique est une installation qui produisait par rayonnement synchrotron des photons d'énergie allant de l'infrarouge à 50 keV. Le rayonnement synchrotron était obtenu grâce aux positrons contenus dans les anneaux de stockage. Les positrons étaient produits par conversion d'un faisceau d'électrons d'énergie 1 GeV. Les calculs d'activation ont été effectués pour les bâtiments contenant l'accélérateur linéaire d'électron et la cible de conversion. Les bâtiments concernés sont entourés sur la figure 3.26.

Principe du calcul d'activation

La démarche adoptée pour le calcul d'activation est présentée sur la figure 3.27. Tout d'abord un calcul de flux de neutrons et de photons est effectué avec MCNPX. On utilise

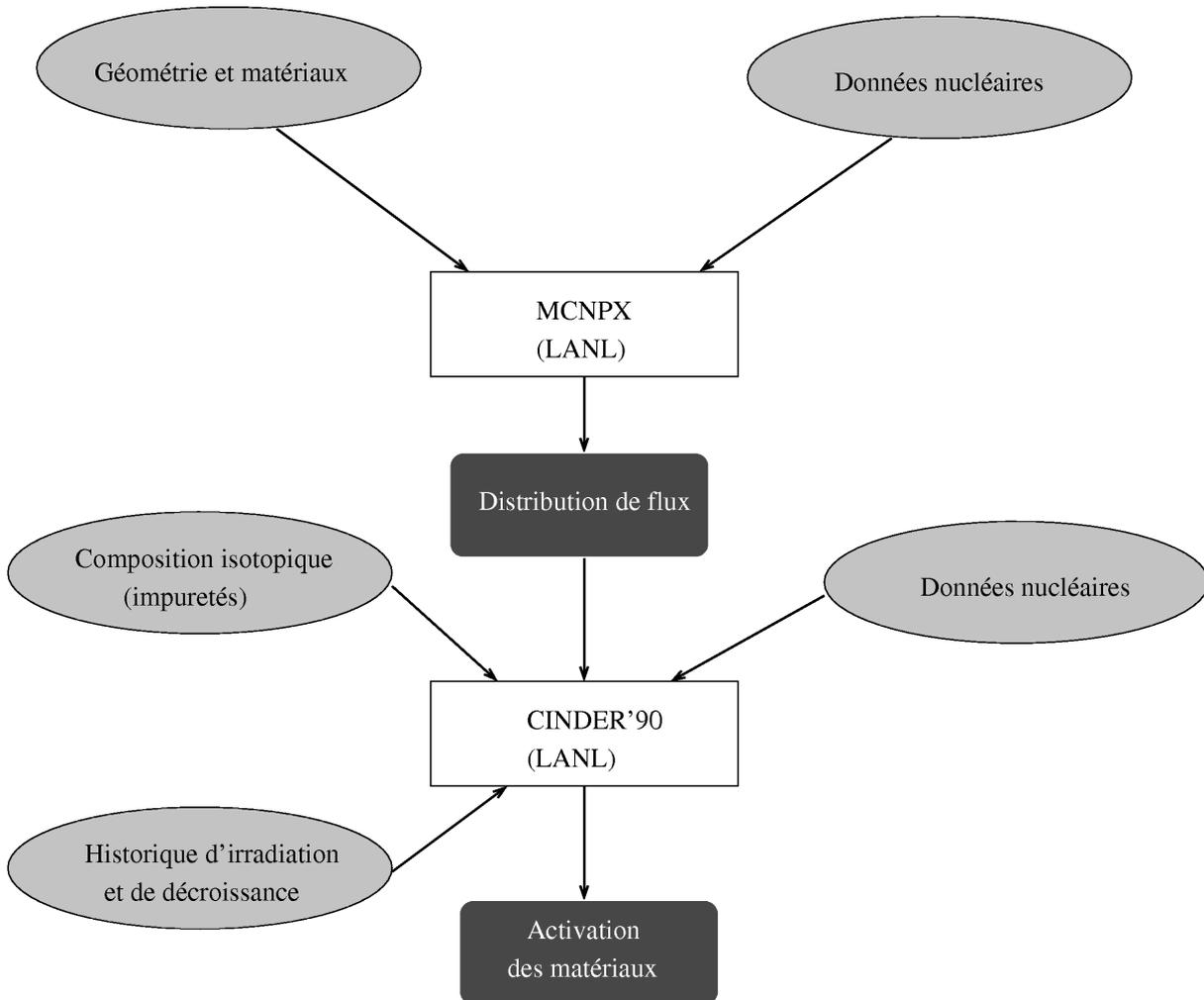


FIG. 3.27 – Schéma du calcul d'activation

pour cela une description de la géométrie en trois dimensions de l'ensemble du bâtiment contenant l'accélérateur. La composition des matériaux est décrite au pourcent près.

Une fois que le flux est connu dans chaque partie du bâtiment, on calcule l'activation qu'il induit grâce à CINDER'90. Ce code a déjà été testé pour l'activation neutronique dans le cadre du démantèlement de la cible de spallation du LANSCE (Los Alamos Neutron Science Center) à Los Alamos [Bru93]. Lors de ce test, les calculs surestimaient les mesures d'un facteur 2. Il s'agit là d'un très bon résultat pour ce genre d'exercice.

Dans le cas du LURE, les données nucléaires proviennent de la bibliothèque d'activation photonucléaire qui est présentée dans ce chapitre. Le code CINDER'90 a été modifié par Bill Wilson, son auteur, afin de pouvoir utiliser cette dernière. L'historique d'irradiation a pu être déterminée à partir des compte-rendus des expériences qui se sont déroulées sur le site. L'énergie des électrons utilisée lors des différentes expériences n'est par contre pas disponible. Nous avons donc choisi l'hypothèse la plus pénalisante, c'est à dire que nous avons considéré que tous les tirs ont été effectués à l'énergie maximale du faisceau, soit 1 GeV. Pour le calcul de l'activation, il est nécessaire de connaître la composition des matériaux à la centaine de ppm près. En effet, les impuretés des matériaux peuvent contribuer en grande partie à leur activation, alors que les composants principaux ne sont pas activés. Pour cela une analyse détaillée de la composition des matériaux a été effectuée par activation neutronique.

CINDER'90 ne calcule l'activation que jusqu'à 25 MeV, ceci n'est pas trop gênant car l'activation est produite par des photons ayant une énergie dans la zone de GDR et par des neutrons de basse énergie.

Résultats

Des carottes de béton ont été prélevées à proximité de la cible de conversion [Tho04]. La validation des calculs d'activation a été effectuée grâce à la comparaison des résultats des calculs avec des mesures d'activation sur ces carottes. Leur emplacement est présenté sur la figure 3.28. La carotte 1 a été prélevée à 80 cm par rapport au sol, la carotte 2 à 18.5 cm et la carotte 3 à 102 cm.

Les carottes 2 et 3 permettent d'évaluer les variations d'activation en fonction de l'épaisseur du béton, tandis que la carotte 1 permet de tester l'activation selon l'axe du faisceau.

L'activité dans les bétons prédite par CINDER'90 est représentée sur la figure 3.29. On peut voir que la zone autour de la cible de conversion est la plus activée comme on pouvait s'y attendre. Les carottes numéro 1 et 2 sont situées dans des zones fortement activées. On compare les mesures d'activation des différentes carottes aux résultats des calculs.

Parmi les noyaux qui participent le plus à l'activation, seul le cobalt-60 peut être produit par réaction photonucléaire. Il correspond à environ 13% de l'activité totale. On compare son activité calculée à celle mesurée par tranche de 5 cm dans les différentes carottes dans le tableau 3.12.

Les carottes numéro 1 et 2 sont bien les plus activées, comme prédit par le calcul. Le calcul surestime toujours les mesures d'un facteur au moins égal à 2.5. On retrouve les mêmes écarts pour l'activation induite par capture de neutron (^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{134}Cs).

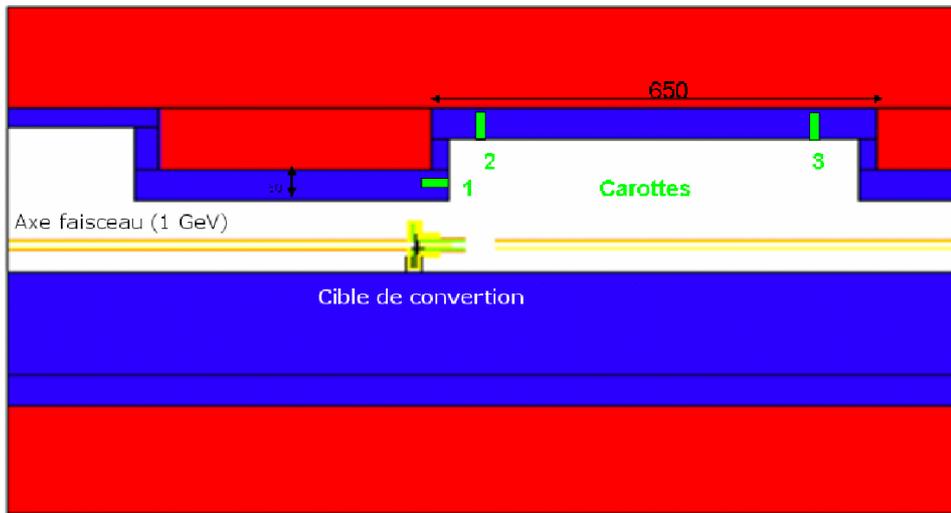


FIG. 3.28 – Schéma de la zone du convertisseur avec l'emplacement des carottes en vert (coupe horizontale)

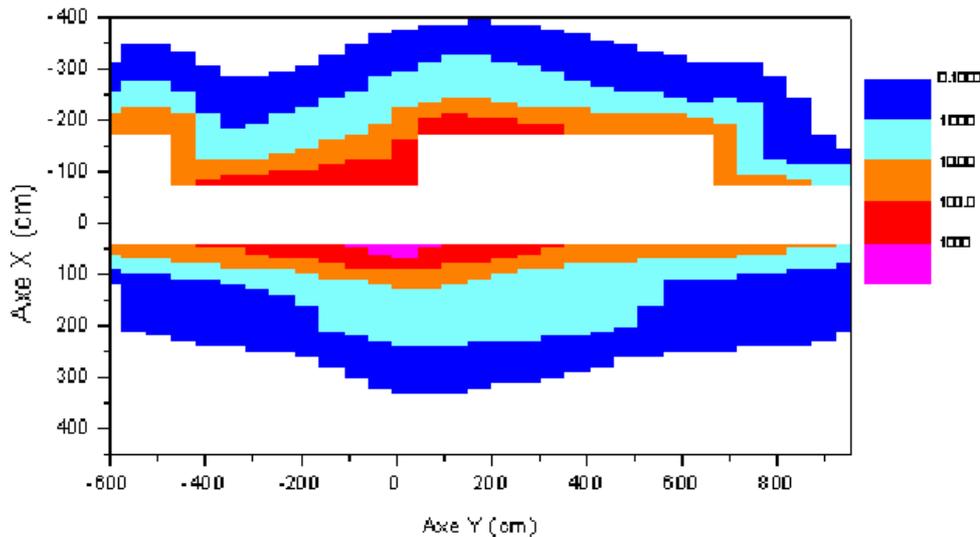


FIG. 3.29 – Activation en Bq/g de la zone convertisseur

L'écart est d'autant plus grand que les activités mesurées sont faibles. Il est normal que le calcul surestime les mesures puisqu'en cas de doute l'hypothèse la plus pénalisante était choisie.

Lors de ces études, l'écart maximal acceptable était un écart d'un facteur 10. Les résultats obtenus pour les carottes sont suffisamment bons pour étendre l'étude à l'ensemble du bâtiment et mener à bien l'étude déchet.

Carotte	Activité (Bq/g)	Numéro de tranche					
		1	2	3	4	5	6
1	Calcul	0.557	0.651	0.706	0.733	0.739	0.735
	Mesure	0.129	0.195	0.228	0.302	0.270	0.248
	Calcul/Mesure	4.3	3.3	3.1	2.43	2.74	3.0
2	Calcul	0.467	0.450	0.392	0.318	0.246	0.194
	Mesure	0.136	0.177	0.122	0.115	0.071	0.043
	Calcul/Mesure	3.4	2.5	3.2	2.8	3.5	4.5
3	Calcul	0.146	0.126	0.111	0.092	0.070	0.051
	Mesure	0.040	0.035	0.027	0.020	0.007	<0.005
	Calcul/Mesure	3.7	3.6	4.0	4.7	9.5	-

TAB. 3.12 – Comparaison des activités calculées et mesurées du cobalt-60 dans les tranches des différentes carottes

Ces résultats ont fait l'objet d'un rapport interne [Com05]. Ils seront utilisés pour valider l'étude déchet (caractérisation des déchets et zonage avant démantèlement) menée par la cellule de démantèlement.

3.4.2 Étude de la transmutation du strontium-90 et du césium-137

Nous avons comparé les résultats obtenus pour le calcul de la transmutation du strontium-90 et du césium-137 avec CINDER'90 aux résultats obtenus par les calculs de Matsumoto [Mat88]. Lors des calculs, nous avons choisi de reproduire les mêmes conditions d'irradiation et de décroissance que Matsumoto. Nous avons donc utilisé un flux de 10^{19} $\gamma/(\text{cm}^2.\text{s})$ avec une distribution en énergie constante entre 10 et 20 MeV. Un échantillon pur de strontium-90 (ou de césium-137) est irradié pendant 0.2 an puis décroît pendant 8 ans. Les résultats, présentés dans les tableaux 3.13 et 3.14, sont les compositions isotopiques des échantillons après les 8 ans de décroissance.

La principale différence est liée au fait que Matsumoto n'a pris en compte que les réactions (γ, n) lors de ses calculs alors que CINDER'90 prend en compte toutes les réactions photonucléaires et en particulier les réactions $(\gamma, 2n)$ qui ne sont pas négligeables dans cette étude. Les sections efficaces utilisées par Matsumoto sont issues de l'atlas de Dietrich [Die88]. Certains noyaux produits ne sont pas présents dans cet atlas, la section efficace choisie est alors la moyenne des sections efficaces des noyaux voisins. Nous avons par contre utilisé les valeurs de la bibliothèque d'activation photonucléaire provenant de l'évaluation de l'IAEA ou des calculs à l'aide de HMS-ALICE.

En ne tenant compte que des réactions (γ, n) , les résultats de CINDER'90 sont du même ordre de grandeur que ceux de Matsumoto. Les écarts qui restent sont dus aux différences sur les sections efficaces. Il n'y a pas de données pour le strontium-90 dans l'atlas de Dietrich. Seul le strontium naturel est présent. Dans ce cas, la valeur maximale de la section efficace (γ, n) vaut 210 millibarns contre 145 dans la bibliothèque d'activa-

Noyau		Calcul [Mat88]	Calcul CINDER'90 sans réaction ($\gamma, 2n$)	Calcul CINDER'90
Sr	90	$5.18 \cdot 10^{-3}$	$1.05 \cdot 10^{-2}$	$2.12 \cdot 10^{-3}$
	88	$9.22 \cdot 10^{-2}$	$2.50 \cdot 10^{-2}$	$1.30 \cdot 10^{-2}$
	87	$1.38 \cdot 10^{-1}$	$7.95 \cdot 10^{-2}$	$3.73 \cdot 10^{-2}$
	86	$1.70 \cdot 10^{-1}$	$6.17 \cdot 10^{-2}$	$5.11 \cdot 10^{-2}$
	84	$1.29 \cdot 10^{-1}$	$9.66 \cdot 10^{-2}$	$6.84 \cdot 10^{-2}$
Y	90	$1.35 \cdot 10^{-6}$	$2.74 \cdot 10^{-6}$	$5.51 \cdot 10^{-7}$
	89	$4.07 \cdot 10^{-2}$	$2.32 \cdot 10^{-2}$	$8.34 \cdot 10^{-3}$
Zr	90	$1.19 \cdot 10^{-3}$	$2.28 \cdot 10^{-3}$	$4.60 \cdot 10^{-4}$
Rb	85	$1.73 \cdot 10^{-1}$	$1.38 \cdot 10^{-1}$	$1.22 \cdot 10^{-1}$
Kr	84	$1.49 \cdot 10^{-2}$	$2.62 \cdot 10^{-2}$	$5.56 \cdot 10^{-2}$
	83	$1.11 \cdot 10^{-1}$	$1.67 \cdot 10^{-1}$	$1.64 \cdot 10^{-1}$
	82	$6.51 \cdot 10^{-2}$	$1.39 \cdot 10^{-1}$	$1.55 \cdot 10^{-1}$
	81	$3.38 \cdot 10^{-2}$	$9.05 \cdot 10^{-2}$	$1.15 \cdot 10^{-1}$
	80	$1.52 \cdot 10^{-2}$	$5.97 \cdot 10^{-2}$	$8.14 \cdot 10^{-2}$

TAB. 3.13 – Comparaison de calculs de transmutation dans le cas du strontium-90 dans un flux de photons (voir le texte pour les détails)

Noyau		Calcul [Mat88]	Calcul CINDER'90 sans réaction ($\gamma, 2n$)	Calcul CINDER'90
Cs	137	$2.16 \cdot 10^{-4}$	$9.83 \cdot 10^{-5}$	$1.49 \cdot 10^{-5}$
	135	$3.39 \cdot 10^{-3}$	$7.61 \cdot 10^{-4}$	$1.59 \cdot 10^{-4}$
	134	$7.55 \cdot 10^{-4}$	$2.65 \cdot 10^{-4}$	$7.29 \cdot 10^{-5}$
	133	$3.76 \cdot 10^{-2}$	$1.42 \cdot 10^{-2}$	$2.56 \cdot 10^{-3}$
Ba	137	$4.47 \cdot 10^{-5}$	$2.04 \cdot 10^{-5}$	$3.11 \cdot 10^{-6}$
	136	$1.89 \cdot 10^{-3}$	$9.40 \cdot 10^{-4}$	$1.97 \cdot 10^{-4}$
	135	$4.52 \cdot 10^{-3}$	$1.72 \cdot 10^{-3}$	$6.05 \cdot 10^{-4}$
	134	$2.15 \cdot 10^{-2}$	$6.30 \cdot 10^{-3}$	$2.93 \cdot 10^{-3}$
	133	$9.36 \cdot 10^{-3}$	$4.37 \cdot 10^{-3}$	$2.56 \cdot 10^{-3}$
	132	$3.18 \cdot 10^{-2}$	$1.42 \cdot 10^{-2}$	$8.39 \cdot 10^{-2}$
	130	$3.05 \cdot 10^{-2}$	$1.88 \cdot 10^{-2}$	$1.24 \cdot 10^{-2}$
Xe	132	$4.84 \cdot 10^{-2}$	$2.43 \cdot 10^{-2}$	$5.85 \cdot 10^{-3}$
	131	$1.14 \cdot 10^{-1}$	$6.52 \cdot 10^{-2}$	$2.78 \cdot 10^{-2}$
	130	$1.06 \cdot 10^{-1}$	$7.76 \cdot 10^{-2}$	$3.31 \cdot 10^{-2}$
	129	$1.44 \cdot 10^{-1}$	$1.17 \cdot 10^{-1}$	$6.48 \cdot 10^{-2}$
	128	$1.32 \cdot 10^{-1}$	$1.26 \cdot 10^{-1}$	$8.53 \cdot 10^{-2}$
	126	$7.51 \cdot 10^{-2}$	$9.48 \cdot 10^{-2}$	$1.10 \cdot 10^{-1}$
I	127	$1.08 \cdot 10^{-1}$	$1.17 \cdot 10^{-1}$	$9.63 \cdot 10^{-2}$

TAB. 3.14 – Comparaison de calculs de transmutation dans le cas du césium-137 dans un flux de photons (voir le texte pour les détails)

tion photonucléaire. Ceci explique la différence observée au niveau de la disparition du strontium-90. Cet écart se propage sur toute la chaîne de transmutation. Les écarts observés pour le césium-137 ont la même origine. Nos résultats sont toutefois cohérents avec ceux de Matsumoto.

Ces deux exemples d'applications de la bibliothèque d'activation photonucléaire montrent quelques domaines d'utilisation possible. Sa précision est suffisante pour le calcul d'activation dans le cadre du démantèlement. D'autres études restent cependant nécessaires pour la valider entièrement, plus particulièrement pour les distributions des produits de photofission.

3.5 Conclusion

La bibliothèque d'activation photonucléaire a été complétée selon le schéma présenté sur la figure 3.30. Elle contient tout d'abord les sections efficaces d'activation pour plus de 600 noyaux. Les sections efficaces proviennent de trois sources différentes : la bibliothèque de sections efficaces de l'IAEA, les calculs de HMS-ALICE et les évaluations de GNASH. Ces calculs ont été comparés aux évaluations de l'IAEA. Les résultats sont bons pour les noyaux lourds, moins bons pour les noyaux légers.

Elle est ensuite complétée par les distributions de produits de photofission pour 30 actinides obtenues avec trois spectres de Bremsstrahlung différents (12, 15 et 25 MeV d'énergie maximale). Ces distributions ont été calculées à l'aide de HMS-ALICE et de ABLA dans le cas des isotopes de l'uranium.

La bibliothèque a été finalement complétée par les spectres en temps de neutrons retardés correspondant à chacune des distributions de produits de photofission disponible dans la bibliothèque. Comme on a pu le voir, avoir de bons résultats pour les spectres d'émission de neutrons retardés demande une précision plus grande sur les distributions des produits de fission et sur les données des précurseurs à vie courte. Le plus sûr pour avoir les spectres pour les noyaux les plus importants, est donc de les mesurer.

Une version partielle de cette bibliothèque, sans les distributions de produits de photofission, a déjà permis le calcul de l'activation des bétons dans le cadre du démantèlement du LURE ainsi que quelques études de transmutation dans un flux de photons. La création de la bibliothèque d'activation photonucléaire a ouvert la porte à de nombreuses applications dans le domaine du démantèlement et de la transmutation, entre autres. Certaines ont permis de tester partiellement la validité de la bibliothèque.

Les premiers tests montrent que sur des cas bien précis, par exemple le démantèlement, la précision de la bibliothèque est suffisante. Un couplage entre MCNPX et CINDER'90 est actuellement en cours de développement à Los Alamos afin de faciliter les calculs d'évolution. L'amélioration des résultats passe par des valeurs plus précises sur les sections efficaces et les distributions des produits de photofission.

De nombreux autres tests sont nécessaires pour valider la bibliothèque. Cette bibliothèque est une première étape pour l'étude des phénomènes photonucléaires qui deviennent prépondérants avec le développement d'accélérateurs d'électrons toujours plus puissants.

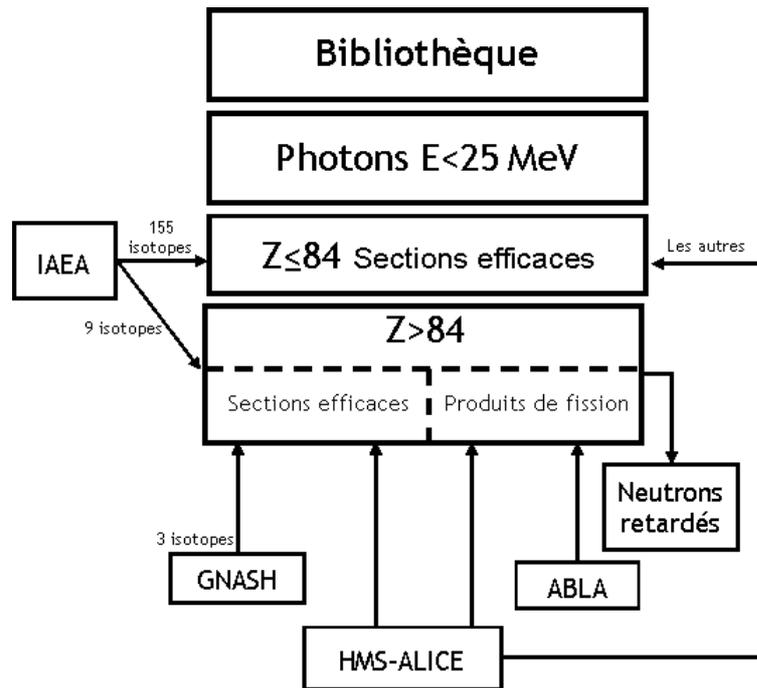


FIG. 3.30 – Schéma de la création de la bibliothèque d'activation photonucléaire

La mesure de neutrons retardés issus de photofission pourrait constituer un test partiel de la bibliothèque. C'est une des raisons pour lesquelles nous avons décidé de lancer une campagne de mesure des spectres de neutrons retardés issus de photofission auprès de l'accélérateur ELSA à Bruyères-le-Châtel. Cette campagne de mesure est détaillée dans la partie suivante.

De telles mesures sont en outre intéressantes pour le développement de nouvelles applications utilisant les neutrons retardés issus de la photofission comme la détection de matériaux nucléaires ou encore la caractérisation des déchets nucléaires. D'un point de vue plus fondamental, il est possible en étudiant ces spectres de connaître le taux de production de certains précurseurs. Ceci permettrait donc d'étudier la partie riche en neutrons des distributions de produits de photofission.

Deuxième partie
Mesure de spectres d'émission de
neutrons retardés

Introduction à la mesure de spectres de neutrons retardés

Parmi les applications possibles des neutrons retardés, le contrôle non-destructif de colis des déchets est un enjeu majeur pour la gestion des déchets radioactifs. Le développement d'une telle méthode à l'échelle industrielle permettrait non seulement de contrôler les colis, mais aussi de déterminer le contenu de colis au sujet desquels aucun renseignement n'est disponible.

L'expérience SIMPHONIE [Lyo00, Jal01] a démontré la faisabilité de la détection d'actinides dans des colis de déchets grâce à des irradiations dans des flux de neutrons et de photons. Plus précisément, il a même été démontré [Li04] qu'il est expérimentalement possible de séparer les contributions de l'uranium-235 et du plutonium-239 dans le cas d'une irradiation dans un flux de neutrons thermiques. D'autres études sur ce sujet ont été lancées, en particulier à Saclay, en photofission, auprès de l'accélérateur d'électrons SAPHIR. Les neutrons retardés peuvent également être utilisés pour contrôler le trafic de matière nucléaire et lutter contre la prolifération [Jon00, Cha03a, Rid04].

De nombreuses mesures de spectres d'émission de neutrons retardés ont été faites en fission induite par neutron [Kee57a, Kee65] à cause de leur rôle dans le pilotage des réacteurs. Les données disponibles pour les neutrons retardés issus de la fission induite par neutron ont été regroupées par Waldo [Wal81] et des spectres d'émission pour différents actinides sont représentés sur la figure 1. On peut constater que les spectres d'émission sont différents pour chaque actinide.

Traditionnellement, ces spectres sont représentés par la somme de six exponentielles, chaque exponentielle représentant ce que l'on appelle un groupe de neutrons retardés. C'est la connaissance des paramètres définissant ces exponentielles qui peut permettre l'identification des actinides.

Dans le cas de la caractérisation des colis de déchets, les photons sont plus avantageux que les neutrons pour de nombreuses raisons :

- Ils pénètrent plus profondément à l'intérieur des colis.
- Les accélérateurs d'électrons sont moins chers, plus stables et peuvent fonctionner à une intensité plus grande que les accélérateur de protons.
- L'activation induite par l'utilisation de photons est plus faible que celle qui serait induite dans le cas de l'utilisation de neutrons. Ceci réduit encore le coût au niveau du démantèlement.

Malheureusement les spectres d'émission de neutrons retardés issus de photofission ne sont pas aussi bien connus que dans le cas de la fission induite par neutron. Seuls les noyaux les

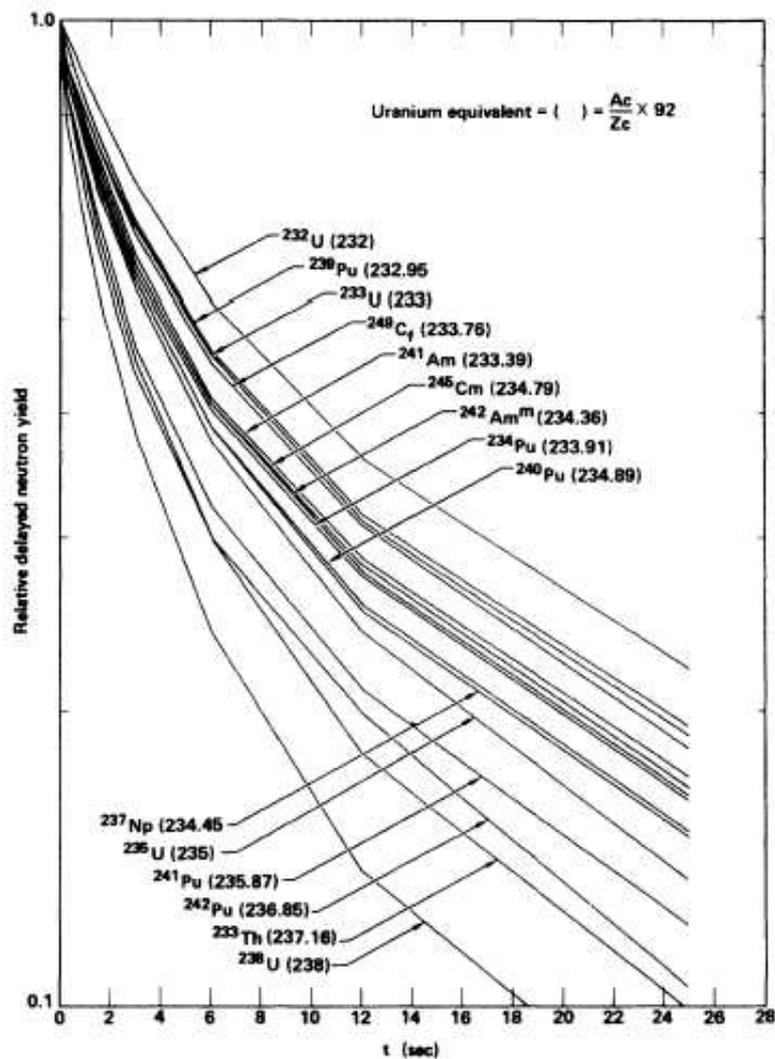


FIG. 1 – Spectre d'émission de neutrons retardés pour différents actinides suite à la fission induite par neutron

plus courants ont été étudiés (uranium-235, uranium-238, plutonium-239, thorium-232). Le plus souvent, la mesure porte uniquement sur le nombre de neutrons retardés émis par fission ($\bar{\nu}_d$). Par exemple, pour l'uranium-238, il n'existe qu'une seule mesure absolue du spectre d'émission en six groupes. Il s'agit de la mesure de Nikotin [Nik65] effectuée avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV. La contribution relative de chaque groupe a été mesurée par Kull [Kul70] avec des faisceaux de Bremsstrahlung d'énergie maximale 8 et 10 MeV. Une recherche bibliographique a montré que pour les autres noyaux, les données, mesurées pendant les années 1960-1970, sont tout aussi rares. Sans ces données, il est impossible d'identifier les actinides à partir de spectres de neutrons retardés issus de photofission.

Il existe deux moyens de pallier à ce problème soit par le calcul théorique [Bra89] soit par la mesure des spectres nécessaires. *A priori*, il est possible de calculer les spectres d'émission des neutrons retardés à partir des distributions des produits de fission, des temps de vie et des taux d'embranchement des précurseurs. Cependant, comme nous avons pu le constater à la section 3.2 lors du calcul des distributions de produits de photofission pour la bibliothèque d'activation, les premiers résultats sont encourageants mais ne reproduisent pas de façon satisfaisante les données. Les distributions isotopiques de produits de photofission pourraient être utilisées pour améliorer les calculs. Mais ces distributions sont rares et le plus souvent incomplètes. Il est donc nécessaire de faire des mesures de spectres en temps de neutrons retardés.

Une campagne de mesures a donc été lancée auprès de l'accélérateur d'électrons ELSA à Bruyères-le-Châtel (CEA/DAM). Avant de commencer cette campagne, le système de détection a été défini, optimisé et étalonné (chapitre 4). Une fois le détecteur bien connu, le spectre d'émission de neutrons retardés issus de la fission de l'uranium-238 induite par neutron a été mesuré auprès de l'accélérateur de protons 4 MV à Bruyères-le-Châtel (chapitre 5). Cette expérience nous a permis de tester la faisabilité de la mesure du $\bar{\nu}_d$, du spectre d'émission de neutrons retardés et de développer la méthode d'analyse. Nous avons choisi de représenter les spectres sous le format traditionnel en six groupes. Nos résultats sont comparables à ceux de Keepin [Kee57a]. En utilisant différentes durées d'irradiation, nous avons mis en valeur des groupes difficiles à mesurer et faciliter l'extraction de leurs paramètres.

Le spectre de neutrons retardés issus de photofission de l'uranium-238 a ensuite été mesuré à ELSA ainsi que le $\bar{\nu}_d$ (chapitre 6). Pour ces mesures, un faisceau de Bremsstrahlung avec une énergie maximale de 15 MeV a été utilisé. Nos résultats sont comparés à ceux de Nikotin [Nik65]. Contrairement à Nikotin, trois séries de mesures avec des durées d'irradiation différentes ont été effectuées afin de mettre en valeur certains groupes par rapport à d'autres.

Chapitre 4

La détection des neutrons retardés

Le détecteur et le système d'acquisition décrits dans ce chapitre sont ceux utilisés lors des différentes mesures de spectres d'émission de neutrons retardés. Pour réaliser les mesures dans un temps raisonnable (quelques jours), il faut une efficacité de détection intrinsèque de quelques pourcents. Dans le cas d'un faisceau de neutrons, l'énergie doit être supérieure au seuil de la fission et le flux de l'ordre de 10^6 n/(cm².s) sur la cible. Dans le cas d'un flux de photons, le seuil de photofission vaut environ 6 MeV et le maximum est situé autour de 15 MeV (voir section 1.2.3 (p. 17)). Le flux de photons doit être de l'ordre de 10^9 γ /(cm².s) sur la cible.

4.1 Description du détecteur et du système d'acquisition

Nous souhaitons mesurer les spectres d'émission de neutrons retardés. Pour ce faire, une cible fissile est irradiée et tout de suite après l'arrêt de l'irradiation, les neutrons retardés émis par la cible sont détectés. Le détecteur utilisé doit tout d'abord être insensible aux photons à cause de la décroissance γ des produits de fission créés lors de l'irradiation. Ensuite l'efficacité doit être grande car le flux de neutrons retardés est faible. Le temps entre l'arrêt du faisceau et le début du comptage doit en outre être le plus court possible. Comme l'émission des neutrons retardés est décorrélée en temps de la fission, il est impossible de faire des mesures de temps de vol. Un détecteur avec une réponse lente – de l'ordre de la dizaine de millisecondes – peut donc être utilisé car le précurseur ayant le temps de vie le plus court (81 ms) est l'indium-134. Pour pouvoir évaluer l'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie des neutrons incidents, il faudrait en connaître le spectre. Or nous avons vu section 1.4.3 que ces spectres sont mal connus. On ne peut donc pas corriger de manière fiable l'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie des neutrons incidents. L'efficacité du détecteur doit donc être indépendante de l'énergie des neutrons retardés.

Compte tenu de toutes ces contraintes, notre choix s'est logiquement porté sur un compteur proportionnel à hélium-3. Pour augmenter son efficacité, il est entouré de polyéthylène (CH₂). L'ensemble formé du compteur proportionnel et du polyéthylène est

appelé détecteur hélium-3. Les neutrons sont détectés par le biais de la réaction suivante :



La section efficace de cette réaction est inversement proportionnelle à la vitesse des neutrons (5500 barns pour des neutrons thermiques et 1.15 barn à 200 keV).

Nous avons choisi un tube hélium-3 48NH30 construit par Eurisys Mesure. Il possède une grande sensibilité aux flux neutroniques et une grande robustesse mécanique ce qui lui permet de travailler dans des environnements sévères. Ce type de détecteur est utilisé en particulier pour la surveillance des réacteurs nucléaires.

Il est composé d'un tube d'un diamètre de 2.5 cm et d'une longueur active de 30 cm en acier inoxydable Fe-Cr-Ni (72-18-10) de 0.5 mm d'épaisseur (voir schéma figure 4.1). Il est rempli d'hélium-3 à une pression de 4 bars. Il fonctionne en régime proportionnel sous une tension de 950 V.

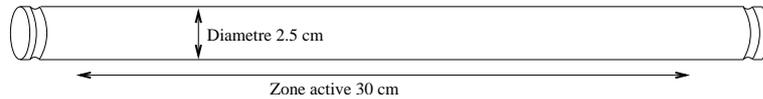


FIG. 4.1 – Schéma du tube d'hélium-3

Le signal de sortie du détecteur est amplifié par un pré-amplificateur DEXTRAY ACHN92. Ce pré-amplificateur est suivi d'un module électronique qui met en forme et amplifie le signal. La sortie logique du module est connectée à une carte d'acquisition.

La carte d'acquisition utilisée est une échelle de comptage MCS possédant 8192 canaux construite par ORTEC. La largeur d'un canal est réglable entre 2 μs et 10 s. L'acquisition peut être déclenchée par un signal externe. Il est possible d'accumuler plusieurs prises de mesures sur le même spectre.

4.2 Optimisation

Le polyéthylène qui entoure le tube hélium-3 ralentit les neutrons. Il augmente donc l'efficacité de détection et diminue l'influence de l'énergie des neutrons incidents. Le but de l'optimisation est de trouver un compromis entre une efficacité constante et la plus importante possible.

L'efficacité de détection est liée à l'épaisseur de polyéthylène qui entoure le tube hélium-3. Seule l'épaisseur de la face avant du détecteur est à optimiser. Plus les neutrons traversent de CH_2 avant d'entrer dans le tube hélium-3, plus ils sont ralentis et plus l'efficacité de détection est importante. Cependant plus l'épaisseur est importante, moins ils ont de chance d'entrer dans le tube. Ce dernier ayant un diamètre faible (2.5 cm), il faut que les neutrons ne soient pas trop déviés. Sur les autres faces, plus on a de polyéthylène, plus l'efficacité est grande car la probabilité de faire demi-tour et de réagir avec le gaz du détecteur augmente. Nous avons à notre disposition un bloc de polyéthylène de 10 cm de largeur, 20 cm de longueur et 37 cm de hauteur.

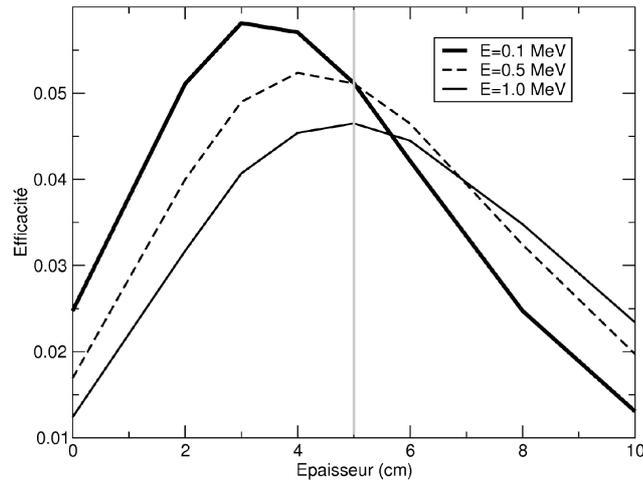


FIG. 4.2 – Efficacité du détecteur hélium-3 en fonction de l'énergie des neutrons incidents et de l'épaisseur de polyéthylène de la face avant

Les simulations MCNPX ont montré que la distance optimale entre le centre du tube et la face avant est 5 cm. Le graphique 4.2 montre que cette épaisseur est le meilleur compromis entre la plus grande efficacité possible et la plus stable en fonction de l'énergie. Le tube hélium-3 est placé au centre du bloc de polyéthylène dans un cylindre de diamètre 2.7 cm percé sur toute sa longueur. La valeur de l'efficacité intrinsèque est d'environ 5% pour des énergies entre 100 keV et 1 MeV.

Ces résultats sont comparés à des mesures expérimentales afin de valider les simulations dans la section suivante.

4.3 Mesure de l'efficacité du détecteur

Nous avons mesuré l'efficacité du détecteur à l'aide de sources de neutrons (américium-béryllium et californium-252) et de faisceaux de neutrons monoénergétiques. La plage en énergie ainsi couverte s'étend de 100 keV à 10 MeV ce qui couvre entièrement le domaine en énergie des neutrons retardés.

4.3.1 Efficacité globale et efficacité intrinsèque

L'efficacité globale d'un détecteur est la probabilité d'avoir un coup dans le détecteur pour une particule émise par la source. Dans le cas de notre expérience l'efficacité globale (E_g) du détecteur à hélium-3 est le nombre de coups détectés dans le tube d'hélium-3 par neutron émis par les sources d'américium-béryllium ou de californium ou bien par le faisceau de neutrons.

$$E_g = \frac{Nb_{He3}}{\phi} = \frac{Nb_{He3}}{Nb_{BF3} \varepsilon_{BF3}} \quad (4.2)$$

Nb_x nombre de coups dans le détecteur x , $x = He3$ ou $BF3$
 ε_{BF3} efficacité du détecteur $BF3$
 ϕ nombre de neutrons émis dans tout l'espace

Cette efficacité dépendant de l'angle solide du détecteur, nous lui préférons l'efficacité intrinsèque (ε) qui est l'efficacité précédente divisée par l'angle solide. L'efficacité intrinsèque ε est calculée par la formule (4.3) :

$$\varepsilon = \frac{E_g}{\Omega_{He3}} = \frac{Nb_{He3}}{Nb_{BF3} \varepsilon_{BF3} \Omega_{He3}} \quad (4.3)$$

où Ω_{He3} est l'angle solide du détecteur hélium-3.

4.3.2 Étalonnage à l'aide de sources de neutrons

Source d'américium-béryllium

La source de neutrons contient de l'américium mélangé à du béryllium. L'américium est un émetteur alpha qui, par réaction sur le béryllium-9, produit un neutron.



Le schéma des niveaux d'énergie de la réaction est présenté sur la figure 4.3. L'alpha est émis avec une énergie de 5.57 MeV (données ENDF-B VI) mais il est ralenti dans la source. Lors de l'interaction avec le béryllium-9, son énergie est alors comprise entre 0 et 5.57 MeV. Ceci explique la forme continue du spectre en énergie présenté sur la figure 4.4. Il s'agit du spectre préconisé par la norme internationale ISO 8529 : 1989. L'énergie moyenne des neutrons émis est de 4.4 MeV.

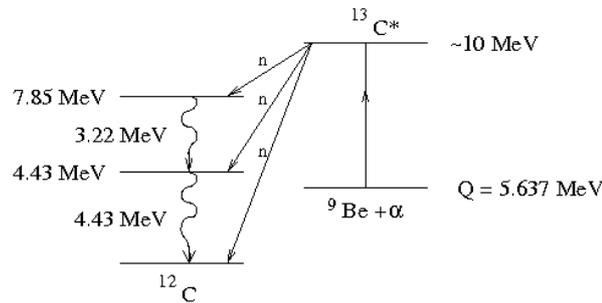


FIG. 4.3 – Niveaux d'énergie de la réaction $\alpha + {}^9\text{Be}$

L'activité de la source utilisée (28 300 Bq) permet d'effectuer des mesures à des distances allant jusqu'à 100 cm et de valider les simulations (voir tableau 4.1). L'erreur

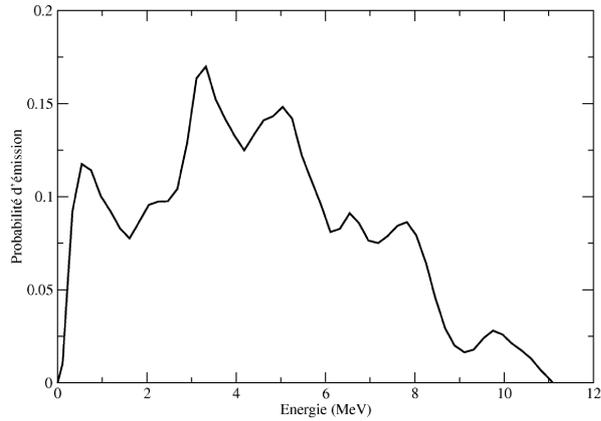


FIG. 4.4 – Spectre en énergie des neutrons émis par la source d'américium-béryllium

statistique sur les mesures et les simulations est de l'ordre de 2%. Par contre il est difficile d'estimer l'erreur systématique due, entre autres, à la position du détecteur par rapport à la source.

Distance (cm)	20	30	50	100
Efficacité intrinsèque mesurée (10^{-2} cp/n)	2.40	2.50	2.72	3.04
Efficacité intrinsèque simulée (10^{-2} cp/n)	2.51	2.59	2.65	2.87
Rapport S/M	1.05	1.04	0.97	0.94

TAB. 4.1 – Comparaison entre les simulations et les mesures de l'efficacité intrinsèque du détecteur pour la source d'américium-béryllium

L'écart entre les simulations et les mesures est pratiquement nul ce qui prouve que la simulation est fiable pour le spectre en énergie de l'américium-béryllium.

L'efficacité intrinsèque du détecteur devrait être constante, or les mesures et les simulations présentent des écarts supérieurs à 10%. Ces écarts sont peut-être dus à l'air entre la source de neutrons et le détecteur ou encore à la taille de la source qui n'est pas prise en compte lors du calcul de l'angle solide. L'efficacité intrinsèque sera donc prise égale à la moyenne de ces valeurs.

L'efficacité intrinsèque expérimentale du détecteur pour ce type de spectre en énergie vaut $0.0272 \text{ cp/n} \pm 12\%$. Les simulations donnent une efficacité intrinsèque de $0.0269 \text{ cp/n} \pm 7\%$. L'erreur sur les simulations, supérieure à l'erreur statistique, provient probablement du calcul de l'angle solide.

Source de californium-252

Le californium-252 fissionne spontanément et chaque fission s'accompagne en moyenne de 3.78 neutrons. L'énergie moyenne de ces neutrons est d'environ 2.2 MeV. Le spectre en énergie des neutrons présenté sur la figure 4.5 est celui disponible dans MCNPX [Wat02].

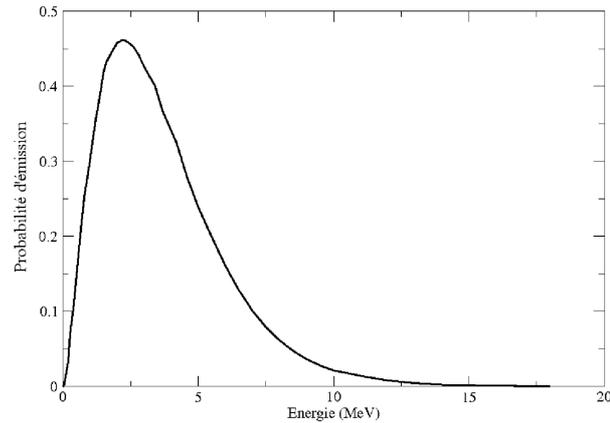


FIG. 4.5 – Spectre en énergie des neutrons émis par la source de californium-252

L'efficacité du détecteur a été mesurée en le plaçant à une distance variable de la source (voir tableau 4.2) comme avec la source d'américium-béryllium. La source de californium émettant moins de neutrons que la source précédente (3 875 n/s contre 28 300) nous n'avons pas effectué la mesure à 100 cm.

Distance (cm)	10	20	30	50
Efficacité intrinsèque mesurée (10^{-2} cp/n)	3.69	3.67	3.43	3.72
Efficacité intrinsèque simulée (10^{-2} cp/n)	3.68	3.58	3.38	3.50
Rapport S/M	1	0.97	0.99	0.94

TAB. 4.2 – Comparaison entre les simulations et les mesures de l'efficacité intrinsèque du détecteur pour la source de californium

Comme pour la source d'américium-béryllium, on constate que l'efficacité intrinsèque n'est pas constante. On prendra donc la valeur moyenne.

Un bon accord entre les simulations et les mesures est trouvé. Comme précédemment l'erreur statistique sur les mesures et les simulations est de l'ordre de 2%. Par contre il est difficile d'estimer l'erreur systématique liée à la position du détecteur par rapport à la source.

L'efficacité intrinsèque expérimentale pour ce spectre de neutrons vaut $0.0358 \text{ cp/n} \pm 4\%$, les simulations donnent $0.0353 \text{ cp/n} \pm 4\%$. Les faibles écarts entre la simulation et les mesures montrent que la simulation est fiable pour le domaine en énergie couvert par les neutrons de fission du californium.

Nous avons également testé l'influence de l'épaisseur de polyéthylène sur l'efficacité de détection. Si le polyéthylène est placé devant le détecteur, l'efficacité de celui-ci est fortement réduite. Elle diminue de 40% si on ajoute 10 cm de polyéthylène. Par contre si il est placé derrière, l'efficacité augmente légèrement : 4% pour 10 cm de polyéthylène. Ces mesures sont également en accord avec nos simulations.

4.3.3 Étalonnage avec un faisceau de neutrons

Grâce aux sources de neutrons, nous avons montré que nos simulations étaient en accord avec les mesures expérimentales. Les sources de neutrons utilisées couvrent cependant une gamme en énergie plus large que celle des neutrons retardés.

Pour mesurer précisément l'efficacité du détecteur sur la gamme en énergie des neutrons retardés, nous avons utilisé des faisceaux de neutrons monoénergétiques.

Aire expérimentale

La mesure de l'efficacité du détecteur s'est déroulée auprès de l'accélérateur 4 MV du CEA/DIF. En utilisant les réactions, proton sur lithium-7, proton sur tritium, deuton sur tritium et deuton sur deutérium, on peut produire des neutrons ayant une énergie entre 100 keV et 18 MeV.

La figure 4.6 présente la section efficace de production de neutrons en fonction du projectile, de la cible et de l'énergie des neutrons. Cette figure décrit aussi l'énergie du projectile en fonction de l'énergie du neutron. Sur les parties en pointillés, les neutrons émis ne sont plus monocinétiques.

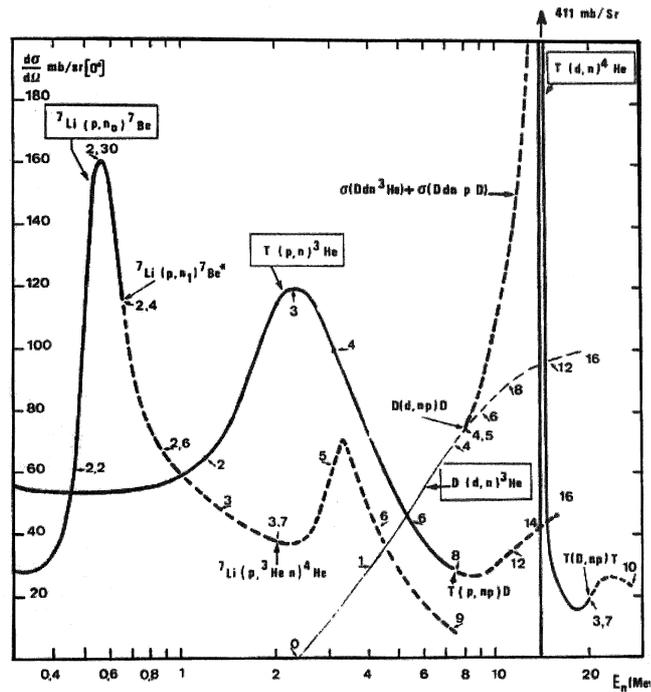
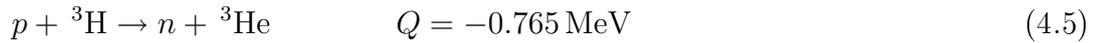


FIG. 4.6 – Sections efficaces de production de neutrons à partir d'un faisceau de protons ou de deutons [Lan04]

Nous souhaitons mesurer l'efficacité du détecteur entre 100 keV et 2 MeV pour couvrir la plage en énergie des neutrons retardés. Nous avons utilisé pour cela deux cibles différentes, une cible de tritium déposée sur un support en titane et une de lithium. Les neutrons sont produits par les réactions (4.5) et (4.6) :



Si l'angle couvert par le détecteur est suffisamment petit, les neutrons contenus dans cet angle solide sont quasiment monocinétiques. La cible de lithium est utilisée pour obtenir des neutrons ayant une énergie entre 100 keV et 700 keV, celle de tritium pour des neutrons ayant une énergie entre 600 keV et 2 MeV. En dessous de 600 keV, la réaction (4.6) est plus adaptée car la section efficace de production de neutrons est plus grande (voir figure 4.6).

Le flux de neutrons est contrôlé par un détecteur de référence contenant du BF_3 placé à 20° de la ligne faisceau. Un schéma de la zone d'expérience est présenté sur la figure 4.7. On peut ainsi voir le placement des détecteurs BF_3 et hélium-3 par rapport au faisceau.

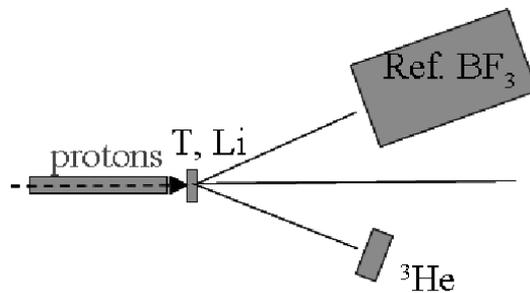


FIG. 4.7 – Schéma de la zone expérimentale au 4 MV

Comme l'angle solide de détection est réduit, le détecteur BF_3 ne voit que les neutrons émis à 20° . Ce détecteur est en outre placé dans un blindage très efficace qui le protège des neutrons de l'environnement. Son efficacité varie peu avec l'énergie des neutrons et elle est connue à 6% près.

Mesure de l'efficacité

Lors de l'étalonnage par le faisceau de neutrons, le détecteur hélium-3 est placé à 3 m symétriquement au détecteur BF_3 par rapport au faisceau (-20°). À cette distance, il n'est pas saturé par le flux de neutrons. Son centre est placé à la même hauteur que le faisceau. Une enveloppe d'un millimètre de cadmium a été rajoutée autour du polyéthylène afin de réduire le bruit de fond dû aux neutrons thermiques. Cette modification a été prise en compte dans la simulation MCNPX.

Les résultats de la simulation MCNPX sont en très bon accord avec les mesures (voir tableaux 4.3 et 4.4) sauf pour la mesure à 150 keV où les limites de fonctionnement de l'accélérateur sont atteintes. Cette énergie est l'énergie minimale que peut produire l'accélérateur, il est donc possible que la mesure de l'intensité soit peu fiable ou que l'énergie des neutrons ne soit pas aussi précise qu'à des énergies plus élevées. L'écart constaté à 1.2 MeV n'a pas pu être expliqué.

Énergie (MeV)	0.15	0.2	0.25	0.4	0.5	0.6
Efficacité intrinsèque mesurée (10^{-2} cp/n)	4.57	5.14	5.16	5.15	4.86	4.79
Efficacité intrinsèque simulée (10^{-2} cp/n)	4.89	5.09	5.21	5.11	5.10	5.07
Rapport S/M	1.07	0.99	1.01	0.99	1.05	1.05

TAB. 4.3 – Comparaison entre les simulations et les mesures de l’efficacité du détecteur pour différentes énergies de neutrons monoénergétiques produits avec la cible de lithium

Énergie (MeV)	0.5	0.6	0.7	0.8	1	1.2	1.4	1.6	1.8	2
Efficacité intrinsèque mesurée (10^{-2} cp/n)	5.08	5.19	5.09	4.97	4.90	4.95	4.70	4.43	4.29	4.10
Efficacité intrinsèque simulée (10^{-2} cp/n)	5.10	5.07	4.90	4.92	4.83	4.47	4.44	4.26	4.01	3.90
Rapport S/M	1.00	0.98	0.96	0.99	0.99	0.90	0.95	0.96	0.93	0.95

TAB. 4.4 – Comparaison entre les simulations et les mesures de l’efficacité du détecteur pour différentes énergies de neutrons monoénergétiques produits avec la cible de tritium

Entre 200 keV et 1 MeV, la valeur expérimentale de l’efficacité est quasiment constante. Au delà de 1 MeV, l’efficacité baisse. Ceci est normal puisque l’optimisation a été effectuée pour des neutrons ayant une énergie comprise entre 100 keV et 1 MeV. Deux mesures ont été effectuées pour les énergies 500 et 600 keV. Pour chacune des énergies, les mesures sont en accord.

4.4 Synthèse

La simulation du détecteur hélium-3 a permis de déterminer l’emplacement optimal du tube dans le bloc de polyéthylène. Il a donc pu être construit avec la meilleure configuration.

Le faisceau de neutrons a permis de mesurer l’efficacité entre 150 keV à 2 MeV. Toute la gamme d’énergie des neutrons retardés a ainsi été explorée. L’utilisation d’une source d’américium-béryllium, d’énergie moyenne 4.4 MeV, et d’une source de californium-252, d’énergie moyenne 2.2 MeV a permis d’étendre notre étude et de valider nos simulations.

Les points expérimentaux et les résultats de la simulation sont comparés sur la figure 4.8. Pour les sources d’américium-béryllium et de californium, le point est placé à la valeur moyenne de l’énergie des neutrons émis.

Entre 150 keV et 1 MeV l’efficacité simulée du détecteur est comprise entre 0.0475 et 0.0510 cp/n. L’efficacité intrinsèque sera considérée constante et égale à $0.05 \text{ cp/n} \pm 5\%$ sur tout le domaine en énergie des neutrons retardés. L’erreur de 5% est lié aux erreurs statistiques lors de nos mesures et permet un encadrement de tous les points expérimentaux entre 200 keV et 1 MeV. Cette efficacité correspond à la zone grisée de la figure 4.8.

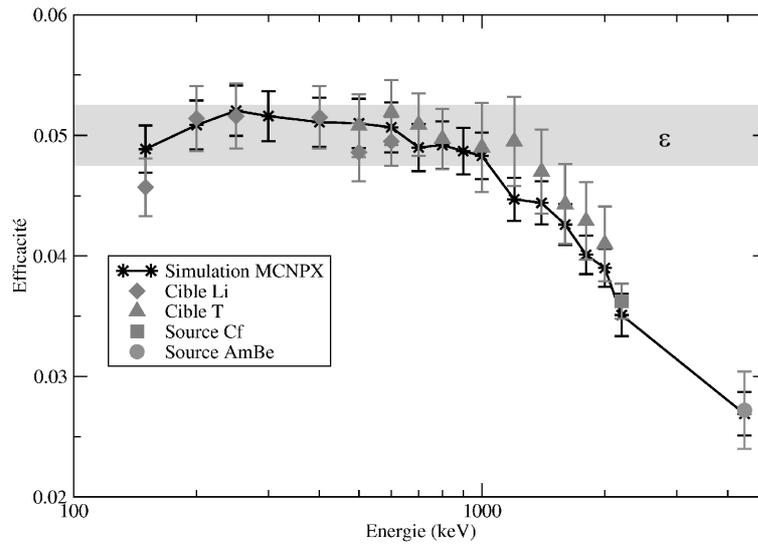


FIG. 4.8 – Comparaison entre les mesures et la simulation MCNPX de l'efficacité du détecteur hélium-3

L'erreur systématique du détecteur BF_3 n'est pas prise en compte car les simulations sont très proches des points expérimentaux.

Lors de prochaines mesures, un étalonnage avec les sources de neutrons sera suffisant pour vérifier la réponse du détecteur. Les simulations reproduisent bien la réponse du détecteur face à une source de neutrons et ceci sur un large domaine en énergie.

Chapitre 5

Faisabilité de la mesure de neutrons retardés auprès de l'accélérateur 4 MV

Un des objectifs de cette thèse est de mesurer les spectres d'émission de neutrons retardés issus de la photofission. Afin de valider le protocole expérimental et la méthode d'analyse, une mesure a été réalisée dans le cas de la fission induite par des neutrons de 2 MeV sur de l'uranium-238. Le spectre en temps et le nombre total de neutrons retardés ont été mesurés et comparés aux données expérimentales existantes.

Le dispositif et le protocole expérimental sont présentés aux sections 5.1 et 5.2. Le nombre de neutrons retardés émis par fission et les paramètres de la décomposition du spectre en temps en somme de six exponentielles sont respectivement présentés aux sections 5.3 et 5.4.

5.1 Dispositif expérimental

Pour cette expérience, nous n'avons disposé que d'un jour et demi de temps de faisceau. Le but de cette expérience n'est pas d'améliorer la précision des données déjà existantes mais de tester le dispositif expérimental et de vérifier la validité de la méthode d'analyse.

L'expérience de mesure s'est déroulée auprès de l'accélérateur 4 MV du CEA/DIF. Les neutrons retardés sont produits dans une cible d'uranium suite à la fission induite par des neutrons de 2 MeV. Ces neutrons sont produits par l'interaction des protons de l'accélérateur 4 MV sur une cible de titane tritiée et le flux primaire de neutrons est contrôlé par le détecteur de référence BF_3 décrit à la section 4.3.3 (p. 97).

La cible d'uranium appauvri sous forme métallique est un cylindre de 3 cm de rayon, de 3 cm de longueur et de masse 405.6 g. La proportion d'uranium-235 (0.3%) est considérée comme négligeable. Lors de l'expérience, la cible d'uranium est placée à 10 cm de la cible de production de neutrons. Elle est installée à un angle de -20° par rapport au faisceau de protons dans le plan de l'accélérateur. Le détecteur hélium-3 est placé à 10 cm de la cible d'uranium, sur le même axe. Une photo du dispositif expérimental est présentée sur la figure 5.1, avec au premier plan la cible de production de neutrons. L'emplacement de la cible d'uranium est indiqué par le point rouge, le détecteur hélium-3 est placé juste derrière et dans le fond on aperçoit le détecteur de référence BF_3 .



FIG. 5.1 – Dispositif expérimental auprès de l'accélérateur de 4 MeV

5.2 Protocole expérimental

5.2.1 Interruption du faisceau

Il est nécessaire de pouvoir interrompre le faisceau de protons en un temps très court pour déclencher correctement la mesure de neutrons retardés. L'interruption se fait à l'aide d'une cage de Faraday insérée dans le faisceau par un système électromécanique. Parmi les cages de Faraday présentes sur la ligne du faisceau, nous avons choisi la cage CF1. Située loin de la cible, elle permet de minimiser le bruit de fond. La durée de chute de la cage a été mesurée (voir figure 5.2). La cage est pilotée par un générateur d'impulsions qui permet de régler la durée d'irradiation et la fréquence de répétition des mesures.

Le début de l'acquisition est déclenché par le signal de descente. On remarque que le faisceau fonctionne encore à plein régime pendant environ 330 ms, décroît pendant 20 ms puis est finalement arrêté 350 ms après le signal. Après, seul le bruit de fond est détecté.

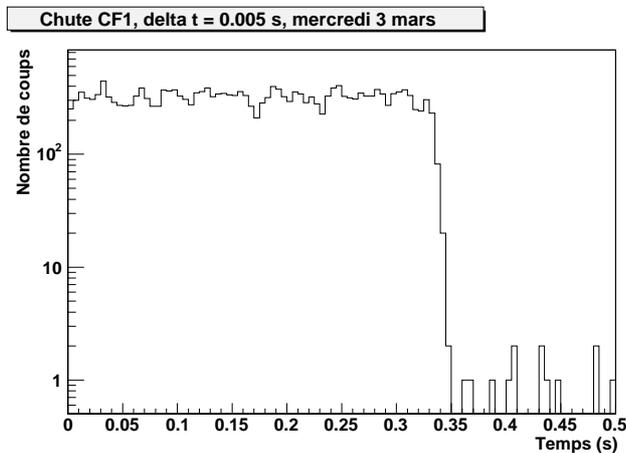


FIG. 5.2 – Mesure de la durée de la chute de CF1

Lors de la mesure, le début de l'acquisition est également déclenché par le signal de descente de CF1. Lors de l'analyse des spectres en temps, il faut supprimer les 350 premières millisecondes de mesure. Il est probable que la durée de la chute influe sur la production des précurseurs du groupe 6 car ils commencent à disparaître avant que le faisceau ne soit complètement coupé. Lors de prochaines expériences, nous pensons installer une déviation électrostatique afin d'améliorer la coupure du faisceau.

5.2.2 Prises de données

Toutes les mesures ont été effectuées avec un faisceau continu de neutrons monocinétiques de 2 MeV mais avec des temps d'irradiation différents. Comme on l'a vu à la section 1.4.2 p. 23), la contribution de chaque groupe dépend en effet de la durée d'irradiation. En jouant sur ces durées, il semble possible de mettre en valeur certains groupes par rapport à d'autres.

Lors de la première série de mesures, la cible a été irradiée pendant 125 s puis nous avons mesuré les neutrons retardés pendant 125 s avec un pas d'acquisition de 0.2 s. Pendant la deuxième série de mesures, l'irradiation a duré 20 s et l'acquisition 25 s avec un pas d'acquisition de 0.2 s. Lors de la dernière série de mesures, l'irradiation a duré 6.25 s et la mesure 6.25 s avec un pas d'acquisition de 0.01 s. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 5.1.

Temps d'irradiation	Temps de décroissance	Nombre de cycle	Pas d'acquisition
125 s	125 s	53	200 ms
20 s	25 s	79	200 ms
6.25 s	6.25 s	216	10 ms

TAB. 5.1 – Résumé des irradiations au 4 MV

Pour la série de mesures avec le temps d'irradiation le plus long, il aurait été préférable d'attendre que les précurseurs aient atteint l'équilibre, soit environ 300 s. Ceci correspond approximativement à cinq fois le temps de demi-vie du brome-87 qui est le précurseur ayant le temps de vie le plus long (55.6 s). Le manque de temps faisceau nous a cependant conduit à réduire le temps d'irradiation à 125 s.

5.2.3 Bruit de fond

Lors de l'arrêt du faisceau par la cage de Faraday, nous avons mesuré un bruit de fond qui était proportionnel à l'intensité du faisceau de protons. On peut penser que les neutrons du bruit de fond sont créés par réaction des protons sur la cage ou sur des matériaux de structure de l'accélérateur ayant un seuil de réaction faible.

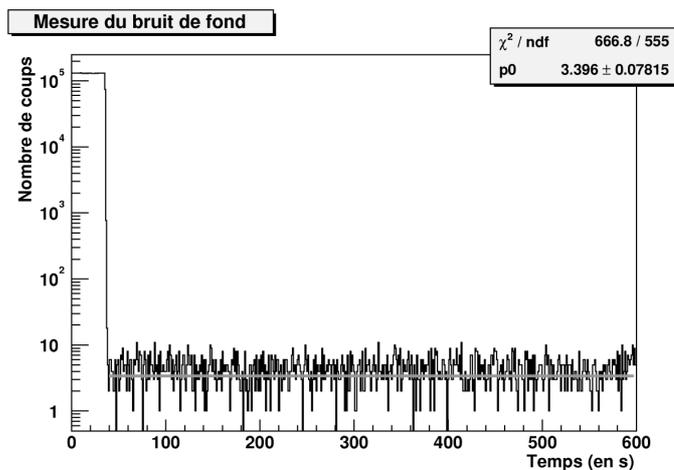


FIG. 5.3 – Mesure du bruit de fond au 4 MV

Une mesure du bruit de fond avec un courant de $5.7 \mu\text{A}$ a été effectuée. Pour cette mesure, le dispositif a été conservé tel quel, la cible d'uranium a été retirée et CF1 a été abaissée. Il a été estimé à 3.40 ± 0.08 cp/s (voir figure 5.3).

L'installation d'une déviation électrostatique permettra peut-être de réduire le bruit de fond si le faisceau est dévié loin du détecteur.

5.3 Nombre total de neutrons retardés émis par fission

On a vu qu'à partir d'un spectre d'émission de neutrons retardés, il est possible de déterminer le nombre total de neutrons retardés émis par fission. Cette valeur est caractéristique du noyau qui fissionne. Nous allons déterminer cette valeur à partir des mesures effectuées au 4 MV, soit la fission de l'uranium-238 par des neutrons de 2 MeV.

5.3.1 Méthode de calcul

À partir de la mesure faite après une irradiation suffisamment longue, on peut retrouver le nombre de neutrons retardés émis par fission (voir section 1.4.2 (p. 23)). Comme le temps d'irradiation (125 s) ne permet pas d'atteindre les distributions cumulatives, il faudrait, dans le cas de cette irradiation, ajouter 21% à la contribution du groupe 1. Ceci correspond à moins de 2% du nombre total de neutrons retardés d'après les données ENDF-B VI. On considérera donc que l'irradiation est infinie et que les distributions cumulatives sont atteintes pour tous les précurseurs de neutrons retardés. Le nombre de neutrons retardés émis par fission est donné par la formule suivante :

$$\bar{\nu}_d = \frac{N_n(t=0)}{N_{fiss}} = \frac{N_{He3}(t=0)}{N_{fiss} \alpha \varepsilon_{He3} \Omega_{He3} I_s} \quad (5.1)$$

$N_n(t=0)$	nombre de neutrons retardés émis
N_{He3}	nombre de coups dans le détecteur hélium-3
N_{fiss}	nombre de fissions
α	coefficient d'atténuation des neutrons dans la cible
ε_{He3}	efficacité intrinsèque du détecteur hélium-3
Ω_{He3}	angle solide du détecteur hélium-3
I_s	flux de neutron dans 4π en n/s

Rappelons que l'efficacité intrinsèque ε_{He3} du détecteur a été évaluée à 0.05 cp/n \pm 5% à la section 4.4 (p. 99). N_{fiss} , α et Ω_{He3} ont été déterminés par simulation à l'aide de MCNPX. Les résultats de ces simulations sont présentés ci-dessous.

5.3.2 Angle solide du détecteur : Ω_{He3}

Afin de connaître la valeur de l'angle solide de notre détecteur dans le cas de notre expérience, nous avons effectué une simulation MCNPX. Nous avons pour cela placé

notre détecteur à 10 cm d'une source isotrope de neutrons et nous avons regardé quelle proportion de neutrons pénètre dans notre détecteur. Cette valeur correspond à la portion d'espace occupé par notre détecteur. Notre détecteur, placé à 10 cm de la cible occupe 21.63% de l'espace à 1% près, soit $\Omega_{He3} = 2.78$ stéradians.

Notre système de détection dans cette configuration bien précise a donc une efficacité globale de $0.0108 \text{ cp/n} \pm 5\%$.

5.3.3 Nombre de fissions : N_{fiss}

Détermination du nombre de fissions

La mesure du nombre de fissions n'a pas pu être réalisée pour cette expérience. Au moment de l'expérience, nous ne disposions pas de chambre à fission avec un dépôt d'uranium-238. Le nombre de fissions produites par neutron incident pendant l'expérience est obtenu à partir d'une simulation MCNPX tenant compte de la section efficace de fission de l'uranium-238, de la géométrie de la cible, de l'énergie des neutrons et de son atténuation dans la cible.

L'expérience est simulée par un faisceau de neutrons de 2 MeV arrivant perpendiculairement à la section de la cible d'uranium sur toute sa surface. Le nombre de fissions induites par ce faisceau est corrigé pour tenir compte de l'angle solide de la cible. Le résultat obtenu vaut $2.87 \cdot 10^{-4}$ fission/ $n_{incident}$ si les neutrons sont émis sur 4π et que la cible d'uranium est placée à 10 cm de la cible de production de neutrons. L'évaluation de l'erreur sur la simulation est difficile à obtenir. La simulation peut être effectuée de manière à avoir une erreur statistique inférieure à 1%. L'erreur principale provient de l'incertitude sur la section efficace. Les données de la base EXFOR pour cette réaction vont de 516 ± 6 à 531 ± 12.2 mbarns. On peut en déduire que la section efficace est connue à environ 3% près. L'incertitude sur le nombre de fissions est donc maximisée en la choisissant égale à 4%.

On obtient $2.87 \cdot 10^{-4}$ fission/ $n_{incident}$. Notons qu'un simple calcul en utilisant la formule (5.2) donne $3.26 \cdot 10^{-4}$ fission/ $n_{incident}$. On voit donc que l'atténuation joue un rôle important car la cible est épaisse (3 cm).

$$N_{fiss} = N\phi_{cible}\sigma_{fiss} \quad (5.2)$$

N	nombre d'atomes dans la cible d'uranium ($1.02 \cdot 10^{24}$)
ϕ_{cible}	proportion de flux arrivant sur la cible ($3.26 \cdot 10^{-4} \text{ n/cm}^2/\text{n}_{incident}$)
σ_{fiss}	section efficace de fission (0.52 barns)

Émission de neutrons secondaires et fission

Lors de la fission, des neutrons prompts sont émis et peuvent induire dans le barreau d'uranium des fissions qui produisent des neutrons retardés. Ces neutrons prompts ont la distribution en énergie présentée sur la figure 5.4. Comme on peut le voir, les neutrons secondaires peuvent avoir une énergie supérieure à celle des neutrons incidents (2 MeV dans notre cas).

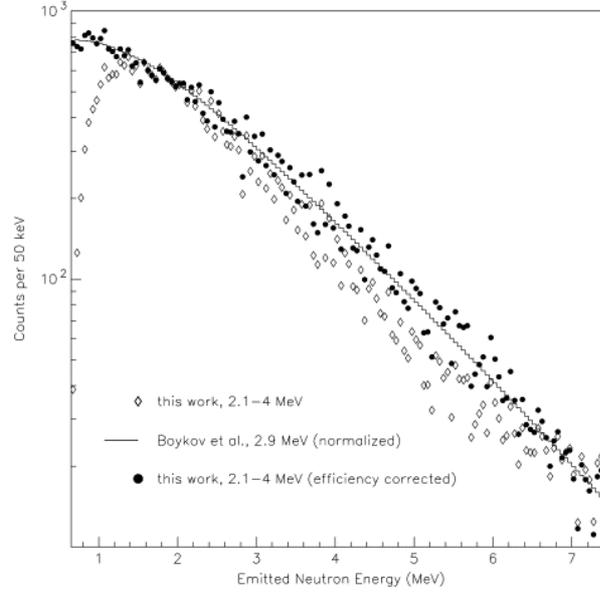


FIG. 5.4 – Distribution en énergie des neutrons prompts issus de la fission induite par neutron de l'uranium-238 [Eth03]

Le nombre de fissions secondaires produites dans la cible d'uranium peut être déterminé grâce à la formule suivante.

$$N_{fiss2} = N_{fiss1} \bar{\nu}_p P_f \quad (5.3)$$

N_{fiss1}	nombre de fissions primaires par neutron incident
N_{fiss2}	nombre de fissions secondaires par neutron incident
$\bar{\nu}_p$	nombre de neutrons prompts émis par fission
P_f	probabilité pour un neutron d'induire une fission dans la cible

D'après les données ENDF, le nombre de neutrons prompts émis par fission ($\bar{\nu}_p$) est de 2.6 neutrons/fission pour des neutrons incidents de 2.9 MeV. Le nombre de fissions primaires (N_{fiss1}) a été estimé à $2.68 \cdot 10^{-4}$ par simulation MCNPX. La probabilité (P_f) qu'un neutron de fission, ayant 2 MeV d'énergie produit à l'intérieur de la cible d'uranium induise une fission est de $2.43 \cdot 10^{-2}$. Les mesures de Shcherbakov [Shc02] de la section efficace de fission induite par neutron montrent en outre que celle-ci est à peu près constante jusqu'à 6 MeV. Nous considérons donc que P_f est constant et vaut $2.43 \cdot 10^{-2}$. Au total un neutron incident aura donc produit $1.9 \cdot 10^{-5}$ fission secondaire (N_{fiss2}). Les neutrons secondaires contribuent donc au maximum à 7% du nombre total de fissions. Cette valeur est déjà prise en compte dans les simulations, donc dans le nombre de fissions.

L'énergie moyenne de ces neutrons secondaires vaut 2.2 MeV. Ils ont donc une énergie très proche de celle des neutrons primaires. On peut donc penser que l'émission de neutrons retardés suite à la fission secondaire n'est pas très différente de l'émission suite à une fission

primaire. Le nombre de fission secondaire est en outre faible. On considérera donc que l'émission de neutrons retardés suite à une fission secondaire a les mêmes caractéristiques que suite à une fission primaire.

5.3.4 Coefficient de transmission : α

La *transmission* correspond à la probabilité qu'a un neutron créé dans la cible d'uranium de sortir de cette dernière. Elle est déterminée à l'aide de MCNPX en simulant une source volumique ayant les dimensions et les caractéristiques du barreau d'uranium. Les résultats de la simulation sont présentés sur la figure 5.5.

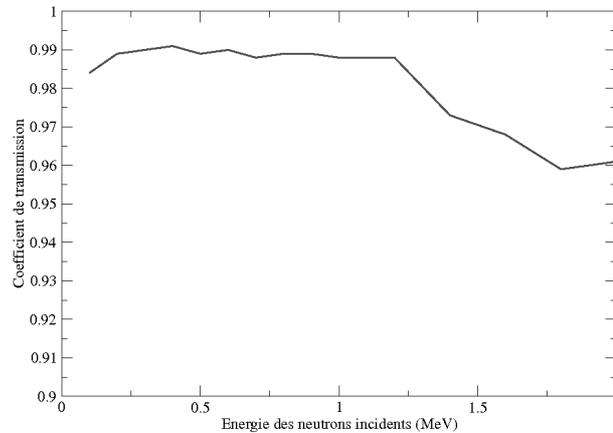


FIG. 5.5 – Transmission des neutrons en fonction de leur énergie dans le barreau d'uranium

Nous constatons que la transmission est pratiquement constante entre 100 keV et 1 MeV. Au-delà, la section efficace de réaction totale augmente à cause de l'ouverture de la voie de fission et la transmission diminue. Comme la majorité des neutrons retardés ont une énergie inférieure à 1 MeV nous considérons que, lors de notre expérience, le coefficient de transmission est constant et vaut 0.989 à 1% près.

5.3.5 Flux de neutron : I_s

La mesure du flux de neutrons n'a pas pu être effectuée lors de nos prises de mesures. Le dispositif expérimental, placé au plus près de l'accélérateur, masquait le détecteur BF_3 et a empêché la mesure du flux de neutrons. Le nombre de coups détectés dans le BF_3 en fonction du courant mesuré sur la cible de production est évalué à partir des données de l'étalonnage, donc en l'absence de la cible d'uranium et avec le détecteur hélium-3 placé à 3 m.

Nous avons évalué à 52.07 ± 0.42 cp/(s. μA) le rapport de proportion entre l'intensité du faisceau et le nombre de coups dans le BF_3 (voir figure 5.6). Lors de notre mesure, le courant mesuré sur la cible de production est de 5.7 ± 0.6 μA . Sachant qu'un coup dans le BF_3 correspond à $1.428 \cdot 10^6$ neutrons émis dans tout l'espace, le flux de neutrons est donc égal à $4.24 \pm 0.50 \cdot 10^8$ neutrons/s.

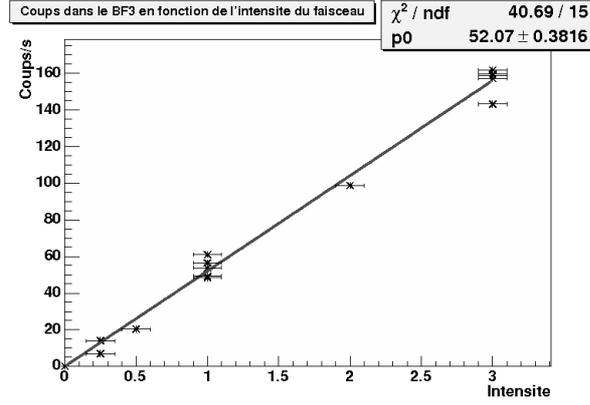


FIG. 5.6 – Proportionnalité entre le courant du faisceau de proton et le taux de comptage du BF_3

5.3.6 Nombre de coups à $t = 0$: $N_{He3}(t = 0)$

Le nombre de coups comptés dans le premier canal, entre 0 et 0.2 s, que l'on appelle $mes([0;0.2])$, est de 620 ± 24.9 coups après avoir accumulé 53 cycles de mesures, soit 11.70 ± 0.47 coups à chaque mesure.

Comme on l'a vu, le bruit de fond dépend de l'intensité du faisceau. Celle-ci n'étant pas déterminée avec précision au cours de l'expérience, on utilise la valeur du bruit obtenue lors de l'analyse des spectres en temps. Cette valeur correspond au nombre de coup par canal dans le détecteur à la fin de la prise de mesure. La valeur du bruit lors de l'irradiation de 125 s étant de 0.658 ± 0.017 coup par canal, soit 3.29 ± 0.09 cp/s, on obtient la valeur corrigée de $mes([0;0.2])$.

$$mes_c([0;0.2]) = \int_0^{0.2} N_{He3}(t) dt = 11.04 \pm 0.50 \text{ cp}$$

On peut calculer le rapport R entre la valeur à $t = 0$ d'un spectre d'émission de neutrons retardés et sa valeur moyenne pendant un temps t_m à l'aide des données ENDF-B VI pour les valeurs des λ_i et des a_i [Kee57a].

$$R = \frac{N(t=0)}{\langle N \rangle_{[0;t_m]}} = \frac{\sum_i a_i}{\frac{1}{t_m} \int_0^{t_m} a_i \exp(-\lambda_i t) dt} = \frac{t_m}{\int_0^{t_m} a_i \exp(-\lambda_i t) dt} \quad (5.4)$$

R varie en fonction de la valeur de t_m choisie. Dans le cas de notre expérience, si t_m vaut 0.2 s, R vaut 1.075 ; si t_m vaut 0.01 s, R vaut 1.

$$N_{He3}(t = 0) = 1.075 \langle N_{He3} \rangle_{[0;0.2]} = \frac{1.075}{0.2} \int_0^{0.2} N_{He3}(t) dt$$

Expérimentalement on obtient donc :

$$N_{He3}(t = 0) = 59.34 \pm 2.69 \text{ cp/s}$$

Nous avons ainsi déterminé le nombre de coups détectés à $t = 0$ hors bruit de fond ($N_{He3}(t = 0)$) indispensable pour calculer la valeur expérimentale de $\bar{\nu}_d$ à partir de la formule (5.1).

5.3.7 Résultats : $\bar{\nu}_d$

En utilisant la formule (5.1) avec les valeurs de $0.05 \text{ cp/n} \pm 5\%$ pour l'efficacité intrinsèque de détection (ε_{He3}), 0.216 pour l'angle solide (Ω_{He3}), de $2.87 \cdot 10^{-4}$ fission/ n_{incident} pour le nombre de fission (N_{fiss}), de $59.34 \pm 2.69 \text{ cp/s}$ pour le nombre de neutrons émis à $t = 0$ ($N_{He3}(t = 0)$), de 0.989 ± 0.01 pour la transmission (α) et de $4.24 \pm 0.50 \cdot 10^8$ neutrons/s pour le flux de neutrons (I_s) on obtient :

$$\bar{\nu}_d = 4.56 \pm 0.62 \text{ n/100 fissions.}$$

JENDL évalue $\bar{\nu}_d$ à 4.68 neutrons/100 fissions pour des fissions induites par des neutrons de 2 MeV, ENDF/B-VI à 4.4 et JEFF à 4.78 pour une irradiation infinie. Le résultat est encourageant car il est en accord avec les valeurs des différentes bibliothèques. Pour réduire l'incertitude, il faut avoir une mesure plus précise du flux de neutrons. Une chambre à fission pourrait être utilisée pour contrôler le flux. Le nombre de fission dans l'échantillon pourrait en outre être mesuré directement par spectrométrie des fragments de fission.

Il aurait été intéressant de faire une mesure en utilisant un temps d'irradiation très court et la formule (1.18). La méthode de coupure du faisceau est cependant trop lente pour permettre ce type d'irradiation.

5.4 Spectres en temps

5.4.1 Méthode d'analyse des spectres en temps des neutrons retardés

Choix du nombre de groupes

En physique des réacteurs, le spectre de décroissance des neutrons retardés est représenté par la somme de six exponentielles et ceci depuis l'expérience de Hugues [Hug48]. Lors de l'analyse de ses mesures, Keepin [Kee57a] a constaté qu'avec moins d'exponentielles il n'obtenait pas une convergence satisfaisante et qu'avec un plus grand nombre d'exponentielles la variance était moins bonne.

D'autres études existent avec un plus grand nombre de groupes, en particulier 8 et 12 groupes [Pik02]. Cependant la majorité des mesures et des données sont représentées

sous forme de six groupes. Nous avons également choisi cette représentation, puisque nous souhaitons comparer nos résultats aux données existantes. La méthode d'analyse permet cependant de décrire la courbe de décroissance de neutrons retardés avec un nombre quelconque de groupes.

Influence de la durée d'irradiation

La contribution de chaque groupe dépend du temps d'irradiation selon la formule (1.16), rappelée ici.

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 a_i \exp(-\lambda_{dn_i} t) (1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T_{irr}))$$

Plus le temps d'irradiation est court, moins les groupes à vie longue contribuent à la production de neutrons retardés. Les irradiations longues permettent ainsi de voir les groupes à vie longue. Puis en diminuant le temps d'irradiation, la contribution relative des groupes à vie plus courte augmente et l'extraction de leurs paramètres est facilitée. Un choix judicieux du temps d'irradiation permet de mettre certains groupes en valeur. L'influence du temps d'irradiation est parfaitement visible sur la figure 5.7. Sur cette figure nous avons utilisé les paramètres de Keepin [Kee57a] pour la fission de l'uranium-238 par des neutrons rapides.

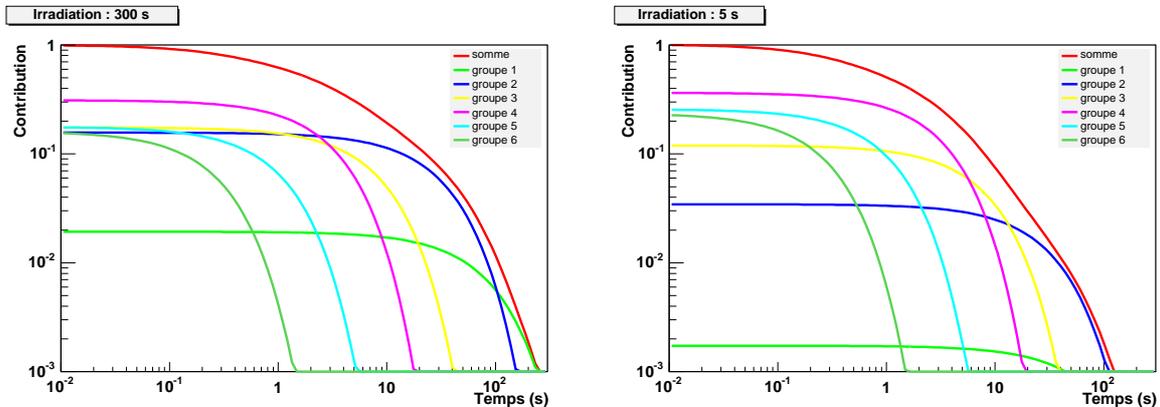


FIG. 5.7 – Influence de la durée d'irradiation sur la contribution relative de chaque groupe (à gauche : 300 s, à droite : 5 s)

On constate que l'influence relative des groupes 1 et 2 diminue nettement quand le temps d'irradiation passe de 300 s à 5 s. Ceci permet au groupe 3 d'être prédominant après 10 s d'acquisition environ alors qu'il n'est jamais prédominant lors d'une irradiation longue. En diminuant encore le temps d'irradiation, les groupes 5 et 6 pourraient dominer le groupe 4.

En réduisant le temps d'irradiation, on réduit le nombre de précurseurs produits et donc le nombre de neutrons retardés émis. Le signal mesuré est en conséquence plus faible. Il faut donc augmenter le nombre de mesures ou de manière équivalente l'intensité du faisceau, si cela est possible. Le rapport signal/bruit diminue car le bruit, lui, reste

constant. Il est donc d'autant plus important d'avoir un environnement à bas bruit de fond, en particulier lors des mesures avec un temps d'irradiation très court.

Choix de la méthode d'analyse

Les spectres de la carte d'acquisition sont transformés pour être lisibles par ROOT [Bru03]. Nous savons que la courbe de décroissance peut être représentée par une somme d'exponentielles. Le but de l'analyse est de trouver, pour chacune des exponentielles, les paramètres qui reproduisent le mieux la courbe de décroissance des neutrons retardés et avec les plus petites barres d'erreur possibles, grâce à la méthode des moindres carrés. Le nombre de paramètres dépend du nombre d'exponentielles choisi pour décrire la courbe (six dans notre cas).

Lors de l'analyse, la contribution de chaque groupe est corrigée pour obtenir leur valeur dans le cas d'une irradiation infinie même si les distributions cumulatives ne sont pas atteintes. Cette correction est expliquée dans l'annexe D.

Regroupement des canaux

En fin de spectre, le nombre de coups par canal est faible et les barres d'erreurs statistiques grandes. Les canaux sont donc regroupés afin de réduire les barres d'erreur. Une valeur maximale de la barre d'erreur est déterminée. Si besoin est, les canaux sont ensuite regroupés pour que la barre d'erreur statistique soit inférieure à cette valeur. Ainsi le nombre de points mais aussi les barres d'erreur statistiques diminuent. Le groupement des canaux est également intéressant car il lisse la structure en temps du bruit de fond si sa contribution est faible. Le résultat du regroupement des canaux est présenté sur la figure 5.8 dans le cas de l'irradiation de 125 s.

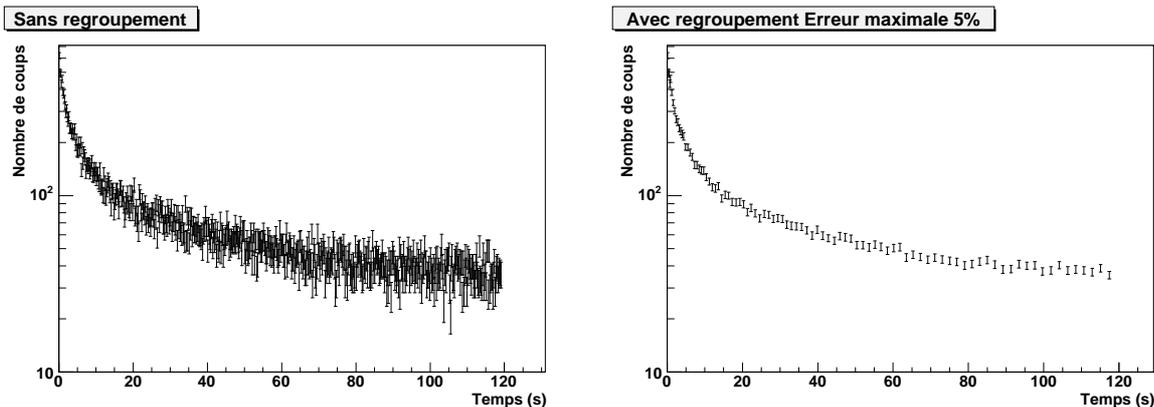


FIG. 5.8 – Regroupement des canaux en temps pour les courbes de décroissance de neutrons retardés (irradiation : 125 s, décroissance : 125 s)

Les points ne sont regroupés qu'en fin de spectre où la variation en fonction du temps est très faible. Il est possible d'ajouter des barres d'erreur sur les temps, mais lors de nos calculs nous avons constaté qu'elles ne modifient pas les résultats de manière significative. Pour réduire le temps de calcul, elles sont négligées. Le décalage en temps dû au regroupement des canaux est négligeable par rapport aux barres d'erreur statistiques. Le

regroupement doit être suffisamment important pour lisser le bruit de fond mais pas trop car sinon des informations sur les groupes à faible contribution risquent d'être perdues.

Test de différentes méthodes

L'analyse consiste à ajuster numériquement sur les points expérimentaux les paramètres des six exponentielles et un bruit de fond, soit treize paramètres. Le bruit de fond est considéré comme constant au cours de la mesure.

Pour tester les différentes méthodes d'analyse, un résultat proche d'un spectre expérimental est simulé. Pour cela, nous avons utilisé les paramètres de Nikotin [Nik65], obtenus pour la photofission de l'uranium-238, pour décrire notre spectre de neutrons retardés en six groupes. Il est normalisé à 600 à $t = 0$, le pas d'acquisition choisi est de 100 ms. Le but est de montrer qu'avec la méthode d'analyse, il est possible de retrouver les paramètres prédéfinis.

Lors de l'ajustement numérique, il est nécessaire de fournir une valeur initiale et une plage de variation pour chaque paramètre. Pour les temps de vie, les valeurs initiales et les plages de variation sont données dans le tableau 5.2. La plage de variation correspond à l'étendue de chaque groupe (voir section 1.4.2 (p. 23)). Les valeurs initiales pour les temps de vie sont les valeurs communément admises pour chaque groupe. En ce qui concerne les contributions de chaque groupe, la valeur initiale est prise égale à 20% de la valeur à $t = 0$, la plage de variation va de zéro à la valeur maximale de la courbe.

Groupe	valeur initiale	valeur minimale	valeur maximale
1	55.6	30	999
2	20	10	30
3	5	3	10
4	2	1	3
5	0.7	0.3	1
6	0.2	0.1	0.3

TAB. 5.2 – Valeurs initiales et plages de variation utilisées pour les temps de vie en secondes lors de l'ajustement numérique

Quatre méthodes ont été testées pour effectuer l'ajustement numérique des paramètres.

La première méthode consiste à faire un ajustement numérique des douze paramètres et du bruit de fond sur l'ensemble du spectre de décroissance. Il s'agit de la méthode la plus simple mais dans certains cas, elle ne permet pas d'extraire tous les groupes, en particulier si certains ne sont jamais prédominants. Cette méthode permet d'avoir une idée rapide des valeurs des paramètres mais elle n'est pas suffisante pour notre étude.

La seconde méthode consiste à ajuster les paramètres du premier groupe. Une fois les résultats obtenus, la plage de variation des paramètres du premier groupe est limitée aux barres d'erreur trouvées. Cette méthode est inspirée de celle présentée par Hugues [Hug48]. Le problème principal réside dans la détermination de la partie du spectre sur laquelle a lieu l'ajustement numérique. On recherche alors l'extremum de la courbe des paramètres

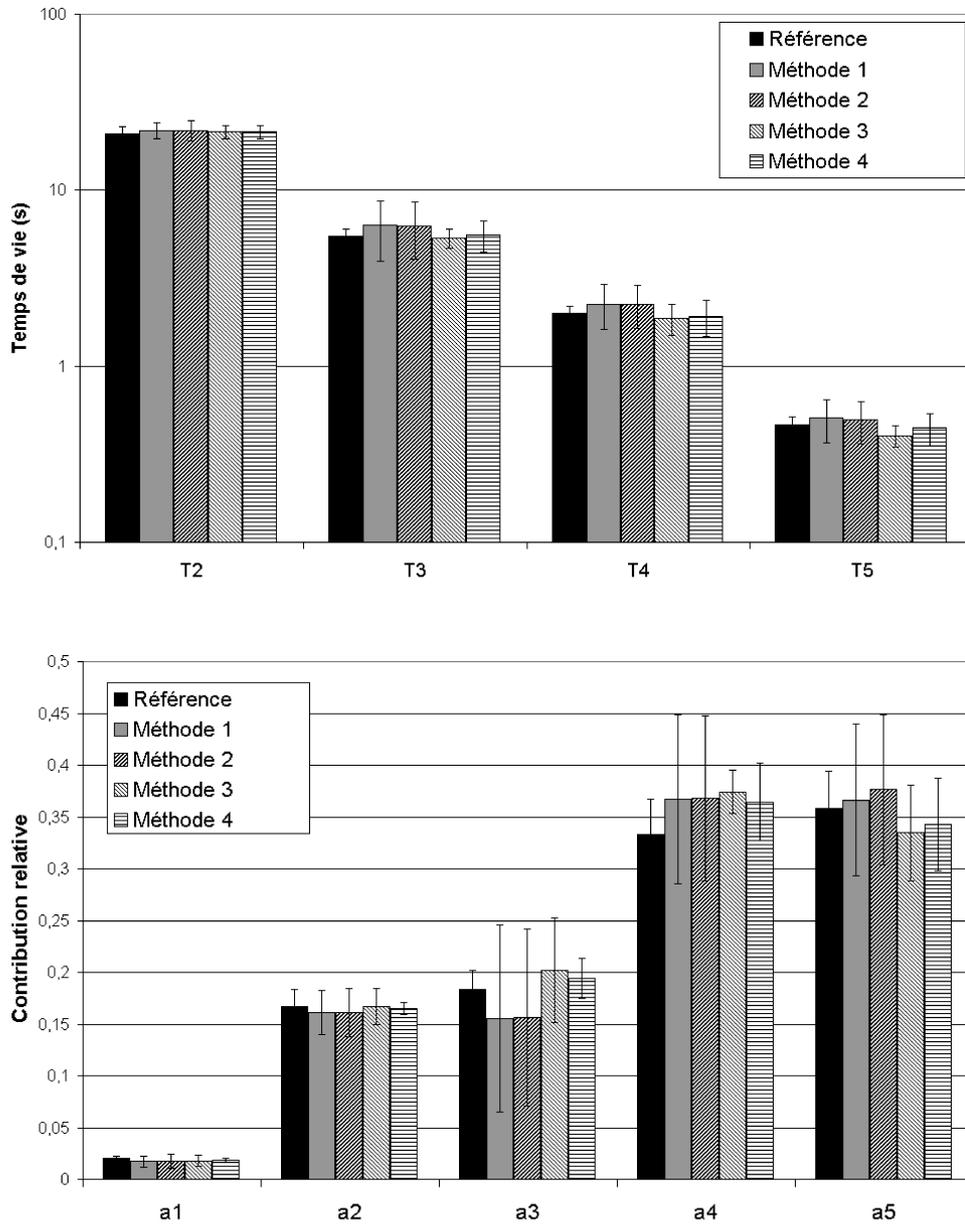


FIG. 5.9 – Comparaison des différentes méthodes d’analyse pour l’extraction des temps de vie et des contributions relatives (a_i)

en fonction du temps. Parfois cet extremum n'existe pas. Dans ce cas, il faut chercher deux groupes à la fois. Une fois les valeurs trouvées, on recommence pour les groupes suivants.

La troisième méthode ressemble à la deuxième mais les paramètres d'un groupe sont fixés à la valeur trouvée au lieu de réduire leur plage de variation. Les barres d'erreur sur les paramètres ainsi obtenus sont plus petites qu'avec la méthode 2.

La quatrième méthode est un compromis entre les méthodes 2 et 3. Elle consiste à fixer les temps de vie et à réduire la plage de variation des contributions relatives.

Les quatre méthodes ont été utilisées pour retrouver les paramètres de notre simulation. Dans tous les cas on retrouve les paramètres initiaux. Les meilleurs résultats sont obtenus en utilisant la troisième méthode. Le résultat de la comparaison est présenté sur la figure 5.9.

Il n'y a pas de grande différence entre les méthodes 1 et 2. Par contre les méthodes 3 et 4 permettent de réduire considérablement les barres d'erreur. Si on préfère réduire l'erreur sur les temps de vie on choisit la méthode 3, dans le cas contraire on choisit la méthode 4.

Description de la méthode utilisée

Dans le cas de notre analyse, on choisit judicieusement parmi les différentes méthodes afin de s'adapter aux résultats expérimentaux. La méthode utilisée lors de l'analyse est donc un mélange des méthodes proposées ci-dessus.

On commence par déterminer quel est le meilleur choix de regroupement des canaux. On recherche les six groupes simultanément pour différentes valeurs de la barre d'erreur minimale de chaque point. On détermine celle qui permet de voir tous les groupes avec le plus petit χ^2 . Cette méthode fournit ainsi les valeurs initiales des différents paramètres mais les plages de variation restent celles présentées précédemment.

On applique ensuite la méthode 3 en l'adaptant à chacun des groupes les uns après les autres. Parfois, on ne trouve pas d'extremum. On fait dans ce cas l'ajustement numérique sur deux exponentielles pour trouver deux groupes à la fois. Si les barres d'erreur sont suffisamment petites, on fixe les paramètres à la valeur trouvée et on continue l'ajustement pour les groupes suivants. Si les barres d'erreur sont jugées trop grandes, on continue l'ajustement numérique en réduisant la plage de variation des données aux barres d'erreur trouvées. Il n'est pas toujours possible de voir tous les groupes, dans ce cas on fixe certains temps de vie. C'est le cas en particulier si la durée d'irradiation n'est pas adaptée au temps de vie du groupe cherché.

5.4.2 Analyse des données expérimentale

Données ENDF-B VI

Les valeurs issues de la bibliothèque ENDF-B VI pour les paramètres des différents groupes sont représentées dans le tableau 5.3 dans le cas de la fission de l'uranium-238 par des neutrons rapides (les notations sont celles définies à la section 1.4.2 (p. 23)). Elles sont tirées des données expérimentales de Keepin [Kee57a], qui sont considérées comme les mesures les plus précises existantes. On comparera le résultat de notre analyse à ces

valeurs. On considérera donc que le spectre d'émission de neutrons retardés est le même que la fission soit induite par des neutrons de 2 MeV ou des neutrons rapides.

Groupe	$^{238}\text{U}+n_f$	
	$T_{1/2}(\text{s})$ [Kee57a]	a_i [Kee57a]
1	52.38 ± 1.29	0.013 ± 0.001
2	21.58 ± 0.39	0.137 ± 0.002
3	5 ± 0.19	0.162 ± 0.020
4	1.93 ± 0.07	0.388 ± 0.012
5	0.493 ± 0.023	0.225 ± 0.013
6	0.172 ± 0.009	0.075 ± 0.005

TAB. 5.3 – Données des différents groupes pour la fission de l'uranium-238 induite par des neutrons rapides

Irradiation : 125 s - décroissance : 125 s

Nous avons commencé notre série de mesure par des cycles de 125 s d'irradiation et de 125 s de décroissance. Le spectre brut obtenu est présenté sur la figure 5.8. On constate que la courbe est presque constante sur la fin ; cela signifie que le bruit de fond est prédominant. Comme on l'a vu sur la figure 5.3, le bruit de fond a un niveau élevé, de l'ordre de 3.4 n/s.

Le bruit de fond est lié à l'arrêt du faisceau de protons. Lors des mesures, nous avons remarqué que l'intensité du faisceau avait tendance à diminuer au cours du temps. Il est donc difficile de connaître exactement le bruit de fond présent pendant la mesure. Après analyse, la valeur du bruit de fond lors de cette mesure est fixée à 3.29 ± 0.09 cp/s. Cette valeur est très proche de celle mesurée sans la cible avec un faisceau d'une intensité de $5.7 \mu\text{A}$.

Comme le temps de décroissance est de 125 s, des précurseurs sont encore présents à la fin de la période de décroissance et empiètent sur les mesures suivantes. Ce problème est pris en compte lors de l'analyse par l'ajout de coefficients correctifs pour la contribution de chaque groupe. Ces coefficients dépendent du groupe, du temps d'irradiation et du temps de décroissance. Leur calcul est présenté dans l'annexe D. Le bruit de fond ne peut donc pas être soustrait *a posteriori*. Pour résoudre le problème du bruit de fond, on fixe le temps de vie du groupe 1 à 55.6 s. Il s'agit du temps de vie du seul précurseur appartenant à ce groupe, le brome-87. Le bruit de fond masque la contribution du groupe 1. Le seul moyen d'extraire sa contribution est de fixer son temps de vie.

Le groupe 3 n'est jamais prédominant. Avec la statistique de la mesure, il est impossible de l'extraire sans fixer son temps de vie. Nous avons donc choisi de fixer son temps de vie à la valeur trouvée par Keepin, soit 5 s.

Les résultats de l'approximation de moindres carrés sont présentés sur la figure 5.10 et dans les tableaux 5.4 et 5.5. Seuls les quatre premiers groupes ont été extraits, le pas en temps de l'acquisition de 200 ms ne permet effectivement pas de différencier les groupes 5 et 6 et donc de déterminer leur paramètres.

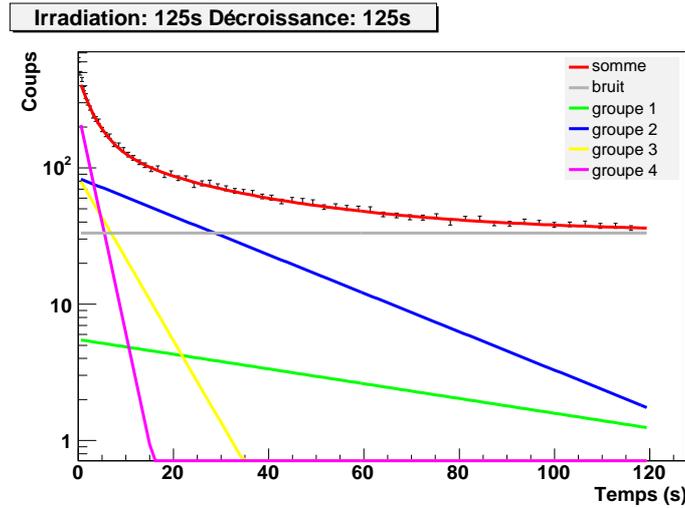


FIG. 5.10 – Extraction des quatre premiers groupes obtenus lors de l’irradiation de 125 s

Contribution	[Kee57a]	Notre mesure
$a_1(\%)$	1.3 ± 0.1	1.08 ± 0.9
$a_2(\%)$	13.7 ± 0.2	13.9 ± 1.7
$a_3(\%)$	16.2 ± 2.0	14.0 ± 6.6
$a_4(\%)$	38.8 ± 1.2	41.8 ± 4.2

TAB. 5.4 – Contribution des groupes 1 à 4 obtenue lors de l’irradiation de 125 s

Temps de vie (s)	[Kee57a]	Notre mesure
T_2	21.58 ± 0.39	21.35 ± 2.07
T_4	1.93 ± 0.07	1.85 ± 0.41

TAB. 5.5 – Temps de vie des groupes 2 et 4 obtenu lors de l’irradiation de 125 s

On retrouve les données de Keepin mais nos barres d’erreur sont nettement plus grandes, comme on pouvait le prévoir à cause de la faible statistique. Pour améliorer ces données, il faudrait faire des mesures plus longues pour avoir la contribution des neutrons retardés issus du premier groupe. Une meilleure connaissance du bruit de fond ou sa réduction améliorerait la précision sur le groupe 1. Il est possible qu’avec plus de précision sur les données des groupes 1 et 2 on puisse extraire le groupe 3 sans avoir à fixer son temps de vie même s’il n’est jamais prédominant. Une meilleure statistique devrait grandement améliorer la précision des résultats.

Irradiation : 20 s - décroissance : 25 s

Dans le cas d’une irradiation de 20 s et d’une décroissance de 25 s, on ne peut pas retrouver le groupe 2 car son temps de vie est comparable au temps de mesure (24 s).

Sa contribution est donc difficile à différencier du bruit. C'est encore plus difficile pour le groupe 1. Comme précédemment, à cause du pas en temps de 200 ms, on ne peut pas différencier les groupes 5 et 6. On va chercher un groupe *somme* qui contient la contribution des deux groupes. Du fait de la faible contribution du groupe 6, des grandes barres d'erreur et du pas en temps, le groupe 5 peut être pris égal au groupe *somme*. Le temps de vie du groupe 3 est par ailleurs toujours fixé à 5 s car il n'est pas prédominant par rapport au bruit.

Les résultats sont présentés sur la figure 5.11 et dans les tableaux 5.6 et 5.7.

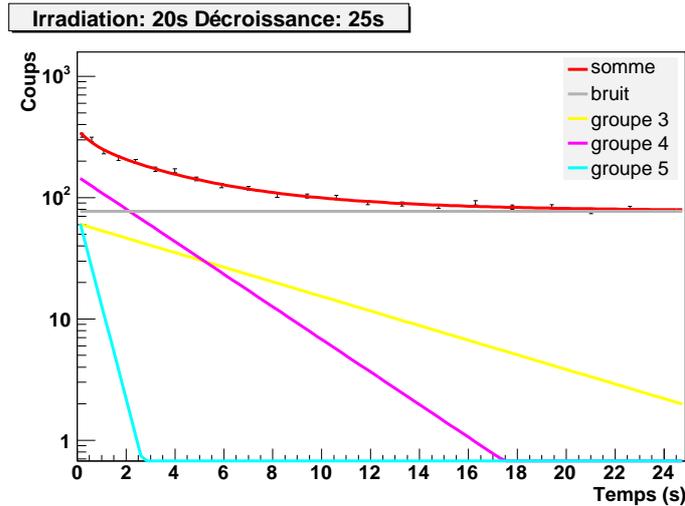


FIG. 5.11 – Extraction des groupes 3 à 5 obtenus lors de l'irradiation de 20 s

Contribution	[Kee57a]	Notre mesure
$a_3(\%)$	16.2 ± 2.0	17.5 ± 4.7
$a_4(\%)$	38.8 ± 1.2	40.2 ± 3.2
$a_5(\%)$	22.5 ± 1.3	20.4 ± 7.1

TAB. 5.6 – Contribution relative des groupes 3, 4 et 5 obtenue lors de l'irradiation de 20 s

Temps de vie (s)	[Kee57a]	Notre mesure
T_4	1.93 ± 0.07	2.24 ± 0.24
T_5	0.493 ± 0.023	0.391 ± 0.16

TAB. 5.7 – Temps de vie des groupes 4 et 5 obtenu lors de l'irradiation de 20 s

Comme précédemment, on retrouve les valeurs de Keepin avec de plus grandes barres d'erreur à cause de la faible accumulation de données. De même il est difficile d'avoir une valeur précise pour les temps de vie courts, du fait que le pas en temps de l'acquisition est toujours de 200 ms.

Le bruit est très gênant sur cette mesure. Pour le réduire, il aurait fallu laisser décroître la cible plus longtemps (au moins une dizaine de fois le temps d'irradiation) et ainsi diminuer la contribution du groupe 2 au bruit.

Cette mesure n'est pas adaptée à l'obtention des paramètres du groupe 5. Lors de prochaines mesures, il faudrait que le temps de décroissance soit largement supérieur au temps d'irradiation, que l'on prenne le pas en temps le plus petit possible et que le bruit de fond soit réduit.

On retrouve aussi des valeurs en accord avec la mesure précédente pour les groupes 3 et 4. Ceci montre que la méthode d'analyse est stable en fonction du temps d'irradiation.

Irradiation : 6.25 s - décroissance : 6.25 s

Avec ces mesures pour lesquelles l'irradiation a duré 6.25 s et la décroissance 6.25 s, on cherche des groupes avec des temps de vie très courts, le pas en temps de l'acquisition est donc plus faible, fixé à 10 ms.

Les groupes 1 à 3 ont une contribution trop faible et un temps de vie trop long par rapport à la durée de l'acquisition pour être visibles lors de cette mesure. Ils sont considérés comme des constituants du bruit. Le temps de vie du groupe 4 est fixé à la valeur trouvée précédemment car la durée de mesure n'est pas assez longue pour déterminer avec suffisamment de précision son temps de vie.

La durée d'irradiation est trop longue pour que la contribution relative du groupe 6 soit visible malgré l'erreur statistique. On fixe donc son temps de vie à la valeur donnée par Keepin, soit 172 ms. Les résultats sont présentés sur la figure 5.12 et dans les tableaux 5.8 et 5.9.

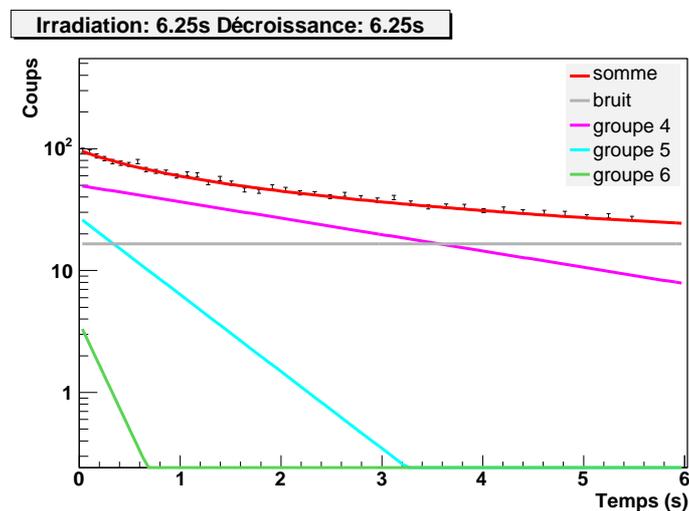


FIG. 5.12 – Extraction des groupes 4 à 6 obtenus lors de l'irradiation de 6.25 s

En premier lieu, on peut voir que l'on retrouve bien les données de Keepin. Ensuite les valeurs obtenues dans le cas de l'irradiation de 6.25 s sont en accord avec les valeurs obtenues pour les autres irradiations. La contribution du groupe 4 doit contenir une partie

Contribution	[Kee57a]	Notre mesure
$a_4(\%)$	38.8 ± 1.2	44.8 ± 4.0
$a_5(\%)$	22.5 ± 1.3	21.3 ± 3.7
$a_6(\%)$	7.5 ± 0.5	2.9 ± 2.9

TAB. 5.8 – Contribution relative des groupes 4, 5 et 6 obtenue lors de l’irradiation de 6.25 s

Temps de vie (s)	[Kee57a]	Notre mesure
T_5	0.493 ± 0.023	0.477 ± 0.038

TAB. 5.9 – Temps de vie du groupe 5 obtenu lors de l’irradiation de 6.25 s

des contributions des groupes à temps de vie plus longue. On ne gardera donc pas cette valeur. Comme précédemment un temps de décroissance plus long aurait réduit le bruit et permis d’avoir des données plus précises sur le groupe 4 et peut-être sur le groupe 3.

Il semble que le temps d’irradiation ne soit pas adapté à l’extraction du groupe 6. Comme on le voit sur la figure 5.12, le groupe 6 est totalement masqué par les autres groupes. Il faudrait réduire le temps d’irradiation pour augmenter sa contribution relative (a_6). Pour pouvoir déterminer sa contribution, il a fallu fixer son temps de vie à la valeur donnée par Keepin. Lors de notre expérience, il faut 330 ms pour que la cage de Faraday commence à avoir un effet sur le faisceau et encore 20 ms pour que le faisceau soit complètement arrêté. Ce temps n’est pas négligeable devant le temps de vie des précurseurs du groupe 6. Ceci complique encore la mesure et renforce la nécessité de fixer son temps de vie.

Résultat global

En fonction du temps d’irradiation, chacune des mesures permet d’obtenir les contributions et les temps de vie de trois ou quatre groupes. Il faut donc choisir judicieusement les paramètres des différents groupes parmi ceux obtenus pour différentes irradiations.

Les résultats issus des trois mesures sont résumés dans le tableau 5.10. Les valeurs de certains groupes peuvent être extraites sur deux mesures différentes. Ces valeurs étant en accord, seule la valeur avec la plus petite barre d’erreur est présentée ici. Le résultat obtenu avec ces valeurs pour les six groupes est tracé sur les mesures expérimentales sur les figures 5.13 à 5.15 pour chacune des trois durées d’irradiation.

Sur le tableau, on voit que le temps de vie du groupe 1 est plus grand que celui donné par Keepin, or le groupe 1 n’est *a priori* composé que d’un seul précurseur dont le temps de vie vaut 55.6 s. On peut donc penser que le temps de demi-vie mesuré du groupe 1 est fausse mais qu’elle est “compensée” par une valeur de a_1 plus grande que celle trouvée ici. Pour les autres paramètres on retrouve bien les valeurs de Keepin, sauf pour la contribution du groupe 6. Comme on l’a expliqué précédemment, cette valeur est difficile à obtenir à cause des conditions expérimentales, en particulier à cause de la coupure du faisceau qui n’est pas nette.

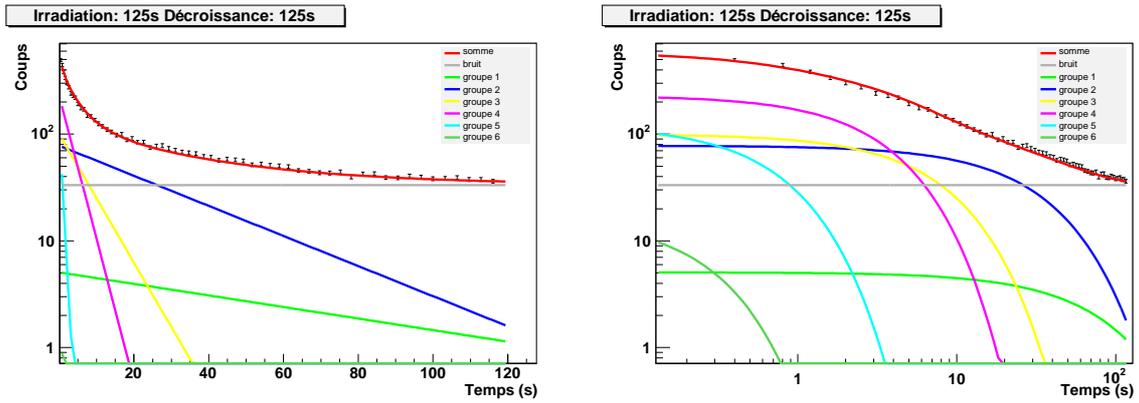


FIG. 5.13 – Données expérimentales et représentation en six groupes issue de notre mesure pour l’irradiation de 125 s.

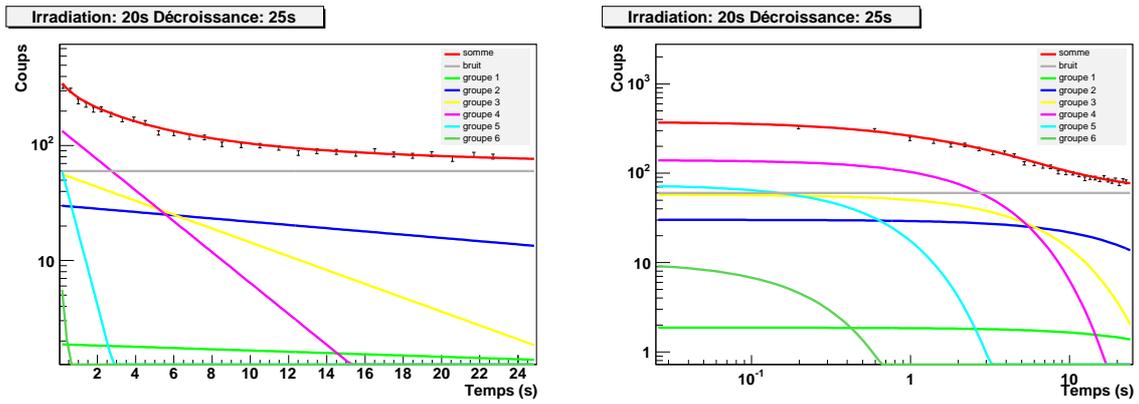


FIG. 5.14 – Données expérimentales et représentation en six groupes issue de notre mesure pour l’irradiation de 20 s

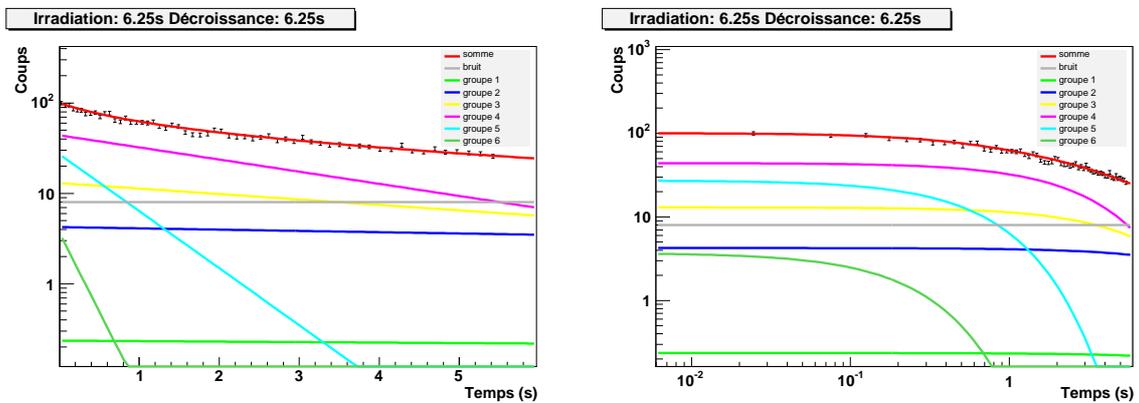


FIG. 5.15 – Données expérimentales et représentation en six groupes issue de notre mesure pour l’irradiation de 6.25 s

Groupe	$T_{1/2}$ (s)	$T_{1/2}$ (s) [Kee57a]	a_i (%)	a_i (%) [Kee57a]
1	55.6	52.38 ± 1.29	1.08 ± 0.9	1.3 ± 0.1
2	21.35 ± 2.07	21.58 ± 0.39	13.9 ± 1.7	13.7 ± 0.2
3	5	5.0 ± 0.19	17.5 ± 4.7	16.2 ± 2.0
4	2.24 ± 0.24	1.93 ± 0.07	40.2 ± 3.2	38.8 ± 1.2
5	0.477 ± 0.038	0.493 ± 0.023	21.3 ± 3.7	22.5 ± 1.3
6	0.172	0.172 ± 0.009	2.9 ± 2.9	7.5 ± 0.5

TAB. 5.10 – Paramètres de la courbe de décroissance en neutrons retardés pour $n+^{238}\text{U}$ à 2 MeV comparés aux données expérimentales de Keepin

Les paramètres donnés dans le tableau 5.10 permettent de bien reproduire les résultats expérimentaux. On voit bien que le groupe 1 est toujours masqué par le bruit de fond et que le groupe 3 est toujours inférieur, soit au groupe 2 soit au groupe 4, d'où l'impossibilité de déterminer son temps de vie. On voit aussi que la contribution relative du groupe 6 est faible quel que soit le temps d'irradiation choisi. Il aurait été intéressant de choisir un temps d'irradiation plus court. Le temps de réponse de la cage de Faraday (330 ms) nous empêche toutefois de faire des irradiations suffisamment courtes pour que la contribution du groupe 6 soit majoritaire par rapport au groupe 5.

En bref, nos résultats sont cohérents avec ceux de Keepin. Notre analyse montre que la précision des résultats peut être inférieure à 10% si les temps d'irradiation et de décroissance sont adaptés et que la statistique est améliorée.

5.5 Conclusions

Les résultats obtenus sont en accord avec les données de Keepin, malgré les grandes barres d'erreur liées à la faible quantité de données. Ceci valide le protocole expérimental et la méthode d'analyse. Cette expérience nous a permis d'apprendre beaucoup pour la suite du programme expérimental. Les conclusions que nous avons tirées de cette série d'expériences sont les suivantes :

- Le pas en temps de l'acquisition doit être choisi le plus petit possible. Il doit être égal au temps d'acquisition divisé par le nombre de canaux de la carte. Ceci permet de réduire l'erreur sur le temps de vie des groupes.
- Lors des prochaines campagnes de mesure, il sera important de réduire le bruit de fond pour extraire les groupes à vie longue. Il faudra également adapter les temps d'irradiation en fonction des groupes que l'on souhaite mesurer. Une irradiation de 6 s n'est pas suffisamment courte pour permettre d'extraire le groupe 6, surtout si sa contribution est très faible. L'adaptation de la durée de décroissance est également importante. En augmentant la durée de décroissance, on réduit le bruit et on peut extraire plus facilement les groupes à vie longue. On s'est aperçu qu'il est difficile d'extraire un groupe si la durée de mesure est inférieure à cinq fois son temps de demi-vie.

- En adaptant judicieusement les temps d’irradiation et de décroissance en fonction des temps de vie, il semble possible d’obtenir une précision de l’ordre de 10%.
- Il est difficile de réduire le temps d’irradiation en dessous de la seconde sur cet accélérateur à cause du temps de réponse de 330 ms de la cage de Faraday. Pour mesurer les groupes à temps de vie court, l’utilisation d’un autre accélérateur ou l’installation d’une déviation électrostatique pourrait s’avérer nécessaire.
- Bien évidemment augmenter le nombre de mesures et ainsi augmenter la statistique est obligatoire pour avoir des résultats précis. Ceci pourrait également être obtenu en augmentant l’efficacité du système de détection.

Les connaissances acquises lors de cette expérience faciliterons la prochaine étape. Il s’agit de la mesure de spectre d’émission de neutrons retardés issus de la photofission de l’uranium-238.

Chapitre 6

Mesure du spectre d'émission de neutrons retardés issus de photofission

Les mesures de spectres d'émission de neutrons retardés issus de photofission sont peu nombreuses. Pour commencer la série d'expériences visant à compléter ces données, nous avons choisi de mesurer le spectre de l'uranium-238 irradié par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV.

Le but de cette expérience était de démontrer la faisabilité de la mesure de tels spectres auprès de l'accélérateur ELSA à Bruyères-le-Châtel. Elle s'est déroulée en collaboration avec le CEA/DIF/DPTA/SPN. Nous espérons prouver qu'il est possible d'extraire les paramètres de la courbe de décroissance avec une erreur d'environ 10% et d'améliorer la mesure du nombre total de neutrons retardés émis par fission. Nos résultats sont comparés aux valeurs obtenues par Nikotin [Nik65] pour la même énergie et la même cible.

6.1 Dispositif expérimental

6.1.1 Faisceau de photons

À ELSA, le faisceau de photons est produit par Bremsstrahlung. Un faisceau d'électrons est envoyé sur une cible de conversion en tantale de 1.2 mm d'épaisseur inclinée de 45°. Un cylindre en aluminium de 6 cm de longueur est placé derrière la cible pour arrêter les électrons résiduels et atténuer les photons de basse énergie. L'ensemble est installé sous vide. Un collimateur en plomb est installé après ce dispositif. La tâche-faisceau mesure environ 2 mm et est donc nettement inférieure au diamètre de la cible en tantale et du cylindre d'aluminium. Tous les électrons arrivent donc sur la cible. Le flux de Bremsstrahlung après la cible de conversion est simulé à l'aide du code de transport MCNPX [Wat02]. La géométrie utilisée est représentée sur la figure 6.1. L'environnement a pu être décrit l'aide des plans de la construction de la ligne faisceau sans aucune approximation.

Les électrons du faisceau sont extraits d'une photocathode par effet photoélectrique suite à l'interaction avec un laser. L'extraction est facilitée par l'application d'une haute tension sur la photocathode au moment de l'interaction avec le laser. Ces électrons sont

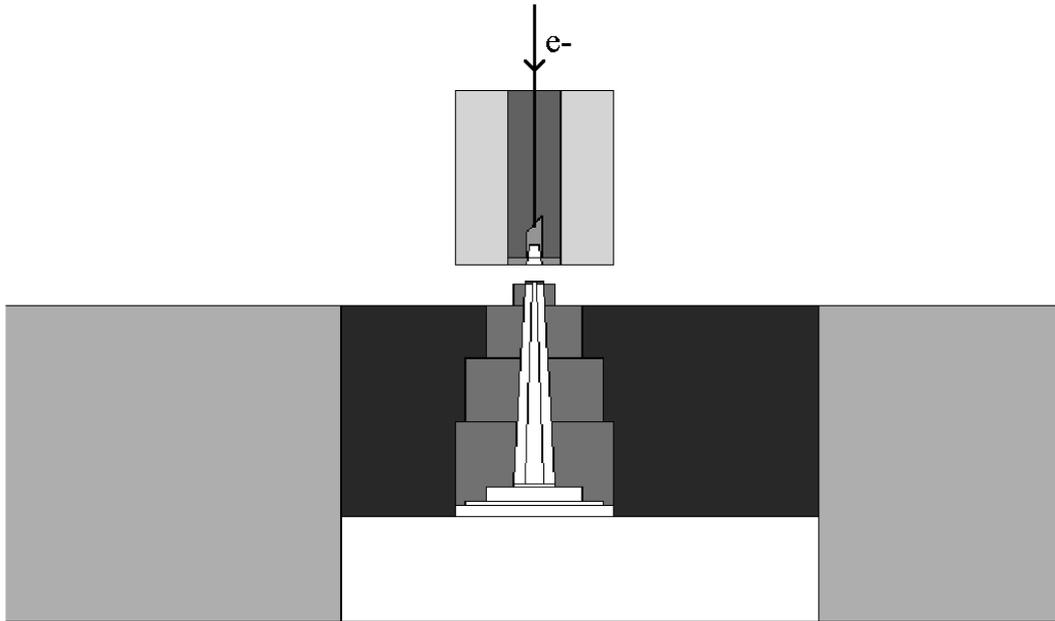


FIG. 6.1 – Géométrie de la cible de conversion et du collimateur d'ELSA utilisée dans MCNPX

produits avec une énergie de quelques keV, ils peuvent être accélérés jusqu'à 20 MeV et sont transportés jusqu'à la cible de conversion en tantale.

Le laser permet d'avoir une grande souplesse pour définir l'impulsion délivrée sur la photocathode et donc de choisir la structure en temps du faisceau d'électrons. Le faisceau est pulsé. Chaque macro-impulsion dure au maximum $140 \mu\text{s}$ et est composée d'au maximum 1000 micro-impulsions de 150 ps espacées de 28 ns. La fréquence de répétition des macro-impulsions varie de 1 à 10 Hz.

Un obturateur est placé devant le laser d'extraction. Celui-ci est contrôlé par un module électronique (DG535). Cet obturateur permet de moduler la structure en temps du faisceau pour s'adapter aux besoins spécifiques de la mesure de neutrons retardés. Le module est synchronisé sur la pulsation des macro-impulsions du laser. Dans le cas de notre expérience, la fréquence est de 5 Hz. Le schéma présenté sur la figure 6.2 résume le fonctionnement du module et de l'obturateur.

Les durées entre A, B, C et D peuvent varier de 1 ns à 999 s. La durée AA est la durée d'un cycle. Entre C et D, l'obturateur est ouvert : il laisse passer le laser et la cible est irradiée (Tirr). Entre A et C et entre D et A, l'obturateur est fermé (Tdec). Le laser n'atteint pas la photocathode, il n'y a donc pas de faisceau et la cible décroît. La mesure s'effectue entre A et B mais les neutrons retardés ne sont visibles qu'entre D et B. Le module émet également une impulsion sur les sorties correspondantes à chaque fois qu'il passe par A, B, C ou D.

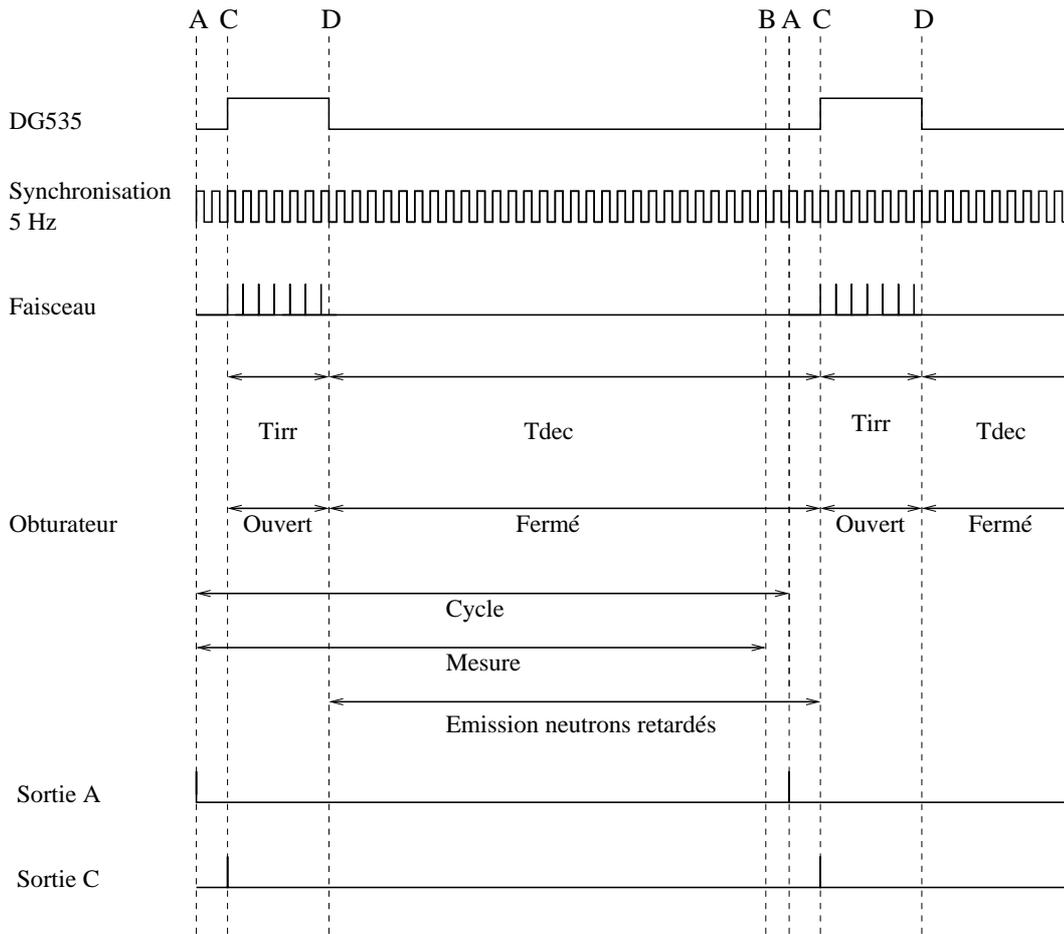


FIG. 6.2 – Schéma de fonctionnement de l'obturateur

6.1.2 Système d'acquisition

Les neutrons retardés sont détectés par le détecteur hélium-3 défini au chapitre 4. L'acquisition est la même que celle présentée à la section 4.1. Le déclenchement de l'acquisition a, par contre, été modifié. L'acquisition est synchronisée sur la sortie A du module DG535. Lors de l'expérience, on accumule les cycles complets du DG535 de A à A (irradiation et décroissance).

L'intensité du faisceau d'électrons est mesurée directement grâce à la charge qui traverse l'ensemble composé de la cible de conversion et du cylindre d'aluminium. Le cylindre est dimensionné de manière à arrêter tous les électrons ayant une énergie inférieure à 20 MeV. L'enregistrement de l'intensité est faite automatiquement par le système de contrôle d'ELSA. Il est donc facile d'obtenir une mesure précise du courant lors des expériences.

6.2 Protocole expérimental

6.2.1 Cible et dispositif

La cible de photofission est la même cible d'uranium métallique appauvri que celle utilisée lors du test de faisabilité de la mesure au 4 MV (voir chapitre 5). Il s'agit d'un cylindre de 3 cm de diamètre et d'une longueur de 3 cm. Elle pèse 405.6 g. On considère que la fraction d'uranium-235 contenue dans la cible est négligeable. Elle est placée 1.5 m après la cible de conversion, donc après le collimateur.

Un schéma du dispositif est donné sur la figure 6.3.

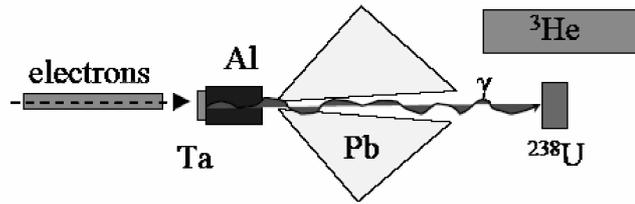


FIG. 6.3 – Schéma du dispositif expérimental à ELSA

6.2.2 Cycles d'irradiation

Lors de la série de mesures, l'énergie du faisceau a été fixée à 15 MeV et son intensité aux alentours de $1 \mu\text{A}$ avec une fréquence de répétition de 5 Hz. Trois campagnes d'irradiation ont été conduites. La première, composée de cycles de 5 minutes d'irradiation et de 5 minutes de décroissance a permis de mesurer les groupes les plus longs. Pendant 27 cycles le détecteur est situé à 35 cm de la cible d'uranium, puis pendant 16 cycles à 17 cm. Il est placé parallèlement à l'axe du faisceau. Le détecteur est resté à 17 cm pendant les autres mesures. Lors de l'analyse des spectres en temps, les deux spectres de l'irradiation de 300 s ont été sommés. La deuxième campagne, composée de 104 cycles de 5 secondes d'irradiation et de 100 secondes de décroissance permet de voir les groupes intermédiaires. La dernière, composée de 215 cycles d'une macro-impulsion faisceau de $140 \mu\text{s}$ suivie de 30 secondes de décroissance permet de voir les groupes à temps de vie court. Le tableau 6.1 résume les cycles d'irradiation.

Temps d'irradiation	Temps de décroissance	Nombre de cycles	Pas d'acquisition	Position du détecteur
300 s	300 s	27	100 ms	35 cm
300 s	300 s	16	100 ms	17 cm
5 s	100 s	104	12.5 ms	17 cm
$140 \mu\text{s}$	30 s	215	5 ms	17 cm

TAB. 6.1 – Résumé des irradiations à ELSA

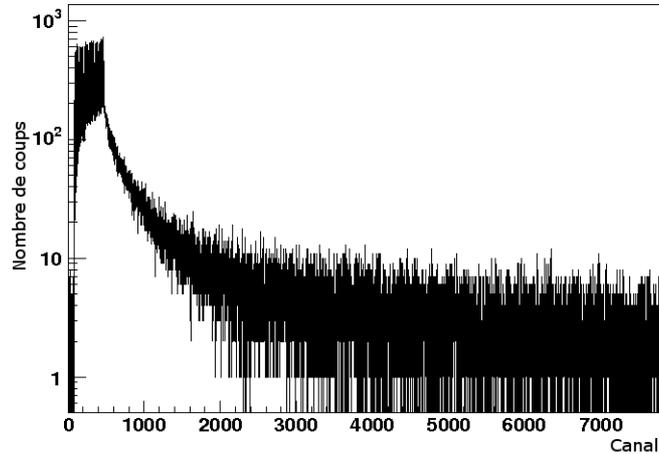


FIG. 6.4 – Spectre brut de l'irradiation de 5 s

La figure 6.4 présente le spectre brut obtenu lors de l'irradiation de 5 s. Lors de l'analyse, la partie mesurée avec la présence du faisceau pendant 5 s est supprimée. Les canaux sont ensuite convertis en temps.

6.2.3 Mesure du bruit de fond

La tension d'extraction est toujours présente, même lorsque le laser est arrêté et elle génère des électrons durant quelques millisecondes autour de l'impulsion laser. Lors de notre expérience nous avons pu constater que des électrons sont arrachés à la photocathode par la tension d'extraction et transportés jusqu'à la cible de conversion où ils produisent des photons de Bremsstrahlung même lorsque l'obturateur est fermé. Ces photons produisent des neutrons par photofission et des photoneutrons dans la cible d'uranium mais aussi dans la cible de conversion et le collimateur en plomb. Une partie des neutrons est détectée par le détecteur hélium-3 produisant du bruit de fond. L'origine du bruit de fond n'a été décelée qu'en fin d'expérience et n'a donc pas pu être supprimée lors des mesures. Le bruit de fond ainsi généré est tout de même plus faible que lors de l'expérience en fission induite par neutron.

Ce bruit de fond n'est gênant que pour l'irradiation très courte. Le pas en temps pour l'acquisition étant très court et la statistique faible, on voit nettement la structure du bruit de fond. La figure 6.5 montre la structure en temps du bruit de fond. Elle a été obtenue en moyennant les cinq dernières secondes de décroissance lors de l'irradiation courte après soustraction de la partie constante. Pour les autres irradiations, la structure n'est pas visible car sa contribution est faible devant le signal et le pas en temps utilisé est plus grand (12.5 et 100 ms contre 5 ms ici). Nous chercherons uniquement un bruit de fond constant car le regroupement des canaux, important en fin de spectre, lisse sa contribution.

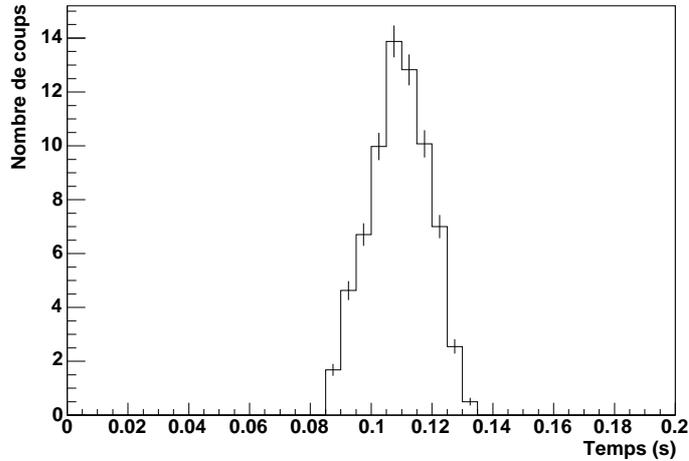


FIG. 6.5 – Bruit de fond lié à la haute tension sur la photocathode

Le bruit de fond a une composante constante qui a été mesurée à 0.22 cp/s et la valeur moyenne du bruit de fond dû à la haute tension vaut 1.4 cp/s.

Lors de prochaines mesures, il pourrait s'avérer intéressant de couper la tension d'extraction quand le laser est arrêté et ainsi supprimer la principale source de bruit de fond. S'il n'est pas possible de supprimer le bruit de fond, il sera intéressant de mesurer avec précision la structure du bruit de fond induit par les neutrons prompts avec une cible non irradiée. Elle pourra ainsi être soustraite directement aux spectres mesurés.

6.2.4 Fission induite par neutron

Dans le hall expérimental d'ELSA des neutrons sont créés par réactions photonucléaires dans le convertisseur et dans le collimateur. Des réactions photonucléaires dans la cible d'uranium créent également des neutrons prompts. Tous ces neutrons peuvent à leur tour induire de la fission sur les noyaux d'uranium et donc générer des neutrons retardés.

La simulation MCNPX estime que 2.5% des fissions sont induites par des neutrons. Une fission induite par neutron produit 0.044 neutron retardé et la photofission 0.031 [Nik65]. Environ 3.5% des neutrons retardés sont donc issus de la fission induite par neutron. Cette quantité est considérée comme négligeable lors de l'analyse.

6.3 Mesure du nombre total de neutrons retardés émis par photofission ($\bar{\nu}_d$)

Le nombre de neutrons retardés émis par fission peut être déterminé de deux façons différentes, sans avoir besoin de connaître les temps de vie des différents groupes, comme on l'a vu à la section 1.4.2 (p. 23) : après une irradiation longue (cycle de 5 minutes-5 minutes) ou après une irradiation très courte (une macro-impulsion-30 s). Il est nécessaire

de connaître tout d'abord le nombre de fissions qui ont eu lieu dans la cible d'uranium. Il faut connaître pour cela le flux de photons arrivant sur la cible d'uranium.

6.3.1 Mesures de flux

Pour normaliser le nombre de neutrons retardés émis par fission, il faut connaître le nombre de fission qui ont eu lieu dans l'échantillon. L'utilisation d'une chambre à fission située à l'emplacement de la cible d'uranium doit permettre de connaître le nombre de fissions dans la cible à condition de tenir compte des différentes masses et de l'atténuation. Une chambre à fission de 0.9 mg d'uranium-238 a été placée dans le faisceau à 7 m du convertisseur. Aucun signal provenant de la fission n'a pu être extrait car le détecteur est aveuglé par le flux de photons. Le problème est peut-être lié à l'ionisation du gaz par les photons qui empêche la détection des fragments de fission et/ou à l'ionisation des parois de la chambre et au transport des électrons ainsi créés.

Puisque les distributions de fragments de photofission sont mal connues, la mesure du nombre de fission ne peut être effectuée par spectrométrie gamma de la cible d'uranium après irradiation. Il est donc nécessaire de faire des simulations pour connaître le nombre de fissions dans la cible d'uranium. Pour valider les simulations, une mesure de flux par activation a été effectuée. Un barreau de cuivre naturel a été placé dans le flux de photons pendant 2 h. Ensuite l'activité du cuivre-62 ($T_{1/2}=9.7$ min) et du cuivre-64 ($T_{1/2}=12.7$ h) produits par réaction (γ,n) sur le cuivre-63 et le cuivre-65 est mesurée par spectrométrie gamma. Il est alors possible de calculer le flux de photons qui a activé la cible de cuivre et à partir de là, l'intensité faisceau. L'intensité obtenue à partir de la mesure d'irradiation est comparée à la valeur relevée sur l'accélérateur dans le tableau 6.2.

	Relevée	Déduite de l'activité du cuivre-62	Déduite de l'activité du cuivre-64
Intensité (μA)	1.07	0.81 ± 0.14	1.06 ± 0.14

TAB. 6.2 – Comparaison entre l'intensité du faisceau relevée et celle déduite de l'irradiation d'un barreau de cuivre

Lors de la mesure de l'activité du cuivre, nous avons été confronté à des problèmes de refroidissement du détecteur germanium utilisé. Ceci peut expliquer les écarts observés entre les calculs et le relevé. Il est important de noter que la décroissance γ du cuivre-62 et 64 est très peu alimentée (inférieure à 1%). L'idéal serait de mesurer la décroissance β^+ mais nous nous disposions pas de l'équipement adéquat. L'écart est plus important sur le cuivre-62 car son activité est plus faible et l'essentiel de son activité a disparu pendant le transfert de la cible vers le germanium.

Comme on peut le voir, la simulation permet de retrouver l'intensité relevée. Lors de la simulation, les sections efficaces utilisées sont celles préconisées par l'IAEA [IAE00]. Jusqu'à 15 MeV, l'évaluation correspond bien aux données expérimentales pour le cuivre-65. Dans le cas du cuivre-63, l'évaluation semble surestimée de quelques pourcents. Ces écarts sur les sections efficaces peuvent jouer sur nos simulations.

Dans la suite, nous n'utiliserons que l'intensité relevée.

6.3.2 Mesure après une irradiation longue

D'après la formule (1.14), $\bar{\nu}_d$ est égal au nombre de neutrons retardés par fission émis à $t = 0$. La formule (6.1) donne le nombre de neutrons retardés détectés par fission à partir du nombre de neutrons émis à $t = 0$ pour une irradiation longue. Comme le pas en temps est court (0.1 s) nous considérons que le nombre de neutrons émis à $t = 0$ est égal au nombre de neutrons collectés dans le premier canal divisé par la durée du canal. Ceci est justifié *a posteriori* par le fait que l'écart est inférieur à l'erreur statistique sur $N_{He3}(t = 0)$.

$$\bar{\nu}_d = Y_{dn}(t = 0) = \frac{N_{He3}(t = 0)}{N_{fiss} \varepsilon_{He3} \Omega_{He3}} \quad (6.1)$$

N_{He3}	nombre de coups par seconde dans le détecteur
N_{fiss}	nombre de fissions par seconde durant l'irradiation
ε_{He3}	efficacité intrinsèque du détecteur
Ω_{He3}	angle solide du détecteur

La simulation de l'installation par MCNPX donne $N_{fiss} = 1.75 \cdot 10^6$ fissions/s pour un faisceau d'une intensité de $1.07 \mu\text{A}$. La mesure des neutrons retardés après une irradiation de 5 minutes a été faite en deux fois, une première avec le détecteur placé à 35 cm de la cible d'uranium et une deuxième avec le détecteur placé à 17 cm. Un spectre séparé a été obtenu pour chaque mesure. Les deux spectres ont été sommé lors de l'analyse.

Pour la détermination du $\bar{\nu}_d$, nous n'avons pris en compte que les résultats de la deuxième mesure car la statistique est suffisante. De ce fait aucune correction, à cause de la modification de l'efficacité, n'est nécessaire. Pour la deuxième mesure, 528 ± 23 coups ont été détectés durant les cent premières millisecondes, soit par cycle :

$$N_{He3}(t = 0) = 330 \pm 14.4 \text{ cp/s}$$

Dans le cas de cette mesure, l'efficacité globale ($\varepsilon_{He3} \Omega_{He3}$) a été estimée à $6.2 \pm 0.31 \cdot 10^{-3}$ cp/n par les simulations MCNPX qui ont été validées par des mesures d'efficacité à l'aide de sources de neutrons. En calculant $\bar{\nu}_d$, on obtient :

$$\bar{\nu}_d = 0.0305 \pm 0.0020 \text{ n/fission}$$

Ce résultat est en accord avec le résultat de Nikotin [Nik65] obtenu avec des conditions expérimentales identiques : $\bar{\nu}_{dNik} = 0.031 \pm 0.004$ n/fission.

6.3.3 Mesure après une irradiation très courte

Après une irradiation très courte (temps d'irradiation très inférieur au temps de demi-vie des précurseurs), $\bar{\nu}_d$ est égal à l'intégrale du nombre de neutrons retardés émis par fission divisé par le temps d'irradiation (voir équation (1.18)). Dans le cadre de notre

6.3. NOMBRE TOTAL DE NEUTRONS RETARDÉS ÉMIS PAR PHOTOFISSION

expérience, ceci peut s'écrire sous la forme de l'équation (6.2).

$$\bar{\nu}_d = \frac{1}{T_{irr} N_{fiss} \varepsilon_{He3} \Omega_{He3}} \int_0^{\infty} (N_{He3}(t) - BF(t)) dt \quad (6.2)$$

T_{irr}	temps d'irradiation en seconde
N_{He3}	nombre de coups par seconde dans le détecteur
N_{fiss}	nombre de fissions par seconde durant l'irradiation
ε_{He3}	efficacité intrinsèque du détecteur
Ω_{He3}	angle solide du détecteur
BF	bruit de fond en coups par seconde

À la fin de la période de décroissance de la troisième série d'irradiation (irradiation : 140 μ s, décroissance : 30 s), on voit clairement apparaître des impulsions dans le signal. Il s'agit du bruit de fond généré par la haute tension appliquée à la photocathode (voir section 6.2.3). Une moyenne de ces impulsions sur les cinq dernières secondes a été effectuée. Elle a été soustraite au signal ainsi qu'une contribution constante du bruit de 0.0408 cp/s. On en déduit :

$$\int_0^{30} (N_{He3}(t) - BF(t)) dt = 11762 \pm 409 \text{ cp} \quad (6.3)$$

Il n'est pas nécessaire de corriger le fait que l'intégration ne soit pas infinie. Les rares précurseurs qui n'ont pas décréu durant les trente secondes d'arrêt du faisceau l'ont fait lors des cycles suivants.

Comme le dispositif expérimental est le même que pour l'irradiation longue, l'angle solide du détecteur est le même. L'efficacité globale ($\varepsilon_{He3} \Omega_{He3}$) vaut donc $6.2 \pm 0.31 \cdot 10^{-3}$ cp/n. Le nombre de fissions produites au cours de cette irradiation (N_{fiss}) est estimé à $6.3 \cdot 10^7 \pm 1.2 \cdot 10^5$ fissions. Nous obtenons donc le résultat suivant :

$$\bar{\nu}_d = 0.0301 \pm 0.0019 \text{ n/fission}$$

Ce résultat est en accord avec la valeur trouvée lors de l'irradiation longue (0.0305 ± 0.0020) et celle de Nikotin (0.031 ± 0.004).

6.3.4 Résultat

Des deux mesures précédentes nous pouvons déduire que :

$$\bar{\nu}_d = 0.0303 \pm 0.0020 \text{ n/fission}$$

Par ces mesures, nous confirmons les résultats de Nikotin et nous validons la méthode d'analyse. Il est important de noter que la barre d'erreur est nettement améliorée puisque Nikotin a une erreur de 13% et que la notre est réduite à 6.5%. Il semble difficile d'améliorer

encore la barre d'erreur obtenue car le facteur limitant est l'incertitude sur l'efficacité du détecteur qui est de l'ordre de 5%.

6.4 Spectre en temps des neutrons retardés

Lors de chacune des campagnes de mesure, nous cherchons à retrouver les 12 paramètres de la courbe de décroissance (a_i, λ_i) et le bruit par une approximation de moindres carrés. La technique d'analyse utilisée ici est la même que celle présentée à la section 5.4.1 (p. 110).

6.4.1 Comparaison avec d'autres données expérimentales

Étude graphique

Pour cette étude, nous avons tracé sur le même graphique les points expérimentaux et la courbe de décroissance paramétrée par les valeurs de Nikotin [Nik65] plus un bruit de fond constant. Le but de cette étude est de déterminer si les paramètres de Nikotin nous semblent *a priori* suffisants pour reproduire les données.

Commençons par l'irradiation la plus longue. Sur la figure 6.6, on voit que les valeurs trouvées par Nikotin correspondent bien à nos points expérimentaux. Mais sur ce graphique, les groupes 2 et 4 et le bruit prédominent. Il est donc difficile de déterminer si les valeurs pour les autres groupes sont correctes.

Des groupes avec des contributions plus faibles peuvent être mis en valeur par des irradiations plus courtes (voir section 5.4.1). En comparant les résultats de l'irradiation de 5 s aux données de Nikotin (figure 6.7), il nous semble que la contribution du groupe 3 est surestimée et/ou le temps de vie est trop grand; il est également possible que la contribution du groupe 4 soit sous-estimée en compensation. Ceci semble confirmé par la figure 6.8. On constate que le groupe 4 et probablement le groupe 5 sont sous-estimés. Sur la figure 6.8, le groupe 6 nous semble surestimé.

Comme on l'a vu sur la figure 6.6, ses valeurs correspondent bien aux points expérimentaux pour des irradiations longues. Les écarts ne sont pas marqués à cause de la faible contribution des groupes 3 et 5.

Les groupes 3 et 5 sont plus difficiles à extraire avec ce type d'irradiation car ils ne sont jamais prédominants dans le cas de la photofission de l'uranium-238. Si une valeur est sous-estimée, il est logique de penser qu'une autre sera surestimée pour compenser. On voit ainsi qu'il est indispensable de effectuer des irradiations de différentes durées pour extraire plus précisément les paramètres des différents groupes. Seule une analyse détaillée des spectres peut permettre de confirmer les impressions qui se sont dégagées de l'étude graphique.

Analyse comparative

Afin de pouvoir comparer nos mesures aux données de Nikotin, nous avons décidé de faire un ajustement numérique des paramètres des six groupes sur nos mesures en fixant

6.4. SPECTRE EN TEMPS DES NEUTRONS RETARDÉS

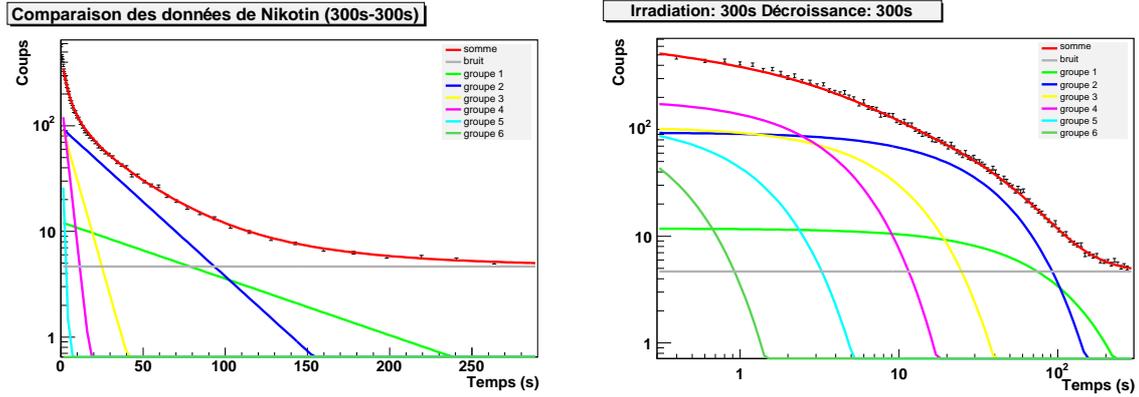


FIG. 6.6 – Comparaison de nos données expérimentales avec la paramétrisation en six groupes de Nikotin [Nik65] pour le cycle d’irradiation 300 s-300 s

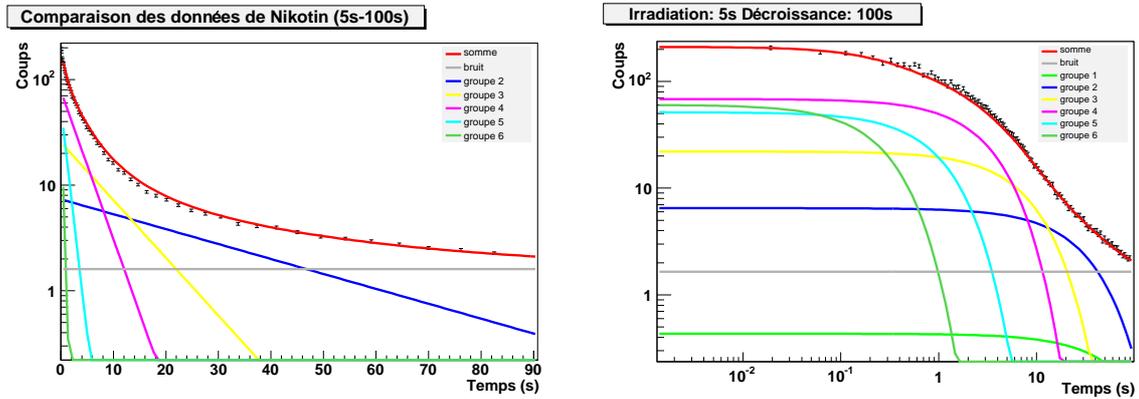


FIG. 6.7 – Comparaison de nos données expérimentales avec la paramétrisation en six groupes de Nikotin [Nik65] pour le cycle d’irradiation 5 s-100 s

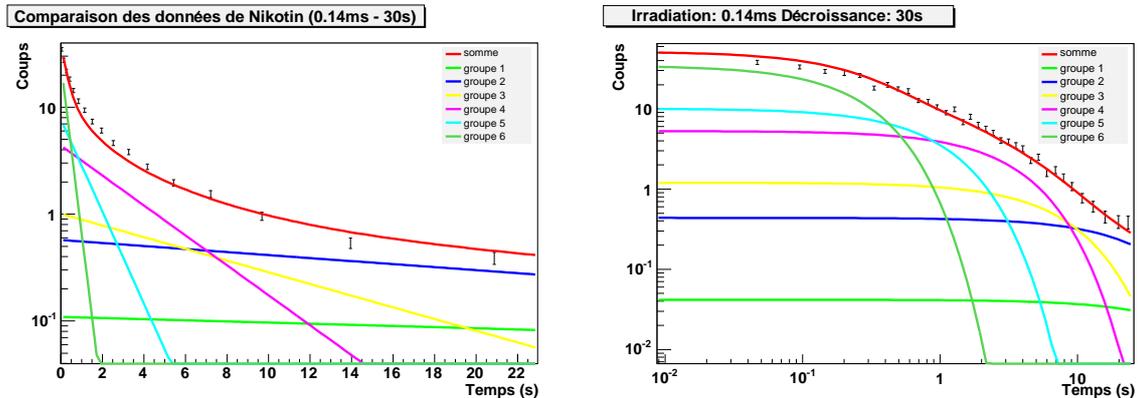


FIG. 6.8 – Comparaison de nos données expérimentales avec la paramétrisation en six groupes de Nikotin [Nik65] pour le cycle d’irradiation 140 μ s-30 s

les temps de vie des différents groupes aux valeurs de Nikotin. Les résultats obtenus pour les différentes mesures sont présentés dans le tableau 6.3.

	Irradiation		
	300s	5s	140 μ s
$a_1(\%)$	1.8\pm0.18		
$a_2(\%)$	16.5\pm0.4		
$a_3(\%)$	15.3\pm1.5	16.1\pm1.4	
$a_4(\%)$	43.1 \pm 3.6	37.2\pm1.4	31.4\pm5.6
$a_5(\%)$	11.4 \pm 5.5	16.4 \pm 1.9	18.0\pm2.5
$a_6(\%)$	11.7 \pm 5.0	12.0 \pm 2.0	10.4\pm0.9

TAB. 6.3 – Contributions relatives des différents groupes extraites des différentes mesures caractérisées par le temps d’irradiation (en gras les contributions validées)

Pour l’irradiation longue, seuls les groupes 1 à 3 peuvent être validés car les groupes 5 et 6 sont difficiles à extraire à cause du pas de 100 ms et de leur faible contribution. La contribution du groupe 4 peut contenir une partie de la contribution du groupe 5. Elle ne peut donc pas être validée par cette mesure. De même pour l’irradiation de 5 s, la séparation entre les groupes 5 et 6 reste difficile. Le groupe 1 a une contribution trop faible pour être visible sur cette mesure. On ne prendra donc que les valeurs des groupes 3 et 4. Pour l’irradiation très courte, on ne gardera que les valeurs des groupes 4 à 6.

Les contributions validées sont présentées en gras dans le tableau 6.3.

On choisit judicieusement la contribution relative de chaque groupe à partir des résultats précédents. Ce choix est présenté dans le tableau 6.4 en comparaison avec les données de Nikotin. On peut constater que nos barres d’erreur sont comparables à celles de Nikotin pour les groupes 1 et 2 et qu’elles sont plus grandes pour les groupes 3 à 5. Par contre on pourra considérablement réduire celle du groupe 6.

	Mesure	Référence [Nik65]
$a_1(\%)$	1.8 \pm 0.18	1.98 \pm 0.08
$a_2(\%)$	16.5 \pm 0.4	15.7 \pm 0.5
$a_3(\%)$	16.1 \pm 1.4	17.5 \pm 0.7
$a_4(\%)$	37.2 \pm 1.4	31.1 \pm 0.8
$a_5(\%)$	18.0 \pm 2.5	17.7 \pm 0.9
$a_6(\%)$	10.4 \pm 0.9	16.1 ⁺² ₋₅

TAB. 6.4 – Contribution relative des différents groupes

La principale source de bruit a été identifiée et pourra être supprimée lors de prochaines mesures. Nous espérons ainsi avoir plus de précision sur le groupe 1. Cela améliorera certainement les résultats sur les autres groupes.

Comme prévu lors de l'étude graphique, les contributions des groupes 3 et 6 sont inférieures à celles données par Nikotin et celle du groupe 4 est supérieure. Par contre, la différence au niveau du groupe 2 n'a pas été vue auparavant. Pour les groupes 4 et 6, les résultats obtenus sont clairement en dehors des barres d'erreurs. Les écarts observés correspondent bien à ceux vus lors de l'étude graphique.

Par une analyse de chacun des spectres, on pourra obtenir les paramètres des six groupes en les ajustant sur les données expérimentales.

6.4.2 Irradiation 5 min - décroissance 5 min

En fixant le temps de vie des différents groupes, nous avons pu constaté que nous retrouvons approximativement les résultats de Nikotin. Maintenant, nous allons extraire les paramètres (temps de vie et contribution) des différents groupes indépendamment. Pour cela, nous commençons par l'irradiation la plus longue : celle de 5 minutes.

Dans la suite de l'analyse, les paramètres des groupes sont libres sauf indication contraire.

Le pas en temps de l'acquisition pour cette mesure est de 100 ms. Il est donc difficile d'extraire le groupe 6 qui a une période aux alentours de 200 ms. Pour cette raison le temps de vie des groupes 5 et 6 est fixé aux valeurs de Nikotin soit 700 ms et 190 ms respectivement. Comme le bruit de fond est plus important que la contribution du premier groupe, on fixe la période du groupe 1 à 55.6 s. Le groupe 1 n'est composé que d'un seul précurseur, le brome-87, dont le temps de vie vaut 55.6 s, ce qui justifie notre approche.

L'irradiation est considérée comme infinie car le temps d'irradiation est très grand devant le temps de vie des précurseurs. Les valeurs pour les différents paramètres obtenus par ajustement numérique sur les données expérimentales sont présentées dans le tableau 6.5. Il s'agit des temps de vie et de la contribution relative en pourcent des différents groupes.

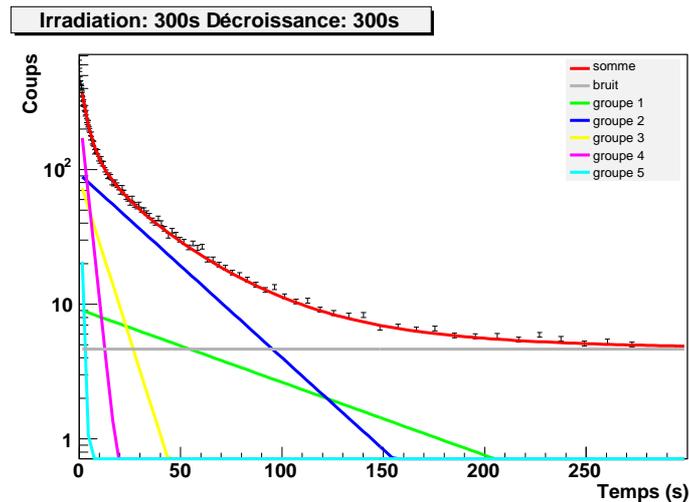


FIG. 6.9 – Extraction des groupes de neutrons retardés pour l'irradiation de 300 s

Groupe	$T_{1/2}$	$T_{1/2}$ [Nik65]	a_i (%)	a_i (%) [Nik65]
1	55.6	56.2±0.8	1.7±0.18	1.98±0.08
2	21.75±0.81	21.3±0.3	16.7±1.0	15.7±0.5
3	5.75±1.1	5.50±0.20	17.4±9.0	17.5±0.7
4	1.98±0.70	2.15±0.10	46.7±7.9	31.1±0.8

TAB. 6.5 – Valeurs des différents paramètres pour $\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV Bremsstrahlung) après une irradiation de 300 s

En étudiant l'article de Nikotin, nous avons appris que ses barres d'erreur sont égales à l'écart obtenu entre les résultats de différentes prises de mesures. Il semble que l'erreur statistique ne soit pas pris en compte lors de cette étude contrairement à notre analyse. C'est pour cette raison que nos barres d'erreurs sont en général plus importantes que les siennes.

On obtient un bon accord sur les temps de vie avec les données de Nikotin. On retrouve logiquement les mêmes différences que lors de l'analyse comparative : une contribution plus faible pour le groupe 3 et plus forte pour le groupe 4. Il est cependant difficile de connaître la contribution du groupe 4 avec ces conditions d'irradiation car la séparation avec les groupes 5 et 6 n'est pas aisée. Pour le groupe 2, la contribution est en accord avec Nikotin, le temps de vie est légèrement différent de celui utilisé lors de l'analyse comparative. Ceci explique les différences obtenues.

Avec des irradiations plus courtes, on doit pouvoir déterminer avec plus de précision les valeurs des groupes au temps de vie plus court.

Au vu des erreurs, nous ne retiendrons que les paramètres des groupes 1 et 2.

6.4.3 Irradiation 5 s - décroissance 100 s

Nous espérons améliorer la précision sur les groupes intermédiaires par ces mesures. Nous nous intéressons particulièrement au groupe 3 dont la contribution est toujours inférieure à celle du groupe 2 ou du groupe 4 dans le cas d'une irradiation infinie. Le fait que tous les précurseurs n'aient pas décréu est pris en compte lors de l'ajustement numérique.

Le pas en temps est plus faible que lors de la première irradiation, il est fixé à 12.5 ms. Pour cette raison, on peut espérer séparer les groupes 5 et 6.

Les résultats sont représentés dans le tableau 6.6 et sur la figure 6.10. On a fixé a_1 , T_1 , a_2 et T_2 aux valeurs trouvées lors de l'irradiation longue. Si on ne fixe pas la contribution du groupe 2, la valeur trouvée pour a_2 est compatible avec la valeur obtenue lors de l'irradiation de 300 s. On note que la contribution du groupe 4 est légèrement plus élevée que celle mesurée par Nikotin.

Nous ne retiendrons pas les résultats pour les groupes 5 et 6 car les barres d'erreur pourront certainement être améliorée en faisant une irradiation plus courte.

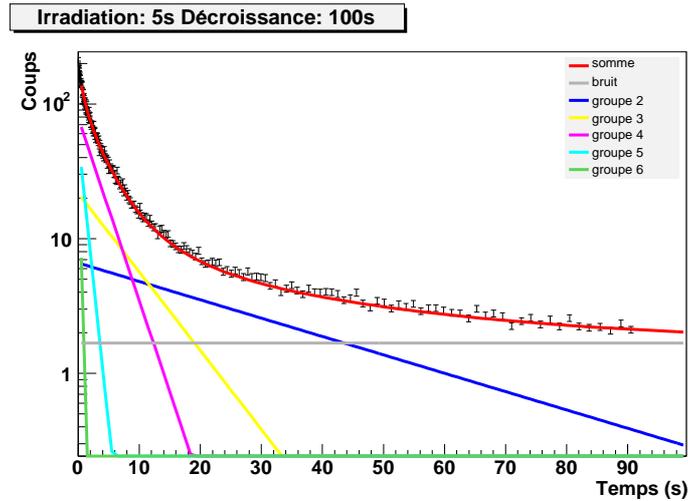


FIG. 6.10 – Extraction des groupes de neutrons retardés pour l’irradiation de 5 s

Groupe	$T_{1/2}$	$T_{1/2}$ [Nik65]	$a_i(\%)$	$a_i(\%)$ [Nik65]
3	5.01 ± 0.49	5.50 ± 0.20	17.9 ± 1.4	17.5 ± 0.7
4	2.07 ± 0.14	2.15 ± 0.10	37.7 ± 1.9	31.1 ± 0.8
5	0.572 ± 0.074	0.70 ± 0.06	17.7 ± 3.2	17.7 ± 0.9
6	0.196 ± 0.031	0.19 ± 0.02	8.4 ± 1.5	16.1^{+2}_{-5}

 TAB. 6.6 – Valeur des différents paramètres pour $\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV Bremsstrahlung) après une irradiation de 5 s

6.4.4 Irradiation 140 μs - décroissance 30 s

Par ces mesures, nous voulons extraire les paramètres des groupes à vie courte. Le pas en temps est donc choisi très court, de 5 ms. Les temps de vie et les contributions des groupes 1, 2, 3 et 4 ont été fixés aux valeurs précédentes pour réduire les erreurs lors de l’ajustement numérique des paramètres. Si on ne fixe pas la contribution du groupe 4, la contribution obtenue est compatible avec la valeur précédente mais avec une barre d’erreur plus grande.

Nous rappelons que le fait que tous les précurseurs n’aient pas décréu est pris en compte lors de l’ajustement numérique. Les résultats obtenus dans cette série d’irradiation sont présentés dans le tableau 6.7 et sur la figure 6.11.

De cette série de mesures, nous ne retiendrons que les paramètres des groupes 5 et 6. La statistique étant faible pour cette mesure, surtout pour les temps de vie longs, ceci est parfaitement compréhensible. De même pour avoir une meilleure précision sur le groupe 5 une plus grande statistique est nécessaire.

On voit que la contribution du groupe 6 est largement inférieure à la mesure de Nikotin et que la barre d’erreur est nettement améliorée. Ce résultat sera détaillé dans le chapitre 7

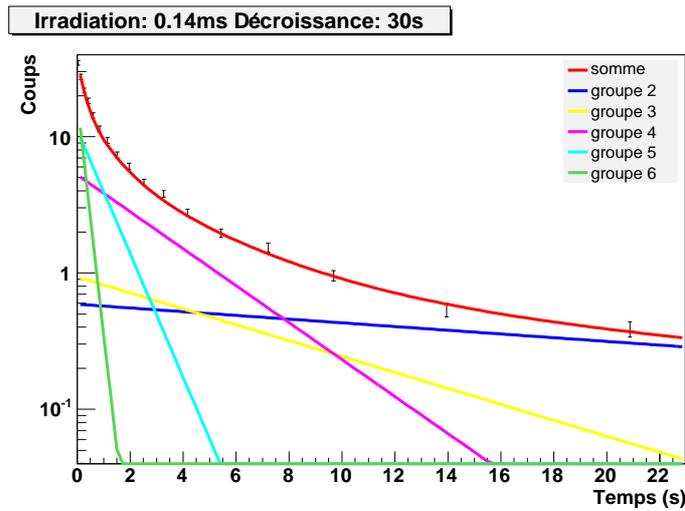


FIG. 6.11 – Extraction des groupes de neutrons retardés pour l’irradiation de 140 μs

Groupe	$T_{1/2}$	$T_{1/2}$ [Nik65]	$a_i(\%)$	$a_i(\%)$ [Nik65]
5	0.584 ± 0.051	0.70 ± 0.06	17.9 ± 2.5	17.7 ± 0.9
6	0.174 ± 0.019	0.19 ± 0.02	8.5 ± 0.6	16.1^{+2}_{-5}

TAB. 6.7 – Valeur des différents paramètres pour $\gamma + {}^{238}\text{U}$ (15 MeV Bremsstrahlung) après une irradiation de 140 μs

6.5 Résultat global

Afin d’avoir un ensemble cohérent de paramètres pour les différents groupes, nous avons refait l’analyse des prises de mesures. Nous avons fixé les paramètres a_5 , a_6 , T_5 et T_6 aux valeurs trouvées lors de l’irradiation de 140 μs et T_1 et T_2 aux valeurs trouvées lors de l’analyse de l’irradiation de 300 s. Nous avons ensuite refait l’analyse de l’irradiation de 5 s avec ces paramètres. Ayant les paramètres des groupes 3 à 6, nous les avons fixé et nous avons refait l’analyse de l’irradiation de 300 s.

À partir des trois séries de mesures, nous avons pu extraire les douze paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission de l’uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d’énergie maximale 15 MeV. Les douze paramètres retenus sont présentés dans le tableau 6.8. On peut voir que les différences portent principalement sur la diminution de la barre d’erreur et que la contribution relative des groupes 2 et 4 a légèrement diminué. Nous obtenons des écarts importants au niveau des groupes 4 et 6. Ces résultats seront détaillés dans le chapitre 7.

On effectue une étude graphique comme à la section 6.4.1, en traçant les courbes de décroissance paramétrées par les valeurs du tableau 6.8 sur les différentes mesures effectuées. Les résultats pour chacune des mesures sont présentés figures 6.12, 6.13 et 6.14.

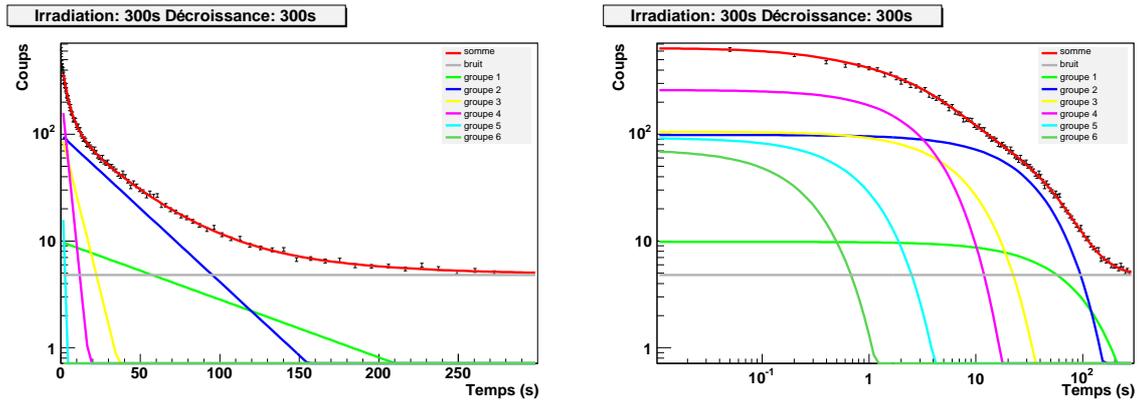


FIG. 6.12 – Comparaison entre la paramétrisation en six groupes obtenue ici et les données expérimentales pour l'irradiation de 300 s

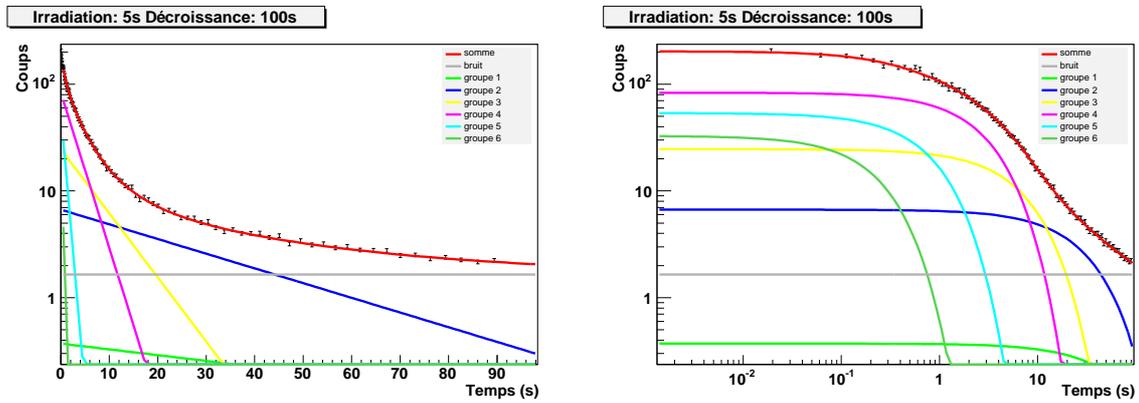


FIG. 6.13 – Comparaison entre la paramétrisation en six groupes obtenue ici et les données expérimentales pour l'irradiation de 5 s

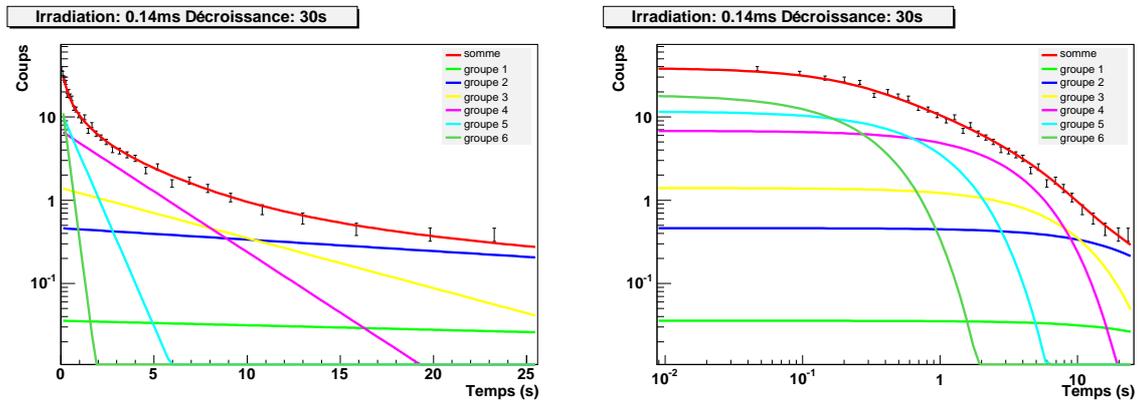


FIG. 6.14 – Comparaison entre la paramétrisation en six groupes obtenue ici et les données expérimentales pour l'irradiation de 140 μ s

Groupe	$T_{1/2}$	$T_{1/2}$ [Nik65]	a_i (%)	a_i (%) [Nik65]
1	55.6	56.2 ± 0.8	1.7 ± 0.2	1.98 ± 0.08
2	21.88 ± 0.66	21.3 ± 0.3	16.5 ± 0.5	15.7 ± 0.5
3	5.01 ± 0.49	5.50 ± 0.20	18.3 ± 0.7	17.5 ± 0.7
4	2.07 ± 0.14	2.15 ± 0.10	37.3 ± 0.8	31.1 ± 0.8
5	0.584 ± 0.051	0.70 ± 0.06	18.0 ± 0.4	17.7 ± 0.9
6	0.174 ± 0.019	0.19 ± 0.02	8.5 ± 0.8	16.1^{+2}_{-5}

TAB. 6.8 – Paramètres des six groupes de neutrons retardés issu de la photofission de l’uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d’énergie maximale 15 MeV

Comme on pouvait s’y attendre, nos paramètres reproduisent bien les données expérimentales. Ceci montre que les paramètres déterminés lors d’irradiations longues permettent de reproduire correctement les points expérimentaux pour des irradiations plus courtes. La fin de la courbe pour l’irradiation de $140 \mu\text{s}$ n’est pas très bien reproduite mais cela peut être lié à la soustraction du bruit de fond. Il est possible que l’on ait soustrait une partie du signal avec le bruit de fond.

6.6 Synthèse

Cette campagne de mesure a permis d’obtenir des paramètres précis pour la courbe de décroissance en neutrons retardés issus de la photofission en utilisant différentes durées d’irradiation. Nous avons en particulier observé des écarts notables par rapport aux données de Nikotin pour les contributions des groupes 4 et 6. Elle a également permis d’améliorer la barre d’erreur pour la valeur de $\bar{\nu}_d$ en la divisant par un facteur 2. L’objectif des 10% d’erreur sur les différents paramètres est atteint la plupart du temps. Les barres d’erreur peuvent être améliorées avec une statistique plus importante.

Ces résultats montrent qu’il est possible de mesurer la décroissance par neutrons retardés à ELSA. Cependant lors de prochaines mesures, réduire le bruit de fond sera intéressant. Ceci peut s’effectuer en coupant la haute tension lors de la phase de décroissance.

L’impact de ces mesures est présenté en détail au chapitre 7.

Troisième partie
Discussion et conclusion

Chapitre 7

Discussion et perspectives

Dans les deux parties précédentes nous avons exposé les différents résultats obtenus dans des domaines théoriques et expérimentaux. Dans ce chapitre, nous présentons l'impact de tels résultats ainsi que les futurs projets qui pourront être développés.

7.1 Comparaison des spectres expérimentaux de neutrons retardés issus de photofission

Rappelons dans le tableau 7.1, les résultats expérimentaux que nous avons obtenus pour la représentation en six groupes du spectre de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV. Nos valeurs sont comparées aux données de Nikotin [Nik65] obtenus avec une cible et un faisceau identique.

Groupe	$T_{1/2}$	$T_{1/2}$ [Nik65]	a_i (%)	a_i (%) [Nik65]
1	55.6	56.2 ± 0.8	1.7 ± 0.2	1.98 ± 0.08
2	21.88 ± 0.66	21.3 ± 0.3	16.5 ± 0.5	15.7 ± 0.5
3	5.01 ± 0.49	5.50 ± 0.20	18.3 ± 0.7	17.5 ± 0.7
4	2.07 ± 0.14	2.15 ± 0.10	37.3 ± 0.8	31.1 ± 0.8
5	0.584 ± 0.051	0.70 ± 0.06	18.0 ± 0.4	17.7 ± 0.9
6	0.174 ± 0.019	0.19 ± 0.02	8.5 ± 0.8	$16.1 \begin{matrix} +2 \\ -5 \end{matrix}$

TAB. 7.1 – Rappel des résultats de la mesure de neutrons retardés à ELSA comparés aux données de Nikotin

Les temps de vie obtenus pour les différents groupes sont assez proches. Par contre, les contributions relatives de certains groupes présentent des différences très nettes (groupe 4 et groupe 6). Cette différence avait déjà été observée par Kull [Kul70]. Ses mesures ont cependant été effectuées avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 8 et 10 MeV. Kull explique les différences observées par l'ouverture de la voie de fission de se-

conde chance quand l'énergie du faisceau d'électron est de 15 MeV. Le graphique 7.1 présente les contributions relatives des différents groupes suite à la photofission de l'uranium-238 pour les deux expériences de Kull, celle de Nikotin et la nôtre.

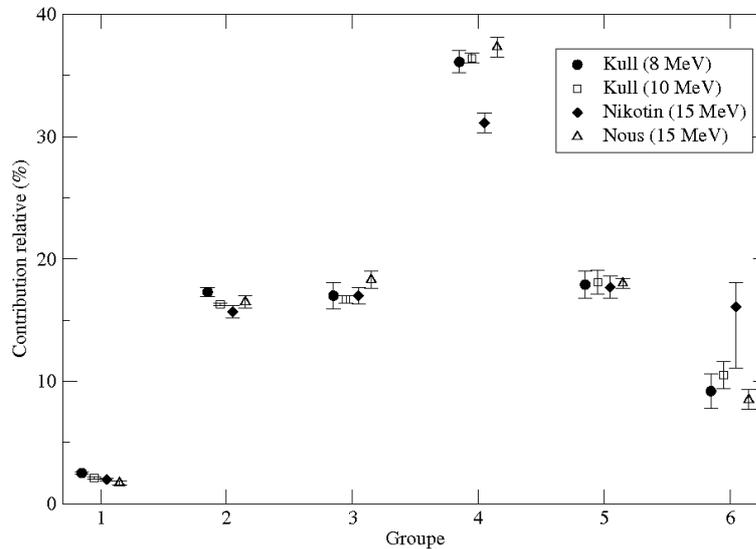


FIG. 7.1 – Contribution relative des différents groupes pour différentes énergies de Bremsstrahlung

Sur ce graphique, on peut constater que nos résultats sont en accord avec ceux de Kull bien que nous ayons utilisé des électrons de 15 MeV. On peut en déduire que la contribution de la fission de seconde chance est faible. Le seuil de fission de seconde chance a en effet été mesuré à 12.3 MeV par Caldwell [Cal80]. Des fissions de seconde chance ont donc bien lieu dans notre cible mais leur contribution à l'émission de neutrons retardés est trop faible pour être observée. En effet, environ 15% des fissions induites par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV sont des fissions de seconde chance d'après les simulations MCNPX. On peut en outre penser que les fissions de seconde chance produisent des produits de fission moins riches en neutrons, la contribution des groupes à vie courte devrait donc diminuer.

Les différences peuvent s'expliquer par la méthode expérimentale employée. Tout comme Kull, nous avons effectué des irradiations de différentes durées afin d'extraire les groupes à vie courte. Il semble que Nikotin n'ait effectué que des irradiations très longues de manière à avoir tous les précurseurs à l'équilibre. Notons également que la contribution du groupe 6 est entachée d'une grande barre d'erreur. Ceci est certainement lié à la durée d'irradiation choisie. Dans ces conditions, obtenir les paramètres des derniers groupes est difficile. À cause de la durée d'irradiation choisie, Nikotin semble avoir sous-estimé la contribution du groupe 4 et surestimé celle du groupe 6.

Une mesure du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission du thorium-232 est prévue. Lors de cette expérience, nous espérons confirmer nos hypothèses en comparant nos résultats à ceux de Nikotin.

Au vu de nos résultats, il semble que les valeurs de Nikotin doivent être corrigées. La contribution relative de chaque groupe de neutrons retardés est constante pour la photofission de l'uranium-238 si on utilise des faisceaux de Bremsstrahlung ayant une énergie maximale comprise entre 8 et 15 MeV. Contrairement à ce qu'annonce Kull dans son article, la contribution de la fission de seconde chance n'est pas visible lorsque l'on utilise un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV.

7.2 Comparaison aux prédictions de HMS-ALICE et ABLA

Comme on l'a vu à la section 3.2.3 (p. 72), il est possible de prédire les spectres de neutrons retardés à partir des distributions de fragments de fission fournies par ABLA et HMS-ALICE. Il nous a semblé intéressant de comparer ces prédictions à nos résultats expérimentaux. Cette comparaison est présentée dans le tableau 7.2.

$\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV)						
Groupe	$T_{1/2}$			a_i (%)		
	ABLA	HMS-ALICE	Notre mesure	ABLA	HMS-ALICE	Notre mesure
1	55.6	55.6	55.6	0.9	0.7	1.7 ± 0.2
2	22.36	21.91	21.88 ± 0.66	17.1	7.1	16.5 ± 0.5
3	5.43	5.14	5.01 ± 0.49	15.5	9.5	18.3 ± 0.7
4	1.86	1.54	2.07 ± 0.14	45.5	28.1	37.3 ± 0.8
5	0.47	0.465	0.584 ± 0.051	15.5	32.5	18.0 ± 0.4
6	0.19	0.173	0.174 ± 0.019	5.4	22.1	8.5 ± 0.8
			$\bar{\nu}_d$	3.033	4.602	3.03 ± 0.2

TAB. 7.2 – Comparaison des prédictions de ABLA et HMS-ALICE et de nos résultats expérimentaux pour la représentation en six groupes du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV

Les temps de vie obtenus avec les différents codes sont cohérents avec nos résultats. Les résultats obtenus par ABLA pour les contributions relatives et le $\bar{\nu}_d$ sont encourageants. Par contre, les résultats sont nettement moins bons pour HMS-ALICE. On pouvait s'attendre à un tel résultat puisque le modèle utilisé dans HMS-ALICE est purement phénoménologique tandis que celui de ABLA est semi-empirique. Le modèle de HMS-ALICE [Mas02] n'est en outre pas ajusté pour la photofission. Ces différences ont déjà été observées lors de l'étude des neutrons retardés produits par spallation dans une cible de plomb [Rid05]. Dans le cas de la spallation, le modèle de Mashnik [Mas00] prédit des distributions isotopiques plus larges que celles de ABLA. Or c'est ce modèle qui est utilisé dans HMS-ALICE. Les spectres de neutrons retardés permettent d'étudier le côté riche en neutrons de ces distributions. On peut déduire des premières observations que le

modèle de Mashnik prédit des distributions trop larges pour les noyaux riches en neutrons dans le cas de la photofission.

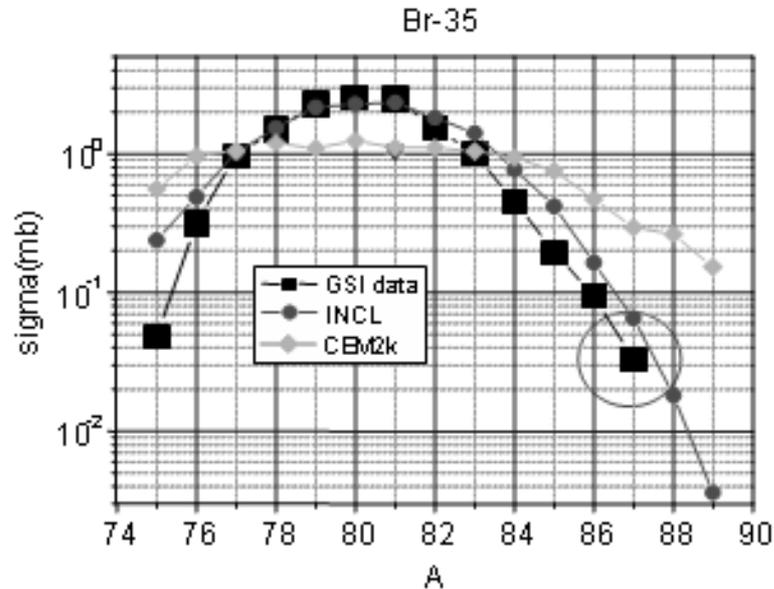


FIG. 7.2 – Comparaison des prédictions de INCL et de Mashnik aux données expérimentales de GSI pour la distribution isotopique du brome dans le cas de la spallation du plomb par des protons de 1 GeV

La figure 7.2 présente une comparaison des prédictions de INCL (modèle utilisé avec ABLA) et de CEM2k (modèle utilisé dans HMS-ALICE) avec les données expérimentales lors de la spallation du plomb avec des protons de 1 GeV pour la distribution isotopique du brome. Un seul précurseur de neutrons retardés a été mesuré : le brome-87. Il est entouré sur la figure 7.2. Pour cet isotope, on constate un écart d'un facteur 5 entre les deux modèles. INCL donne des résultats plus proches des données expérimentales. Ceci permet de comprendre pourquoi les prédictions des spectres de neutrons retardés sont si différentes. On peut néanmoins conclure que les résultats de ABLA semblent plus fiables que ceux de HMS-ALICE.

Afin d'améliorer les modèles, il semble nécessaire d'étudier la contribution relative de chaque isotope dans chaque groupe. Ceci est possible à partir des spectres d'émission de neutrons retardés. En mesurant les neutrons retardés en six groupes, le taux de production du brome-87 est également mesuré car il est le seul précurseur du groupe 1. En connaissant le nombre de neutrons retardés émis par ce groupe, il est possible d'en déduire la quantité de brome-87 créé. Dans le cas de notre mesure, la probabilité cumulée de production du brome-87 est de 2.02% (taux d'embranchement de 2.54%). Pour ABLA, elle est de 1.09% et pour HMS-ALICE de 1.31%. On peut ainsi constater que la production du brome-87 est sous-estimée dans les deux cas. Une seule valeur n'est cependant pas suffisante pour améliorer les modèles.

En se basant sur le principe d'un seul précurseur par groupe, Isaev [Isa02] explique que selon le type de modèle à 12 groupes (modèle du brome ou de l'iode) il est possible de

mesurer les probabilités cumulées de production des isotopes du brome pour les masses 87, 88, 89, 91 et des isotopes de l'iode pour les masses 137, 138, 139 et 140. Ce modèle est présenté dans le tableau 7.3. Avec de telles données, il serait possible de tester un peu mieux les modèles pour la partie riche en neutrons des distributions isotopiques.

Modèle à 6 groupes	Modèle de l'iode		Précurseurs	Temps de vie (s)	Modèle du brome	
	Groupe	Période			Groupe	Période
1	1	55.69	⁸⁷ Br	55.69	1	55.69
	2	24.50	¹³⁷ I	24.50	2	24.50
2	3	16.30	⁸⁸ Br	16.30	3	16.30
	4	6.46	¹³⁸ I	6.46	4	6.37
3	5	4.67	⁹³ Rb	5.93		
	4	6	2.76	⁸⁸ Br	4.38	5
4		7	2.30	⁹⁴ Rb	2.76	6
	4	8	2.056	¹³⁹ I	2.30	7
⁸⁵ As				2.08		
5	11	0.443	^{98m} Y	2.00	8	1.289
			⁹³ Kr	1.289		
5	9	1.116	¹⁴⁴ Cs	1.002	9	0.942
	10	0.860	¹⁴⁰ I	0.860		
6	12	0.195	⁹¹ Br	0.542	10	0.542
			⁹⁵ Rb	0.384	11	0.384
6	12	0.195	⁹⁶ Rb	0.203	12	0.195
			⁹⁷ Rb	0.170		

TAB. 7.3 – Modèle à 12 groupes [Isa02]

Les mesures de spectres d'émission de neutrons retardés effectuées à ELSA ne sont malheureusement pas assez précises pour effectuer cette étude. Il est toutefois prévu lors de futures mesures d'avoir une précision suffisante pour étudier les spectres sous forme de six et de douze groupes ou plus. Les modèles pourront alors être confrontés aux données expérimentales.

7.3 Améliorations apportées aux codes de calcul

Lors de la construction de la bibliothèque d'activation photonucléaire, nous avons comparé les résultats de HMS-ALICE et de ABLA à des données expérimentales. Nous nous sommes aperçu que ces codes pouvait être modifiés afin d'améliorer leurs résultats.

Cela a été particulièrement le cas de HMS-ALICE. Nous nous sommes aperçu que la section efficace de photoabsorption était mal modélisée pour les noyaux déformés. En collaboration avec Marshall Blann, l'auteur du code, elle a été modifiée et les résultats obtenus ont été considérablement améliorés. On peut voir les conséquences de la modification de la section efficace de photoabsorption sur le calcul de sections efficaces photonucléaires de l'uranium-235 et 238 à la figure 7.3.

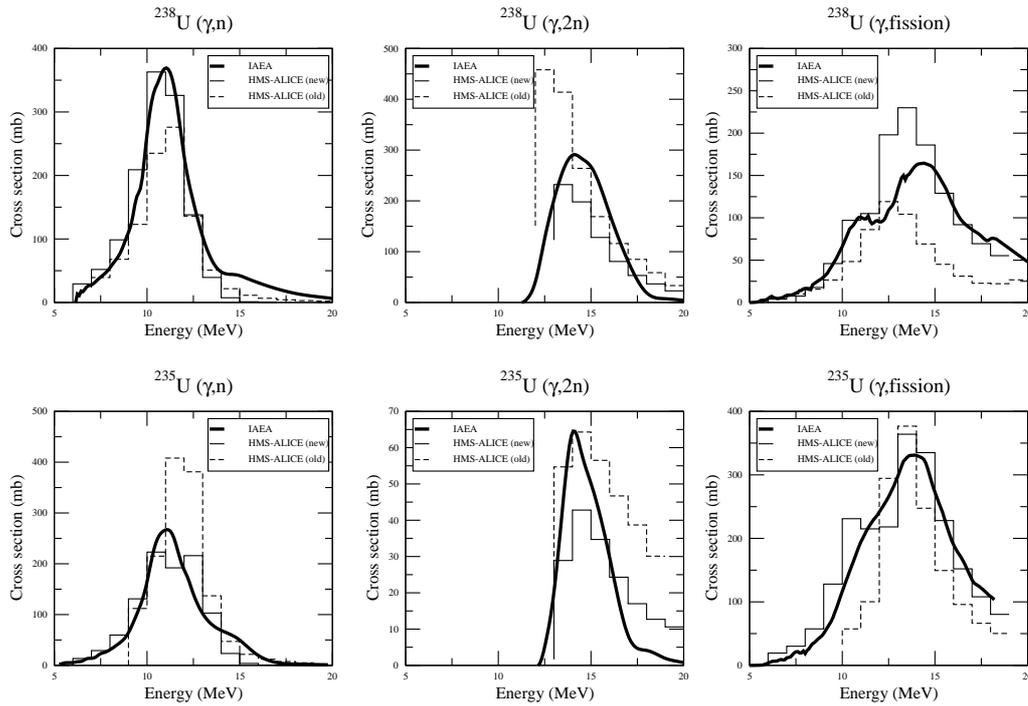


FIG. 7.3 – Conséquence de la modification de la section efficace de photoabsorption pour l’uranium-235 et l’uranium-238

Les calculs de distributions de produits de photofission pourrait être améliorés en réduisant l’influence de l’effet pair-impair.

La section efficace de photoabsorption de ABLA a été modifiée afin d’utiliser les paramètres RIPL-2. Nous nous sommes aperçu que les courbes de potentiel utilisées pour le calcul des distributions de produits de fission devait être ajustées élément par élément.

L’étude des spectres d’émission de neutrons en douze groupes devrait permettre d’obtenir plus d’information sur ces distributions et d’améliorer encore les résultats de ces codes.

7.4 Influence de l’énergie d’excitation sur la production de neutrons retardés

En regardant le nombre de neutrons retardés émis en fonction de l’énergie de la particule incidente, on constate une chute d’environ 20% après l’ouverture de la fission de seconde chance dans le cas de la fission induite par neutron. Le noyau qui fissionne lors de la fission de seconde chance possède en effet un neutron de moins. Les produits de fission sont donc moins riches en neutrons et émettent donc moins de neutrons retardés. La variation du nombre de neutrons retardés pour la fission de l’uranium-238 induite par neutron est présentée sur la figure 7.4.

Sur cette figure on constate tout d’abord que notre mesure effectuée avec des neutrons de 2 MeV ($\bar{\nu}_p = 4.56 \pm 0.62$ n/100 fissions) et présentée au chapitre 5 est en accord avec les

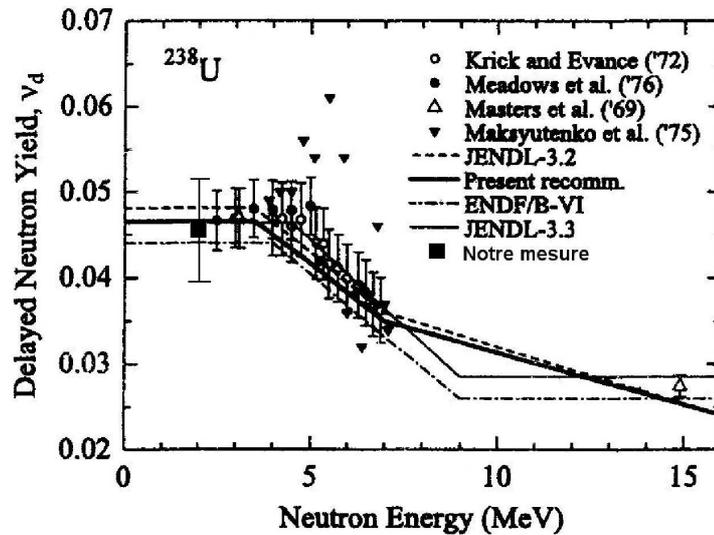


FIG. 7.4 – Nombre de neutrons retardés émis par l'uranium-238 suite à la fission induite par neutron en fonction de l'énergie du neutron incident

évaluations des différentes bibliothèques. La barre d'erreur est néanmoins plus importante que celle des autres données. Il s'agit de la première mesure avec des neutrons de 2 MeV. Ensuite lorsque l'énergie des neutrons augmente, le nombre de neutrons retardés diminue. Il s'agit là d'une constante pour tous les noyaux en fission induite par neutron.

Dans le cas de la photofission, cet aspect n'a pas été constaté (figure 7.5). Toutefois, la plupart des mesures ont été effectuées avec des énergies inférieures au seuil de fission de seconde chance. Les différentes mesures [Mos62, Nik65, Cal80] donnent des valeurs constantes en fonction de l'énergie des électrons, autour de la valeur 3. ABLA prédit pourtant une diminution de l'ordre de 20%.

On constate qu'il est nécessaire d'effectuer des mesures à d'autres énergies pour confirmer ces hypothèses. Il est de plus nécessaire d'avoir des barres d'erreur faibles car les variations sont petites. Pour la mesure du nombre de neutrons retardés émis lors de la photofission de l'uranium-238, la barre d'erreur est de 6.6%. Ceci devrait donc être suffisant pour mesurer ces variations.

Une mesure des spectres de neutrons retardés de l'uranium-238 produits par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 19 MeV est prévue à ELSA afin de voir cette diminution. Nous espérons également voir ce phénomène lors de l'étude des spectres d'émission de neutrons retardés issus de la photofission du thorium-232.

Il est évident qu'une mesure avec un faisceau de photons monoénergétiques mettrait plus facilement ce phénomène en évidence. Nous n'avons toutefois pas ce type de faisceau à notre disposition.

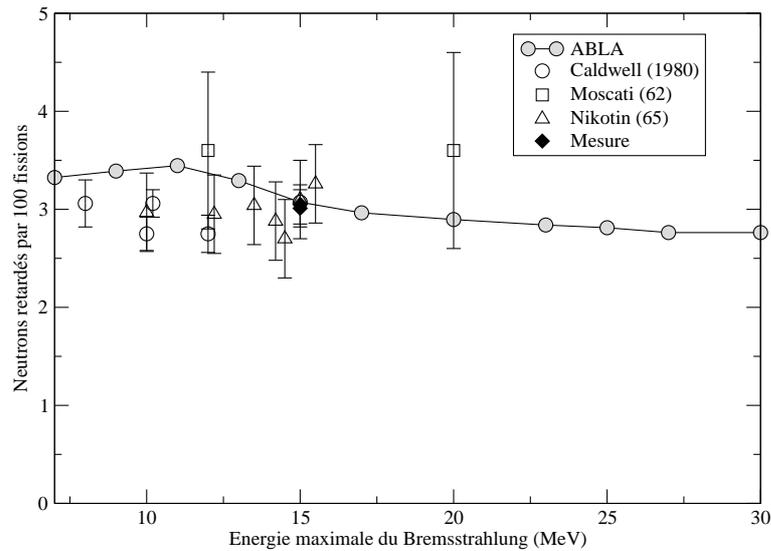


FIG. 7.5 – Nombre de neutrons retardés émis par l’uranium-238 issus de photofission en fonction de l’énergie maximale du Bremsstrahlung

7.5 Photofission et barrière

Lors de l’évaluation des sections efficaces photonucléaires pour les actinides avec GNASH, section 3.1.5, nous avons dû modifier les barrières de fission afin de reproduire les données expérimentales. La valeur de l’énergie de ces barrières a été modifiée lors de leur ajustement sur les données expérimentales pour les noyaux suivants : uranium-238, uranium-237, uranium-235, uranium-234, plutonium-239, neptunium-237, neptunium-236.

Isotope	neutron		gamma	
	E_1	E_2	E_1	E_2
uranium-238	6.123	5.923	5.65	5.75
uranium-237	5.77	5.52	6.1	5.7
uranium-235	5.56	5.46	9.4	10
uranium-234	5.25	5.15	4.9	5.2
plutonium-239	5.75	5.35	5.63	4.98
neptunium-237	6.2	5.5	6.05	5.6
neptunium-236	6.4	5.9	5.9	5.4

TAB. 7.4 – Énergie des barrières de fission utilisées lors de l’évaluation GNASH

Le tableau 7.4 présente les différentes valeurs de l’énergie des barrières de fission utilisées lors des évaluations avec GNASH en fission induite par neutron et en photofission. Il est difficile d’en tirer une règle systématique. Remarquons tout d’abord que les valeurs pour l’uranium-235 sont nettement plus grandes que celles des autres barrières de fission. Dans ce cas, les données expérimentales sont difficiles à reproduire avec une barrière

plus faible. Nous avons choisi comme données expérimentales les réévaluations de Varlamov [Var99]. Si nous avons choisi les données de Caldwell [Cal80], l'énergie de la barrière de fission aurait été plus basse car la section efficace de photofission est plus élevée. Au vu des barrières de fission de l'uranium-235, on peut penser qu'effectuer une nouvelle mesure de section efficace pourrait être intéressante afin de déterminer les valeurs à choisir. Pour les autres noyaux, les écarts entre les différentes barrières de fission utilisées vont de 50 à 500 keV. Il s'agit d'une diminution de la barrière sauf dans le cas de l'uranium-237. On peut ainsi constater que la fission dépend de la particule incidente même à faible énergie d'excitation. L'hypothèse selon laquelle la fission ne dépend que de l'énergie d'excitation et du noyau composé est donc trop simpliste.

Il semble qu'*a priori*, la barrière s'abaisse légèrement lors de la photofission. Ce phénomène est peut-être dû au fait qu'un neutron apporte au noyau un moment angulaire plus important qu'un photon. Il serait intéressant d'étudier ce phénomène plus précisément.

7.6 Utilisations possibles de la bibliothèque d'activation

La section 3.4 présente les applications pour lesquelles la bibliothèque d'activation photonucléaire a déjà été utilisée. La bibliothèque peut cependant être utilisée pour d'autres applications que l'étude d'activation et le démantèlement. Comme elle contient les distributions des produits de photofission, il est possible de l'utiliser pour effectuer des calculs de transmutation d'actinides mais aussi pour l'étude de projets utilisant la photofission tels que la production de faisceaux d'ions radioactifs, le pilotage de réacteurs par un faisceau d'électron ou d'autres concepts innovants.

7.6.1 Transmutation d'actinides dans un flux de photon

Comme on l'a vu section 3.1.5 (p. 58), il est possible de mesurer le taux de transmutation de certains actinides. Kase [Kas92] n'a regardé que la disparition du neptunium-237 – et d'autres actinides – par photofission. Il serait intéressant de regarder toute la chaîne de transmutation en incluant les réactions (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ entre autres. L'influence des photoneutrons devrait être prise en compte.

Il est finalement important de regarder la radioactivité de l'échantillon, en particulier celle due aux produits de fission ainsi que son évolution dans le temps. Les produits de fission sont en effet les contributeurs majeurs de la radioactivité au début du refroidissement. Pour ce genre de travail, une bibliothèque d'activation photonucléaire semblable à celle développée ici est indispensable.

7.6.2 Production de faisceaux d'ions radioactifs

La production de faisceaux d'ions radioactifs par photofission a largement été étudiée, en particulier pour les projets SPIRAL-II, EURISOL et ALTO. Elle a même été retenue dans le cadre du projet ALTO [Ibr03]. La plupart des calculs effectués ont pris comme base la fission induite par neutron qui produit le même noyau composé. Avec la bibliothèque,

on dispose désormais de données pour de nombreux actinides et pour trois énergies de Bremsstrahlung. Il serait ainsi possible d'optimiser le taux de production d'un isotope précis en jouant sur la cible de photofission et l'énergie des électrons. À notre connaissance, il n'existe aucun outil équivalent pour ce genre d'étude.

7.6.3 RACE

Le projet RACE (*Reactor Accelerator Coupling Experiment*) est une expérience d'étude d'un réacteur sous-critique couplé à un accélérateur d'électrons. Les neutrons manquants seraient fournis par photofission ou production de photoneutrons sur des actinides placés dans le coeur. Il est important de connaître le flux de neutrons produits par réactions photonucléaires, mais aussi l'évolution du coeur pour pouvoir le piloter. La bibliothèque est indispensable pour faire les calculs d'évolution.

Conjointement des études de transmutation pourraient être menées. Notons que l'étude de la transmutation dans un flux de photons et de neutrons est désormais possible grâce au développement de la bibliothèque d'activation photonucléaire.

7.6.4 Concept de mini-irradiateur

Le mini-irradiateur est un outil d'irradiation neutronique pour tester des échantillons de très petite taille. Ce concept a été développé au CEA [Kle03, Rid02]. L'échantillon est déposé au coeur d'une cible annulaire d'uranium-238. La cible est entouré de plomb. Un schéma du mini-irradiateur est présenté sur la figure 7.6. Un flux de neutrons rapides est produit par photofission et production de photoneutrons dans la cible. Il n'y a pas de produits fissiles donc pas de risque lié à la criticité. L'intérêt d'un tel concept est essentiellement dû au moindre coût de l'accélérateur d'électrons par rapport à un accélérateur de protons utilisé pour produire une source intense de neutrons. L'étude a porté uniquement sur l'optimisation du flux de neutrons.

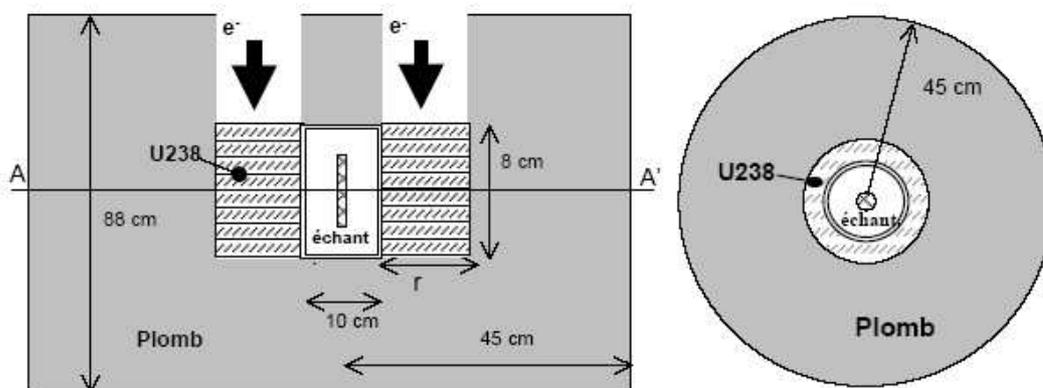


FIG. 7.6 – Schéma du mini-irradiateur

Il serait désormais intéressant d'étudier l'impact du flux de photons sur les performances du mini-irradiateur. Des calculs d'évolution sont pour cela nécessaires. Le pro-

blème du démantèlement se pose de plus en plus, et ce avant même la construction de telles installations.

7.7 Détection d'actinides par activation

Utiliser les réactions photonucléaires pour faire du contrôle non destructif est une idée qui date des années 1970 [Run73]. Avec l'augmentation de la puissance des accélérateurs d'électrons, cette idée a été développée pour contrôler le trafic de matériaux nucléaires [Jon00, Cha03a] mais aussi les colis de déchets [Gma00, Lyo00]. Un projet de contrôle non destructif des colis de déchets à l'échelle industrielle en utilisant la photofission a été lancé auprès de l'accélérateur SAPHIR au CEA/Saclay. Ce projet utilise les neutrons retardés et la décroissance gamma des produits de fission.

Il semble évident que l'utilisation des informations apportées par la bibliothèque pour les produits de fission et les nouvelles mesures de spectres d'émission de neutrons retardés permettrait d'améliorer les résultats d'un tel projet.

7.8 Conclusion

Le travail effectué au cours de cette thèse a ouvert de nombreuses portes dans les domaines théoriques, expérimentaux et appliqués.

Grâce aux évaluations effectuées avec GNASH, nous avons pu voir qu'il est nécessaire de modifier les énergies des barrières de fission dans le cadre de la photofission par rapport à celles utilisées en fission induite par neutron. Aucune règle systématique simple n'a pu être trouvée. Pour le moment ce phénomène ne peut être expliqué de manière satisfaisante. De plus, les barrières choisies lors de l'évaluation de l'uranium-235 sont très différentes de celles utilisées en fission induite par neutron. Il est possible que les données expérimentales qui nous ont servi lors de l'évaluation soient sous-estimées. Nous recommandons donc une nouvelle mesure de la section efficace de photofission de l'uranium-235 afin de vérifier la réévaluation de Varlamov [Var99].

Les mesures du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 ont montré qu'il est possible de mesurer la valeur du $\bar{\nu}_d$ avec une précision inférieure à 7% et les paramètres des différents groupes avec une précision de l'ordre de 10%. Nous avons aussi corrigé les résultats de Nikotin [Nik65]. À partir de cette expérience, d'autres mesures vont être effectuées afin de confirmer la diminution du $\bar{\nu}_d$ avec l'énergie d'excitation du noyau mais aussi afin d'effectuer une mesure systématique des spectres d'émission de neutrons retardés. Cette campagne aura certainement des applications dans des projets de contrôle non destructif de matériaux nucléaires utilisant les neutrons retardés issus de photofission.

La création de la bibliothèque photonucléaire va permettre de développer tous les projets nécessitant des calculs d'évolution dans un flux de photons ou des distributions de fragments de photofission. Ceci concerne en particulier la production de faisceaux d'ions radioactifs et le projet RACE.

Chapitre 8

Conclusion

Les récents progrès faits sur les accélérateurs d'électrons en terme d'énergie et de puissance ont permis de développer de nombreuses applications des réactions photonucléaires. Certaines nécessitent entre autres une bibliothèque d'activation photonucléaire ou la connaissance des spectres d'émission de neutrons retardés issus de photofission. Ces deux points ont été développés au cours de cette thèse.

La bibliothèque a pu être créée grâce à l'utilisation de différents codes de calcul et à des évaluations déjà existantes. Elle contient les sections efficaces d'activation pour plus de 600 noyaux et les distributions de produits de fission pour 30 actinides. Elle couvre un domaine en énergie allant de 0 à 25 MeV. D'autres résultats importants ont été obtenus en parallèle. Le pouvoir prédictif de HMS-ALICE a été amélioré grâce à la nouvelle modélisation de la section efficace de photoabsorption pour les noyaux déformés. Les évaluations des sections efficaces photonucléaires de six actinides effectuées avec GNASH vont être incluses dans la bibliothèque ENDF-B VII, à savoir l'uranium-235, l'uranium-238, le neptunium-237, le plutonium-239, le plutonium-240 et l'américium-241. Lors des évaluations des sections efficaces photonucléaires, nous nous sommes aperçus que les barrières de fission varient en fonction de la particule qui induit la fission. Nous pensons qu'il pourrait être intéressant d'étudier les causes d'un tel phénomène, visible même à basse énergie d'excitation.

Pour le calcul des distributions des produits de fission, deux codes ont été utilisés : HMS-ALICE et ABLA. En comparant les résultats fournis par ces codes aux données expérimentales, nous avons constaté que les résultats de ABLA sont bien meilleurs que ceux de HMS-ALICE. Pour utiliser ABLA, il est nécessaire d'ajuster certains paramètres sur les données expérimentales. Ces paramètres sont valables pour tous les isotopes d'un élément. Pour compléter la bibliothèque, nous avons donc utilisé ABLA pour les isotopes de l'uranium et HMS-ALICE pour les autres éléments à cause du manque de données expérimentales. Les résultats obtenus ne sont par contre pas assez précis pour pouvoir prédire de manière précise le spectre d'émission de neutrons retardés.

Cette bibliothèque a déjà été utilisée lors de l'étude de l'activation des bétons pour le démantèlement du LURE. Quelques calculs de transmutation dans un flux de photons ont également été effectués. Elle sera mise à disposition grâce à la NEA (*Nuclear Energy Agency*) début 2006. Il est prévu d'intégrer la totalité de la bibliothèque dans CINDER'90. Son extension jusqu'à 150 MeV, en collaboration avec le LANL (*Los Alamos National Laboratory*), est également prévue.

Parallèlement au développement de la bibliothèque, une campagne de mesure des spectres d'émission des neutrons retardés pour la photofission des actinides a été entreprise. Après la définition, l'optimisation et l'étalonnage du détecteur, une mesure de spectre d'émission de neutrons retardés issus de la fission induite par neutron a été réalisée. Elle nous a permis de tester la méthode d'analyse et d'améliorer notre protocole expérimental, en particulier pour adapter le temps d'irradiation aux groupes recherchés.

La confiance acquise dans notre méthode d'analyse nous a permis d'entreprendre la mesure du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238. Cette expérience a permis d'améliorer la valeur de $\bar{\nu}_p$ avec une barre d'erreur inférieure à 7% ($\bar{\nu}_p = 3.03 \pm 0.02$ n/100 fissions) et de corriger les paramètres de Nikotin [Nik65] pour la représentation en six groupes. Nous avons en particulier amélioré les données concernant le sixième groupe en utilisant différentes durées d'irradiation. Ceci est la première étape avant une étude systématique des spectres d'émission de neutrons retardés issus de photofission.

Cette étude sera facilitée par le travail effectué pendant cette thèse. Le détecteur pourra être réemployé, bien qu'il soit intéressant de continuer à le développer afin d'augmenter son efficacité. La méthode d'analyse peut aussi être réutilisée. Avec quelques modifications mineures, elle permet d'effectuer l'analyse en 12 groupes. Le savoir-faire acquis lors des précédentes expériences sera bien évidemment un atout lors de cette étude.

Nous espérons qu'une telle étude systématique permettra un développement plus rapide des techniques de détection de matière nucléaire à l'aide de neutrons retardés issus de photofission. Nous espérons également pouvoir étudier la variation du nombre de neutrons retardés en fonction de l'énergie d'excitation ainsi que la représentation du spectre d'émission en douze groupes. Avec cette modélisation, nous pourrions connaître la distribution de quelques isotopes du brome et de l'iode et peut-être ainsi améliorer les codes de calcul de distribution de produits de photofission.

Un programme expérimental d'une durée de trois ans est prévu auprès de l'accélérateur ELSA afin de mener à bien ces études.

Annexes

Annexe A

Liste des précurseurs utilisés lors du calcul du spectre d'émission de neutrons retardés

Nous présentons ici la liste des précurseurs contenue dans la bibliothèque de précurseur utilisée pour calculer les spectres d'émission de neutrons retardés à partir des distribution de produits de fission. Ces données sont issues de [Eng94]. Les précurseurs sont présentés sous la forme : élément, masse, état fondamental (g) ou isomérique (m), temps de vie en secondes, probabilité d'émission de neutron en pourcent.

Co 72 g 0.1235 11.5322	Cu 72 g 6.4891 0.0001	Co 73 g 0.1290 25.1220
Ni 73 g 0.4906 0.0047	Cu 73 g 5.1136 0.5588	Co 74 g 0.0920 17.4326
Ni 74 g 0.9002 0.3560	Cu 74 g 0.6482 0.2949	Co 75 g 0.0817 31.3124
Ni 75 g 0.2312 1.0022	Cu 75 g 0.9274 3.4700	Ni 76 g 0.3046 3.5113
Cu 76 g 0.2602 2.8418	Ni 77 g 0.1033 4.7115	Cu 77 g 0.3052 12.3119
Ni 78 g 0.1318 9.2984	Cu 78 g 0.1179 9.9093	Zn 78 g 1.9855 0.0041
Cu 79 g 0.1351 24.2057	Zn 79 g 0.3130 1.1459	Ga 79 g 3.0000 0.0890
Cu 80 g 0.0899 15.0430	Zn 80 g 0.4873 1.0983	Ga 80 g 1.6600 0.8300
Cu 81 g 0.0742 52.9504	Zn 81 g 0.1227 5.7372	Ga 81 g 1.2300 11.9000
Zn 82 g 0.1268 21.2264	Ga 82 g 0.6000 21.1000	Zn 83 g 0.0836 22.8749
Ga 83 g 0.3100 56.2000	Ge 83 g 1.9000 0.0235	Ga 84 g 0.0984 28.0232
Ge 84 g 1.2000 5.2055	As 84 g 5.3000 0.0860	Ga 85 g 0.0870 44.9654
Ge 85 g 0.2500 16.4540	As 85 g 2.0300 50.0000	Ge 86 g 0.2470 15.2148
As 86 g 0.9000 8.5030	Ge 87 g 0.1339 15.1329	As 87 g 0.3000 44.3600
Se 87 g 5.6000 0.1880	Br 87 g 55.6000 2.5400	Ge 88 g 0.1290 21.6551
As 88 g 0.1348 19.9068	Se 88 g 1.5000 0.9660	Br 88 g 16.0000 6.2600
As 89 g 0.1212 33.2722	Se 89 g 0.4270 7.7000	Br 89 g 4.3800 14.0000
As 90 g 0.0911 24.3493	Se 90 g 0.5550 9.1321	Br 90 g 1.8000 24.6000
Se 91 g 0.2700 24.4382	Br 91 g 0.6000 18.1000	Rb 91 g 58.2000 0.0001
Se 92 g 0.1682 13.2333	Br 92 g 0.3600 42.7344	Kr 92 g 0.3600 0.0332
Rb 92 g 4.5300 0.0099	Se 93 g 0.0968 12.0321	Br 93 g 0.1760 25.0885

ANNEXE A. LISTE DES PRÉCURSEURS

Kr 93 g 1.2900 2.0100	Rb 93 g 5.8600 1.3500	Br 94 g 0.1108 29.8035
Kr 94 g 0.2100 6.1300	Rb 94 g 2.7600 10.0000	Br 95 g 0.1069 27.0797
Kr 95 g 0.7800 7.5051	Rb 95 g 0.3800 8.6200	Br 96 g 0.0888 21.9195
Kr 96 g 0.2931 7.7473	Rb 96 g 0.2040 14.0000	Sr 96 g 1.1000 0.0011
Kr 97 g 0.1000 8.3925	Rb 97 g 0.1700 26.6000	Sr 97 g 0.4000 0.0054
Y 97 g 3.7000 0.0540	Y 97 m 1.1100 0.1090	Kr 98 g 0.1602 8.2989
Y 98 m 0.6500 0.2280	Rb 99 g 0.1450 17.1000	Sr 99 g 0.6000 0.1290
Y 99 g 1.4000 2.0200	Rb 100 g 0.0984 4.9500	Sr 100 g 0.6180 0.7430
Y 100 g 0.8000 0.8420	Rb 101 g 0.0939 28.321	Sr 101 g 0.1941 2.4700
Y 101 g 0.6071 2.0500	Sr 102 g 0.2871 4.7600	Y 102 g 0.9000 5.9400
Sr 103 g 0.1196 8.8758	Y 103 g 0.2604 12.365	Zr 103 g 1.3377 0.0242
Nb 103 g 1.5000 0.0137	Sr 104 g 0.1629 13.469	Y 104 g 0.1283 8.7769
Zr 104 g 2.5730 0.1824	Nb 104 g 4.8000 0.0406	Y 105 g 0.1469 19.752
Zr 105 g 0.4930 1.0879	Nb 105 g 2.8000 2.2322	Y 106 g 0.0894 15.661
Zr 106 g 0.9071 1.5242	Nb 106 g 1.0000 0.9402	Y 107 g 0.0923 25.944
Zr 107 g 0.2430 3.7127	Nb 107 g 0.7660 8.7806	Zr 108 g 0.3781 7.0302
Nb 108 g 0.2423 6.4669	Mo 108 g 1.5000 0.0001	Zr 109 g 0.1300 7.3940
Nb 109 g 0.3154 12.653	Mo 109 g 1.4090 0.1359	Tc 109 g 1.4000 0.0879
Nb 110 g 0.1298 10.052	Mo 110 g 2.7720 1.3758	Tc 110 g 0.8300 0.6210
Nb 111 g 0.1718 18.394	Mo 111 g 0.4664 1.0303	Tc 111 g 1.9824 5.6954
Mo 112 g 0.9754 2.0788	Tc 112 g 0.4314 5.2031	Mo 113 g 0.2287 3.7966
Tc 113 g 0.6524 7.1864	Ru 113 g 3.0000 0.0005	Tc 114 g 0.2023 6.5358
Ru 114 g 8.1365 0.1039	Rh 114 g 1.7000 0.0020	Tc 115 g 0.2704 14.337
Ru 115 g 0.8784 0.2276	Rh 115 g 8.3154 0.7746	Tc 116 g 0.1155 12.222
Ru 116 g 1.7004 1.0811	Rh 116 g 0.9492 0.5379	Tc 117 g 0.1518 21.249
Ru 117 g 0.3428 2.0509	Rh 117 g 1.2174 4.8201	Ru 118 g 0.6623 4.1092
Rh 118 g 0.3156 2.9167	Ru 119 g 0.1950 4.3580	Rh 119 g 0.4654 8.2971
Pd 119 g 1.7587 0.0001	Ag 119 g 2.1000 0.0001	Ru 120 g 0.3503 7.5652
Rh 120 g 0.1725 5.9282	Pd 120 g 3.9065 0.0068	Ag 120 g 1.1700 0.0015
Rh 121 g 0.2496 13.567	Pd 121 g 0.6437 0.2722	Ag 121 g 0.8000 0.0753
Rh 122 g 0.1071 8.3012	Pd 122 g 1.4112 0.4377	Ag 122 g 1.5000 0.1840
Rh 123 g 0.1343 17.107	Pd 123 g 0.3004 0.6897	Ag 123 g 0.3900 0.5450
Pd 124 g 0.5140 2.6986	Ag 124 g 0.2495 2.2881	Pd 125 g 0.1660 2.2664
Ag 125 g 0.3335 6.3167	Pd 126 g 0.2520 5.0310	Ag 126 g 0.1398 4.6380
Ag 127 g 0.1753 9.8629	Cd 127 g 0.5719 0.0101	In 127 g 3.7600 0.6600
In 127 m 1.3000 0.0001	Ag 128 g 0.0943 6.8861	Cd 128 g 1.0530 0.1215
In 128 g 0.8400 0.0610	Cd 129 g 0.2987 0.1519	In 129 g 0.9900 2.9200
In 129 m 2.5000 0.7600	Cd 130 g 0.4767 0.9676	In 130 g 0.5800 1.0400
Sb 135 g 1.8200 17.870	Sn 136 g 0.7172 16.391	Sb 136 g 0.8200 28.978
Te 136 g 19.0000 1.140	Sb 137 g 0.4780 18.032	Te 137 g 3.5000 2.6900
I 137 g 24.5000 6.970	Sb 138 g 0.1734 22.011	Te 138 g 1.6000 6.7800
I 138 g 6.5000 5.3800	Sb 139 g 0.2178 41.693	Te 139 g 0.5800 7.9624
Te 140 g 0.8038 15.496	I 140 g 0.8600 9.2700	Te 141 g 0.2726 10.472

I 141 g 0.4600 21.300	Xe 141 g 1.7200 0.0353	Cs 141 g 24.9000 0.047
Te 142 g 0.5901 15.079	I 142 g 0.2000 13.860	Xe 142 g 1.2200 0.4040
Cs 142 g 1.6900 0.0949	I 143 g 0.4010 38.498	Xe 143 g 0.9600 3.0557
Cs 143 g 1.7800 1.6000	I 144 g 0.1460 15.239	Xe 144 g 1.1000 4.6118
Cs 144 g 1.0010 3.1300	I 145 g 0.1934 24.085	Xe 145 g 0.9000 6.1090
Cs 145 g 0.5900 13.590	Xe 146 g 0.5627 6.5048	Cs 146 g 0.3400 13.300
Ba 146 g 2.0000 0.0100	La 146 g 11.0000 0.003	Xe 147 g 0.1991 8.7056
Cs 147 g 0.5460 26.100	Ba 147 g 1.7550 0.0210	La 147 g 5.0000 0.0330
Cs 148 g 0.2056 25.100	Ba 148 g 3.3250 0.0060	La 148 g 1.3000 0.1330
Cs 149 g 0.2442 32.756	Ba 149 g 0.6950 0.5750	La 149 g 2.4080 1.0600
Cs 150 g 0.1238 15.088	Ba 150 g 0.9620 10.927	La 150 g 0.6080 0.3991
Ba 151 g 0.3327 3.7569	La 151 g 0.7194 6.5495	Ba 152 g 0.4205 5.7209
La 152 g 0.2850 6.0393	La 153 g 0.3258 10.688	Ce 153 g 1.4688 0.6219
La 154 g 0.1493 10.270	Ce 154 g 2.0161 0.6373	Pr 154 g 1.0614 0.1110
La 155 g 0.1540 16.759	Ce 155 g 0.5278 1.6004	Pr 155 g 1.1224 1.5427
Ce 156 g 0.5963 2.9922	Pr 156 g 0.3793 2.7170	Ce 157 g 0.2144 4.4528
Pr 157 g 0.3800 6.3874	Pr 158 g 0.1685 6.4230	Nd 158 g 2.6949 0.0053
Pr 159 g 0.1806 12.363	Nd 159 g 0.6146 0.2361	Pm 159 g 3.0005 0.0185
Nd 160 g 0.7886 0.9469	Pm 160 g 0.7289 0.2676	Nd 161 g 0.3113 1.6982
Pm 161 g 0.7899 1.7504	Pm 162 g 0.3243 2.1452	Sm 164 g 1.3850 0.0124
Eu 164 g 1.5327 0.0001	Sm 165 g 0.4536 0.2491	Eu 165 g 1.3546 0.1911

Annexe B

Spectres de neutrons retardés

Nous présentons ici une comparaison de spectres d'émission de neutrons issus de la fission induite par neutron. Ces spectres ont été mesuré par Keepin [Kee57b]. Nous les avons calculé à l'aide des distributions de produits de fission extraites de l'étude systématique d'England [Eng94] et de la bibliothèque de précurseurs présentée dans l'annexe A. Les valeurs représentées en gras dans les tableaux indiquent des valeurs en dehors de barres d'erreur de Keepin et avec des écarts supérieurs à 20%.

$n_f + {}^{232}\text{Th}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	56.03 ± 0.95	55.6	-0.9%	0.169 ± 0.012	0.172	+1.8%
2	20.75 ± 0.66	18.44	-11.1%	0.744 ± 0.037	0.578	-22.3%
3	5.74 ± 0.24	4.96	-13.6%	0.769 ± 0.108	1.040	+35.2%
4	2.16 ± 0.08	1.86	-13.9%	2.212 ± 0.110	2.764	+25.0%
5	0.571 ± 0.042	0.489	-14.4%	0.853 ± 0.073	0.793	-7.0%
6	0.211 ± 0.019	0.196	-7.1%	0.213 ± 0.031	0.224	+5.2%
			Total	4.96 ± 0.20	5.57	+12.3%

TAB. B.1 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur le thorium-232

ANNEXE B. SPECTRES DE NEUTRONS RETARDÉS

$n_{th} + {}^{233}\text{U}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	55.00 ± 0.54	55.6	+1.3%	0.057 ± 0.003	0.054	-5.3%
2	20.57 ± 0.38	20.94	+1.8%	0.197 ± 0.009	0.210	+6.6%
3	5.00 ± 0.21	5.09	+1.8%	0.166 ± 0.027	0.156	-6.0%
4	2.13 ± 0.20	2.04	+4.2%	0.184 ± 0.016	0.230	+25.0%
5	0.615 ± 0.242	0.473	-23.1%	0.034 ± 0.016	0.040	+17.6%
6	0.277 ± 0.047	0.177	-36.1%	0.022 ± 0.009	0.013	+40.9%
Total				0.66 ± 0.03	0.70	+6.1%

TAB. B.2 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur l'uranium-233

$n_f + {}^{233}\text{U}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	55.11 ± 1.86	55.6	+0.9%	0.060 ± 0.003	0.060	-
2	20.74 ± 0.86	20.53	-1.0%	0.192 ± 0.009	0.205	+6.8%
3	5.30 ± 0.19	4.95	-6.6%	0.159 ± 0.025	0.167	+5.0%
4	2.29 ± 0.18	2.11	-7.9%	0.222 ± 0.012	0.201	-9.5%
5	0.546 ± 0.108	0.463	-15.2%	0.051 ± 0.010	0.032	-37.3%
6	0.221 ± 0.042	0.201	-9.0%	0.016 ± 0.005	0.006	-62.5%
Total				0.70 ± 0.4	0.67	-4.3%

TAB. B.3 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur l'uranium-233

$n_f + {}^{235}\text{U}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	54.51 ± 0.94	55.6	+2.0%	0.063 ± 0.005	0.054	-14.3%
2	21.84 ± 0.54	20.81	-4.8%	0.351 ± 0.011	0.329	-6.3%
3	6.00 ± 0.17	5.05	-15.8%	0.310 ± 0.028	0.339	+9.4%
4	2.23 ± 0.06	2.03	-9.0%	0.672 ± 0.023	0.690	+2.6%
5	0.496 ± 0.029	0.469	-5.4%	0.211 ± 0.015	0.170	-19.4%
6	0.179 ± 0.017	0.192	+7.6%	0.043 ± 0.005	0.071	+65.1%
Total				1.65 ± 0.05	1.65	-

TAB. B.4 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur l'uranium-235

$n_f + {}^{238}\text{U}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	52.38 ± 1.29	55.6	+5.8%	0.054 ± 0.005	0.039	-27.8%
2	21.58 ± 0.39	22.36	+3.6%	0.564 ± 0.025	0.497	-11.9%
3	5.00 ± 0.19	5.19	+3.8%	0.667 ± 0.087	0.574	-13.9%
4	1.93 ± 0.07	1.83	-5.2%	1.599 ± 0.081	1.705	+6.6%
5	0.490 ± 0.023	0.493	+0.6%	0.927 ± 0.060	0.675	-27.2%
6	0.172 ± 0.009	0.200	+16.3%	0.309 ± 0.024	0.317	+2.6%
Total				4.12 ± 0.17	3.81	-7.5%

TAB. B.5 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur l'uranium-238

$n_{th} + {}^{239}\text{Pu}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	54.28 ± 2.38	55.6	+2.6%	0.021 ± 0.006	0.018	-14.3%
2	23.04 ± 1.67	23.03	-	0.182 ± 0.023	0.213	+17.0%
3	5.60 ± 0.40	5.57	-0.5%	0.129 ± 0.030	0.147	+14.0%
4	2.13 ± 0.24	2.06	-3.3%	0.199 ± 0.022	0.226	+13.6%
5	0.618 ± 0.213	0.444	-28.2%	0.052 ± 0.018	0.056	+7.8%
6	0.257 ± 0.045	0.196	-23.7%	0.027 ± 0.010	0.014	-48.1%
Total				0.61 ± 0.05	0.67	9.8%

TAB. B.6 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur le plutonium-239

$n_f + {}^{239}\text{Pu}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	53.75 ± 0.95	55.6	+3.3%	0.024 ± 0.002	0.021	-12.5%
2	22.29 ± 0.36	22.66	+1.7%	0.176 ± 0.009	0.187	+6.3%
3	5.19 ± 0.12	5.51	+6.2%	0.136 ± 0.013	0.133	-2.2%
4	2.09 ± 0.08	2.08	-0.5%	0.207 ± 0.012	0.198	-4.3%
5	0.549 ± 0.049	0.464	-15.5%	0.065 ± 0.007	0.045	-30.8%
6	0.216 ± 0.017	0.198	-8.3%	0.022 ± 0.003	0.014	-36.4%
Total				0.63 ± 0.03	0.60	-4.8%

TAB. B.7 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur le plutonium-239

$n_f + {}^{240}\text{Pu}$						
Groupe	$T_{1/2}$ [Kee57b]	$T_{1/2}$ calcul	Écart	A_i [Kee57b]	A_i calcul	Écart
1	53.56 ± 1.21	55.6	+3.7%	0.022 ± 0.003	0.018	+18.2%
2	22.14 ± 0.38	23.00	+3.9%	0.238 ± 0.016	0.240	+0.8%
3	5.14 ± 0.42	5.40	+5.1%	0.162 ± 0.044	0.156	-3.7%
4	2.08 ± 0.19	2.05	+1.4%	0.315 ± 0.027	0.303	-3.8%
5	0.511 ± 0.077	0.479	-6.3%	0.119 ± 0.018	0.076	-36.1%
6	0.172 ± 0.033	0.199	+15.7%	0.024 ± 0.005	0.024	-
			Total	0.88 ± 0.06	0.082	-6.8%

TAB. B.8 – Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur le plutonium-240

Annexe C

Comparaison de sections efficaces de photoabsorption

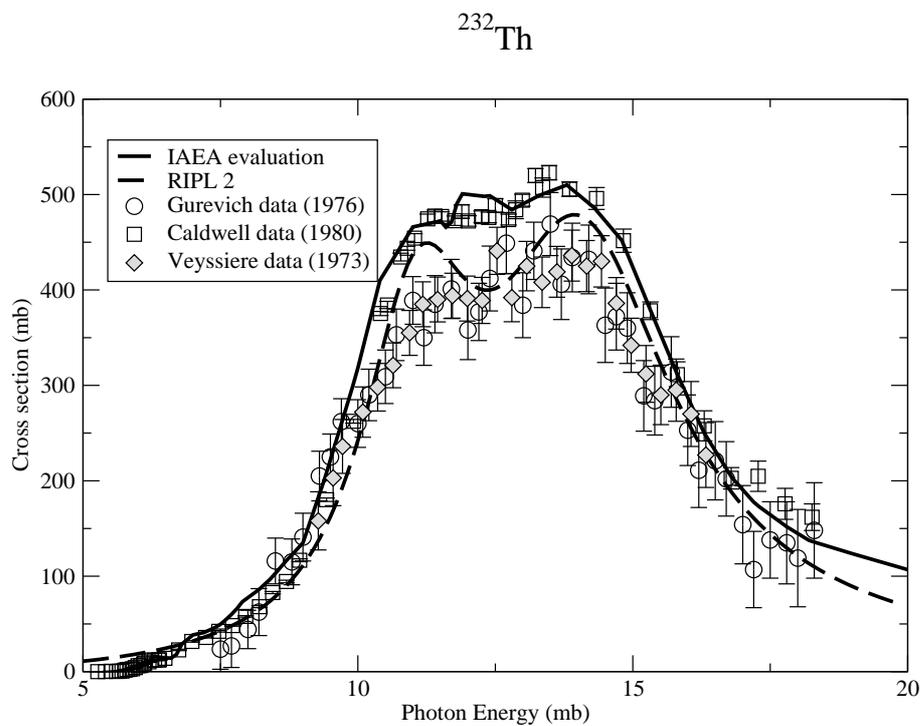


FIG. C.1 – Section efficace de photoabsorption pour le thorium-232

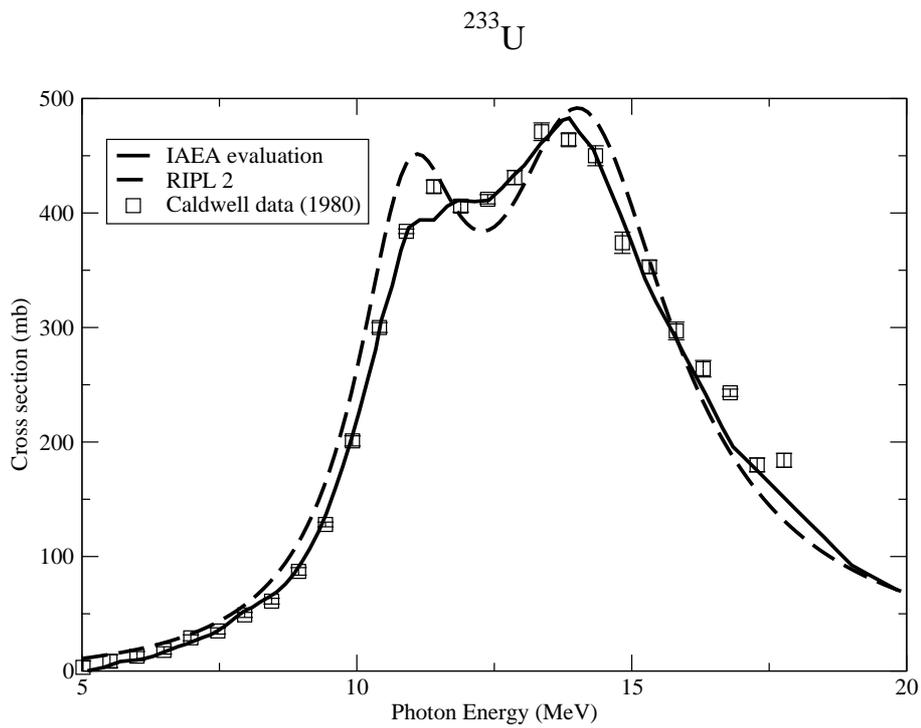


FIG. C.2 – Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-233

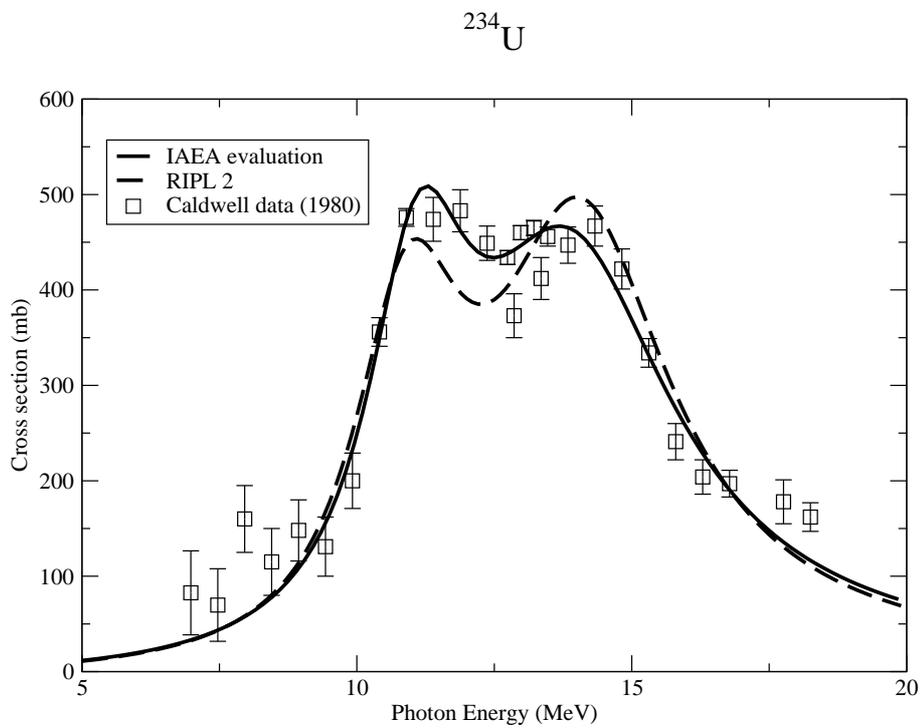


FIG. C.3 – Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-234

^{235}U

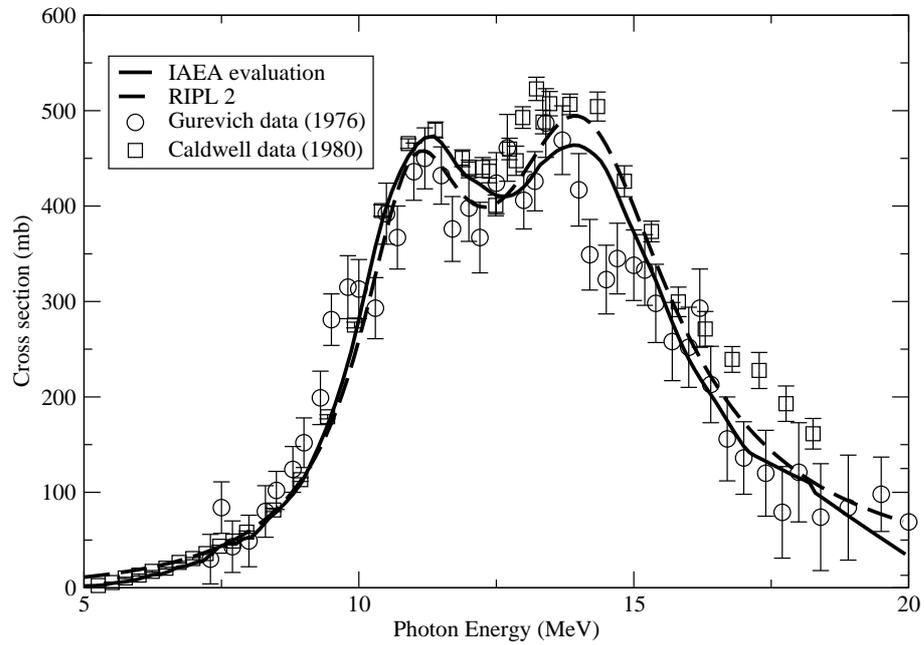


FIG. C.4 – Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-235

^{236}U

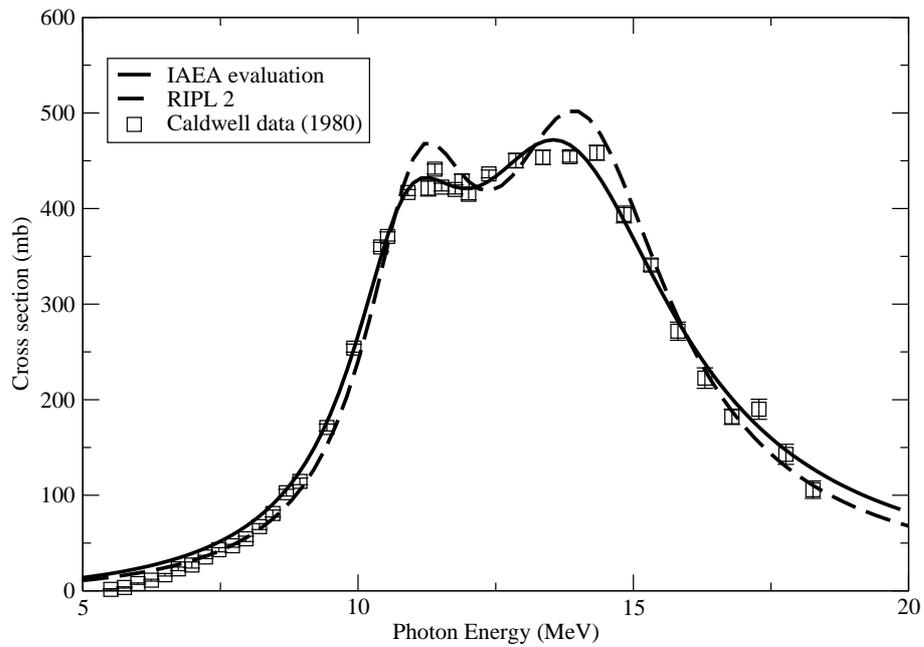


FIG. C.5 – Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-236

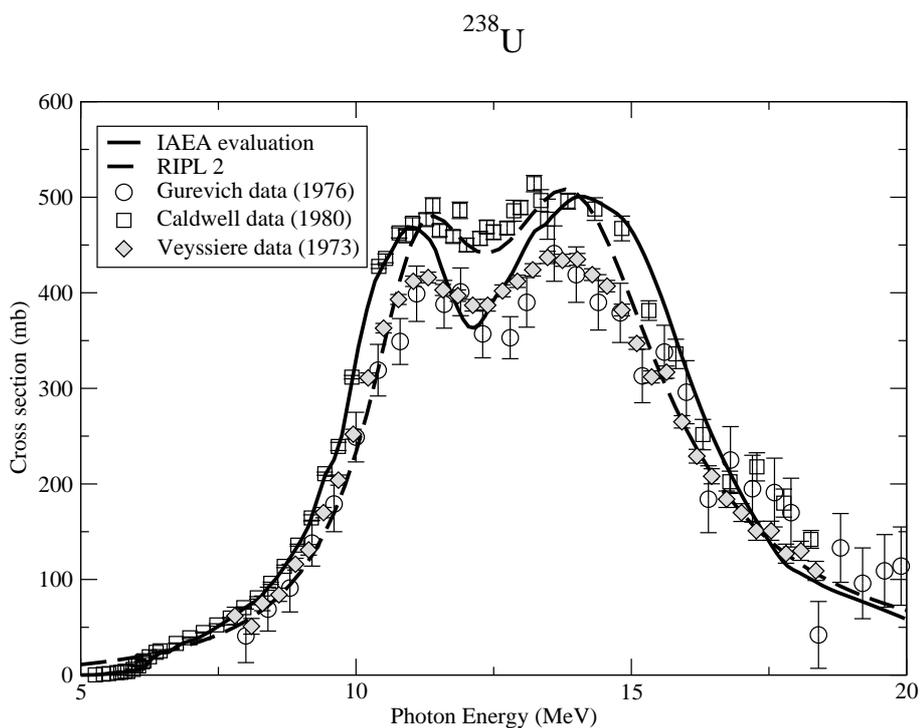


FIG. C.6 – Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-238

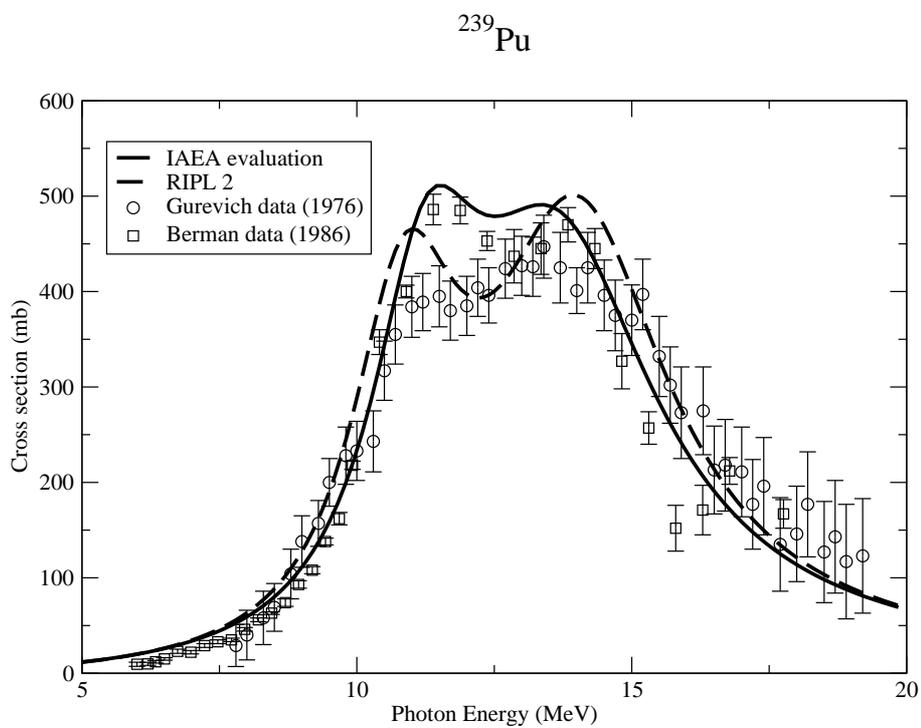


FIG. C.7 – Section efficace de photoabsorption pour le plutonium-239

Annexe D

Coefficients correctifs de la courbe de décroissance en neutrons retardés

Comme on l'a vu à la section 1.4.2, la courbe de décroissance en neutrons retardés peut être écrite sous la forme de six exponentielles.

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 a_i \exp(-\lambda_{dn_i} t)$$

Les paramètres a_i et λ_{dn_i} sont respectivement le nombre de neutrons retardés par fission émis par le groupe i et sa demi-période dans le cas d'une irradiation infinie avec un faisceau continu. Si le faisceau est pulsé et/ou l'irradiation finie, il faut appliquer un facteur correctif à la contribution a_i de chaque groupe pour reproduire correctement la courbe expérimentale. De même, si la cible de fission est à nouveau irradiée avant la décroissance de tous les précurseurs, un autre facteur correctif doit être appliqué.

D.1 Problème général

Le nombre de précurseurs N_i produits pendant l'irradiation varie en fonction du temps. Cette évolution est décrite par l'équation différentielle (D.1).

$$\frac{d}{dt} N_i(t) = S_i(t) - \lambda_{dn_i} N_i(t) \quad (\text{D.1})$$

Le terme de source $S_i(t)$ est proportionnel au flux de la source externe induisant la fission, il peut être écrit $S_i(t) = C\phi(t)$. À partir de l'équation à l'équilibre $C\bar{\phi} - \lambda_{dn_i}\bar{N}_i = 0$, on déduit la valeur suivante pour C .

$$C = \frac{\lambda_{dn_i}\bar{N}_i}{\bar{\phi}}$$

On sait que la solution de l'équation (D.1) est une exponentielle. Elle aura la forme suivante :

$$N_i(t) = D_i(t) \exp(-\lambda_{dn_i} t) \quad (\text{D.2})$$

En substituant (D.2) dans l'équation (D.1) on obtient :

$$\frac{d}{dt} D_i(t) = S_i(t) \exp(\lambda_{dn_i} t)$$

soit

$$D_i(t) = \int_{t_0}^t S_i(t') \exp(\lambda_{dn_i} t') dt'$$

avec t_0 temps auquel débute l'irradiation.

La solution générale de l'équation (D.1) s'écrit :

$$N_i(t) = \int_{t_0}^t S_i(t') \exp(\lambda_{dn_i} (t' - t)) dt' \quad (D.3)$$

La contribution partielle de chaque groupe $a_i(t)$ est proportionnelle à $N_i(t)$, c'est-à-dire le nombre de précurseurs appartenant au groupe i produits au temps t de l'irradiation.

$$N_i(t) = k a_i(t)$$

Après une irradiation infinie la production de précurseurs est à l'équilibre d'où

$$\lim_{t \rightarrow \infty} a_i(t) = a_i$$

et

$$\lim_{t \rightarrow \infty} N_i(t) = \bar{N}_i$$

donc

$$\bar{N}_i = k a_i$$

On peut donc réécrire l'équation D.3 sous la forme suivante :

$$k a_i(t) = \int_{t_0}^t \frac{\lambda_{dn_i} k a_i}{\bar{\phi}} \phi(t') \exp(\lambda_{dn_i} (t' - t)) dt'$$

d'où

$$a_i(t) = \lambda_{dn_i} a_i \int_{t_0}^t f(t') \exp(\lambda_{dn_i} (t' - t)) dt' \quad (D.4)$$

$f(t) = \frac{\phi(t)}{\bar{\phi}}$ est le flux normalisé.

Le facteur correctif $M_i(t)$ pour chaque groupe vaut :

$$M_i(t) = \frac{a_i(t)}{a_i}$$

Soit à la fin de l'irradiation ($t = T_{irr}$) :

$$M_i(T_{irr}) = \lambda_{dn_i} \int_{t_0}^{T_{irr}} f(t') \exp(\lambda_{dn_i} (t' - T_{irr})) dt' \quad (D.5)$$

D.2 Cas d'une irradiation finie avec un faisceau continu

Dans ce cas la source s'écrit :

$$f(t) = \theta(t - t_0)\theta(T_{irr} - t)$$

θ est une fonction de Heavyside telle que

$$\theta(t) = \begin{cases} 0, & t < 0 \\ 1, & t > 0 \end{cases}$$

D'après l'équation (D.5) on a

$$M_i(T_{irr}) = \lambda_{dn_i} \int_{t_0}^{T_{irr}} \theta(t' - t_0)\theta(T_{irr} - t') \exp(\lambda_{dn_i}(t' - T_{irr})) dt'$$

d'où

$$M_i(T_{irr}) = \lambda_{dn_i} \int_{t_0}^{T_{irr}} \exp(\lambda_{dn_i}(t' - T_{irr})) dt'$$

or

$$T_{irr} = t_0 + \tau$$

τ est la durée de l'irradiation.

On en déduit que dans le cas d'un faisceau continu M_i s'écrit

$$M_i^{cont}(\tau) = 1 - \exp(-\lambda_{dn_i}\tau) \tag{D.6}$$

Ce cas s'applique pour les mesures faites au 4 MV et présentées au chapitre 5. Les corrections appliquées sont présentées dans le tableau D.1. Les temps de vie de chacun des groupes sont pris égaux à 55.6, 20, 5, 2, 0.7 et 0.2 s. Ces valeurs seront prises pour tous les calculs présentés ici.

Groupe	Durée d'irradiation				
	300 s	125 s	20 s	6.25 s	5 s
1	0.976	0.788	0.220	0.074	0.060
2	1	0.987	0.498	0.194	0.158
3	1	1	0.937	0.578	0.500
4	1	1	0.999	0.884	0.822
5	1	1	1	0.998	0.993
6	1	1	1	1	1

TAB. D.1 – Valeur de la correction pour différentes durées d'irradiation

D.3 Cas d'une irradiation avec un faisceau pulsé

La structure en temps de la source est présentée figure D.1. Elle s'écrit sous la forme suivante :

$$f(t) = \frac{(K-1)T + \tau}{K\tau} \sum_{n=1}^K \theta(t - t_0 - (n-1)T) \theta(t_0 + (n-1)T + \tau - t)$$

T période des impulsions
 τ durée des impulsions

L'intensité moyenne de la source est normalisée à 1.

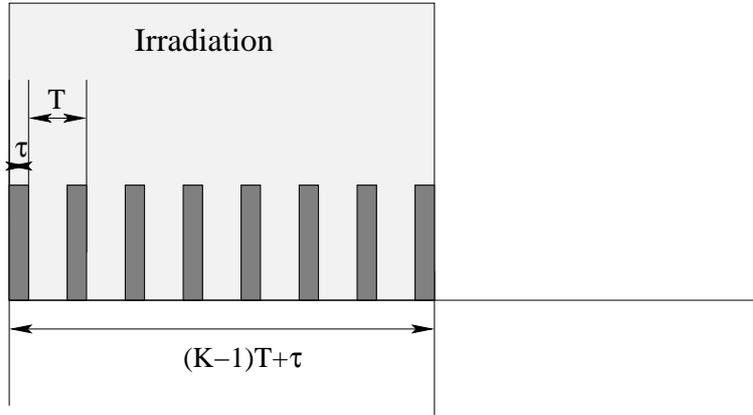


FIG. D.1 – Structure en temps de la source

Dans ce cas $M_i(T_{irr})$ s'écrit

$$M_i(T_{irr}) = \lambda_{dn_i} \int_{t_0}^{T_{irr}} \alpha \sum_{n=1}^K \theta(\Delta t - (n-1)T) \theta((n-1)T + \tau - \Delta t) \exp(\lambda_{dn_i}(t' - T_{irr})) dt'$$

où

$$\begin{aligned} \Delta t &= t' - t_0 \\ \alpha &= \frac{(K-1)T + \tau}{K\tau} \end{aligned}$$

$$M_i(T_{irr}) = \alpha \lambda_{dn_i} \sum_{n=1}^K \int_{t_0 + (n-1)T}^{t_0 + (n-1)T + \tau} \exp(\lambda_{dn_i}(t' - T_{irr})) dt'$$

$$M_i(T_{irr}) = \alpha \exp(-\lambda_{dn_i} T_{irr}) \sum_{n=1}^K [\exp(\lambda_{dn_i}(t_0 + (n-1)T + \tau)) - \exp(\lambda_{dn_i}(t_0 + (n-1)T))]$$

$$M_i(T_{irr}) = \alpha \exp(-\lambda_{dn_i} T_{irr}) (\exp(\lambda_{dn_i} \tau) - 1) \exp(\lambda_{dn_i} t_0) \sum_{n=1}^K \exp(\lambda_{dn_i} ((n-1)T))$$

$$M_i(T_{irr}) = \alpha \exp(-\lambda_{dn_i} T_{irr}) (\exp(\lambda_{dn_i} \tau) - 1) \exp(\lambda_{dn_i} t_0) \frac{1 - \exp(\lambda_{dn_i} KT)}{1 - \exp(\lambda_{dn_i} T)}$$

or

$$T_{irr} = t_0 + (K - 1)T + \tau$$

donc

$$\exp(-\lambda_{dn_i} T_{irr}) = \frac{\exp(-\lambda_{dn_i} t_0) \exp(-\lambda_{dn_i} KT) \exp(-\lambda_{dn_i} \tau)}{\exp(-\lambda_{dn_i} T)}$$

d'où

$$M_i(T_{irr}) = \frac{(K - 1)T + \tau}{K\tau} (1 - \exp(-\lambda_{dn_i} \tau)) \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} KT)}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T)}$$

Le facteur de correction dans le cas d'un faisceau pulsé s'écrit :

$$M_i^{pulse}(K, T, \tau) = \frac{(K - 1)T + \tau}{K\tau} \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} KT)}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T)} M_i^{cont}(\tau)$$

Si $\tau = T$, on retrouve bien le cas du faisceau continu pour une durée d'irradiation $K\tau$ (voir équation (D.6))

La tableau D.2 présente les différentes corrections appliquées pour les irradiations de 300 s ($K = 1500$), de 5 s ($K = 25$). Dans ces deux cas, τ vaut 140 μ s et T 0.2 s.

Groupe	Durée d'irradiation	
	300 s	5 s
1	0.976	0.058
2	1.001	0.152
3	1.022	0.490
4	1.030	0.812
5	1.101	1.049
6	1.380	1.324

TAB. D.2 – Valeur de la correction pour différentes mesures avec un faisceau pulsé

On constate que le groupe 1 n'a pas encore atteint l'équilibre malgré une irradiation de 300 s. Il en est de même avec un faisceau continu (voir tableau D.1). L'influence du faisceau pulsé sur les groupes 2 à 4 est faible. Elle est par contre importante pour les groupes 5 et 6.

En comparant les tableaux D.1 et D.2 on s'aperçoit que la structure du faisceau influence très peu les groupes 1 à 4. Par contre son influence est notable pour les groupes 5 et 6 dont les temps de demi-vie sont comparables à la période des impulsions. Pour réduire ce phénomène il faut augmenter la fréquence des impulsions.

D.4 Influence de la répétition des irradiations

Si on répète K_c fois les irradiations toutes les T_c secondes, l'équation de la source s'écrit :

$$f(t) = \frac{(K-1)T + \tau}{K\tau} \sum_{n=1}^K \theta(t - t_0 - (n-1)T) \theta(t_0 + (n-1)T + \tau - t) \cdot \sum_{l=1}^{K_c} \theta(t - (l-1)T_c) \theta((l-1)T_c + (K-1)T + \tau - t)$$

T_c	période des mesures
T	période des impulsions
τ	durée des impulsions

Au temps T_M auquel on commence la mesure $M_i(T_M)$ s'écrit :

$$M_i(T_M) = \lambda_{dn_i} \int_{t_0}^{T_M} \alpha \sum_{n=1}^K \theta(\Delta t - (n-1)T) \theta((n-1)T + \tau - \Delta t) \cdot \sum_{l=1}^{K_c} \theta(\Delta t - (l-1)T_c) \theta((l-1)T_c + (K-1)T + \tau - \Delta t) \cdot \exp(\lambda_{dn_i}(t' - T_M)) dt'$$

où

$$\begin{aligned} \Delta t &= t' - t_0 \\ \alpha &= \frac{(K-1)T + \tau}{K\tau} \end{aligned}$$

soit

$$M_i(T_M) = \alpha \sum_{n=1}^K \sum_{l=1}^{K_c} \int_{t_0 + (n-1)T + (l-1)T_c}^{t_0 + (n-1)T + (l-1)T_c + \tau} \lambda_{dn_i} \exp(\lambda_{dn_i}(t' - T_M)) dt'$$

$$M_i(T_M) = \alpha \exp(-\lambda_{dn_i} T_M) \sum_{n=1}^K \sum_{l=1}^{K_c} [\exp(\lambda_{dn_i}(t_0 + (n-1)T + (l-1)T_c + \tau)) - \exp(\lambda_{dn_i}(t_0 + (n-1)T + (l-1)T_c))]$$

$$M_i(T_M) = \alpha \exp(-\lambda_{dn_i} T_M) \exp(\lambda_{dn_i} t_0) (\exp(\lambda_{dn_i} \tau) - 1) \sum_{n=1}^K \exp(\lambda_{dn_i}(n-1)T) \cdot \sum_{l=1}^{K_c} \exp(\lambda_{dn_i}(l-1)T_c)$$

$$M_i(T_M) = \alpha \exp(-\lambda_{dn_i} T_M) \exp(\lambda_{dn_i} t_0) (\exp(\lambda_{dn_i} \tau) - 1) \cdot \frac{1 - \exp(\lambda_{dn_i} K T)}{1 - \exp(\lambda_{dn_i} T)} \frac{1 - \exp(\lambda_{dn_i} K_c T_c)}{1 - \exp(\lambda_{dn_i} T_c)}$$

or

$$T_M = t_0 + (K_c - 1)T_c + (K - 1)T + \tau$$

donc

$$\exp(-\lambda_{dn_i} T_M) = \exp(-\lambda_{dn_i} t_0) \exp(-\lambda_{dn_i} \tau) \frac{\exp(-\lambda_{dn_i} K T)}{\exp(-\lambda_{dn_i} T)} \frac{\exp(-\lambda_{dn_i} K_c T_c)}{\exp(-\lambda_{dn_i} T_c)}$$

d'où

$$M_i(T_M) = \alpha (1 - \exp(-\lambda_{dn_i} \tau)) \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} K T)}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T)} \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} K_c T_c)}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T_c)}$$

Dans le cas d'irradiations répétées le facteur correctif s'écrit :

$$M_i^{rep}(K_c, T_c, K, T, \tau) = M_i^{pulse}(K, T, \tau) \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} K_c T_c)}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T_c)}$$

La correction induite sur la somme des mesures par le fait que tous les précurseurs n'aient pas décré totalement à la fin de chaque mesure est décrite par l'équation suivante.

$$M_i^{somme}(N, T_c, K, T, \tau) = \frac{1}{N M_i^{pulse}(K, T, \tau)} \sum_{K_c=1}^N M_i^{rep}(K_c, T_c, K, T, \tau)$$

soit

$$M_i^{somme}(N, T_c) = \frac{1}{N} \sum_{K_c=1}^N \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} K_c T_c)}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T_c)}$$

d'où

$$M_i^{somme}(N, T_c) = \frac{1}{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} T_c)} \left[1 - \frac{1 - \exp(-\lambda_{dn_i} N T_c)}{N (\exp(\lambda_{dn_i} T_c) - 1)} \right]$$

La valeur de M_i^{somme} pour les différentes mesures effectuées lors de cette thèse sont présentées au tableau D.3. On constate bien que plus le cycle est court plus la correction à appliquer est grande.

Groupe	Mesures					
	300 s-300 s	125 s-125 s	5 s-100 s	20 s-25 s	140 μ s-30 s	6.25 s-6.25 s
1	1.001	1.045	1.366	2.290	3.172	6.293
2	1	1	1.035	1.302	1.610	2.812
3	1	1	1	1	1.137	1.046
4	1	1	1	1	1.001	1
5	1	1	1	1	1	1
6	1	1	1	1	1	1

TAB. D.3 – Valeur de la correction liée à la superposition des mesures

Table des figures

1.1	Schéma de l'émission de photon par Bremsstrahlung	8
1.2	Exemples de spectres de Bremsstrahlung en énergie et en angle simulé avec MCNPX	9
1.3	Allure générale de la section efficace de photoabsorption en fonction de l'énergie [Fin90]	13
1.4	Sections efficaces expérimentales de photoabsorption du neptunium-237 dans la zone de GDR	14
1.5	Temps caractéristiques des phénomènes suivant la fission [Bar93]	16
1.6	Schéma de la barrière de fission et déformation du noyau	17
1.7	Section efficace expérimentale de photofission de l'uranium-238	18
1.8	Distribution de masse des produits de fission pour différents noyaux [Uni73]	20
1.9	Distribution de masse suite à la fission de l'uranium-235 induite par des neutrons de différentes énergies [Gle81]	20
1.10	Schéma de décroissance par émission d'un neutron retardé	23
1.11	Spectres en énergie des quatre premiers groupes de neutrons retardés de l'uranium-235 issus de la fission induite par des neutrons thermiques [Bat56]	26
2.1	Principe du calcul des six groupes de neutrons retardés	34
3.1	Comparaison des résultats de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA pour le calcul de sections efficaces du carbone-12	40
3.2	Comparaison des résultats de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA pour le calcul de sections efficaces de l'aluminium-27	41
3.3	Comparaison des résultats de HMS-ALICE avec les évaluations de l'IAEA pour le calcul de sections efficaces du plomb-208	41
3.4	Sections efficaces de production de photoneutrons pour le tantale-181 calculées par HMS-ALICE (modélisation avec une seule lorentzienne) comparées aux évaluations de l'IAEA	42
3.5	Comparaison de sections efficaces de photoabsorption pour le tantale-181 (évaluation de l'IAEA, calcul HMS-ALICE avec une et deux lorentziennes)	45
3.6	Sections efficaces de production de photoneutrons pour le tantale-181 calculées par HMS-ALICE après modification de la section efficace de photoabsorption et comparées aux évaluations de l'IAEA	46
3.7	Comparaison des deux versions de HMS-ALICE aux évaluations de l'IAEA pour l'uranium-235 et l'uranium-238	46

TABLE DES FIGURES

3.8	Sections efficaces de photoabsorption pour l'uranium-235	50
3.9	Résultat de l'évaluation GNASH pour l'uranium-235 comparé aux données expérimentales	51
3.10	Sections efficaces de photoabsorption pour l'uranium-238	51
3.11	Résultat de l'évaluation GNASH pour l'uranium-238 comparé aux données expérimentales	52
3.12	Sections efficaces de photoabsorption pour le plutonium-239	53
3.13	Résultat de l'évaluation GNASH pour le plutonium-239 comparé aux données expérimentales	54
3.14	Sections efficaces de photoabsorption pour le neptunium-237	55
3.15	Résultat de l'évaluation GNASH pour le neptunium-237 comparé aux données expérimentales	56
3.16	Taux de fission du neptunium-237 pour différentes énergies de Bremsstrahlung	57
3.17	Résultat de l'évaluation GNASH pour le plutonium-240 comparé aux données expérimentales	60
3.18	Résultat de l'évaluation GNASH pour l'américium-241 comparé aux données expérimentales	60
3.19	Correspondance entre les distributions de produits de fission produits par fission induite par neutron et par photofission	63
3.20	Distribution isotopique de l'iode lors de la fission de l'uranium-234 et de l'uranium-235 comparée à la photofission de l'uranium-235 par des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	63
3.21	Exemple de barrière de potentiel utilisée dans ABLA (cas de l'uranium-238) [Ben98]	65
3.22	Distribution en masse des produits de photofission de l'uranium-238 avec des photons monoénergétiques de 17.5 MeV (données expérimentales, calcul ABLA et HMS-ALICE)	69
3.23	Distribution en masse suite à la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 25 MeV (données expérimentales, calcul ABLA et HMS-ALICE)	71
3.24	Distribution en charge de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV (données expérimentales, calcul ABLA et HMS-ALICE)	73
3.25	Distribution des isotopes de l'iode produits lors de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	73
3.26	Vue d'avion du LURE. Les bâtiments entourés sont ceux de l'accélérateur.	77
3.27	Schéma du calcul d'activation	78
3.28	Schéma de la zone du convertisseur avec l'emplacement des carottes en vert (coupe horizontale)	80
3.29	Activation en Bq/g de la zone convertisseur	80
3.30	Schéma de la création de la bibliothèque d'activation photonucléaire	84
1	1 Spectre d'émission de neutrons retardés pour différents actinides suite à la fission induite par neutron	88

4.1	Schéma du tube d'hélium-3	92
4.2	Efficacité du détecteur hélium-3 en fonction de l'énergie des neutrons incidents et de l'épaisseur de polyéthylène de la face avant	93
4.3	Niveaux d'énergie de la réaction $\alpha + {}^9\text{Be}$	94
4.4	Spectre en énergie des neutrons émis par la source d'américium-béryllium	95
4.5	Spectre en énergie des neutrons émis par la source de californium-252	96
4.6	Sections efficaces de production de neutrons à partir d'un faisceau de protons ou de deutons [Lan04]	97
4.7	Schéma de la zone expérimentale au 4 MV	98
4.8	Comparaison entre les mesures et la simulation MCNPX de l'efficacité du détecteur hélium-3	100
5.1	Dispositif expérimental auprès de l'accélérateur de 4 MeV	102
5.2	Mesure de la durée de la chute de CF1	103
5.3	Mesure du bruit de fond au 4 MV	104
5.4	Distribution en énergie des neutrons prompts issus de la fission induite par neutron de l'uranium-238 [Eth03]	107
5.5	Transmission des neutrons en fonction de leur énergie dans le barreau d'uranium	108
5.6	Proportionnalité entre le courant du faisceau de proton et le taux de comptage du BF_3	109
5.7	Influence de la durée d'irradiation sur la contribution relative de chaque groupe (à gauche : 300 s, à droite : 5 s)	111
5.8	Regroupement des canaux en temps pour les courbes de décroissance de neutrons retardés (irradiation : 125 s, décroissance : 125 s)	112
5.9	Comparaison des différentes méthodes d'analyse pour l'extraction des temps de vie et des contributions relatives (a_i)	114
5.10	Extraction des quatre premiers groupes obtenus lors de l'irradiation de 125 s	117
5.11	Extraction des groupes 3 à 5 obtenus lors de l'irradiation de 20 s	118
5.12	Extraction des groupes 4 à 6 obtenus lors de l'irradiation de 6.25 s	119
5.13	Données expérimentales et représentation en six groupes issue de notre mesure pour l'irradiation de 125 s	121
5.14	Données expérimentales et représentation en six groupes issue de notre mesure pour l'irradiation de 20 s	121
5.15	Données expérimentales et représentation en six groupes issue de notre mesure pour l'irradiation de 6.25 s	121
6.1	Géométrie de la cible de conversion et du collimateur d'ELSA utilisée dans MCNPX	126
6.2	Schéma de fonctionnement de l'obturateur	127
6.3	Schéma du dispositif expérimental à ELSA	128
6.4	Spectre brut de l'irradiation de 5 s	129
6.5	Bruit de fond lié à la haute tension sur la photocathode	130
6.6	Comparaison de nos données expérimentales avec la paramétrisation en six groupes de Nikotin [Nik65] pour le cycle d'irradiation 300 s-300 s	135

TABLE DES FIGURES

6.7	Comparaison de nos données expérimentales avec la paramétrisation en six groupes de Nikotin [Nik65] pour le cycle d'irradiation 5 s-100 s	135
6.8	Comparaison de nos données expérimentales avec la paramétrisation en six groupes de Nikotin [Nik65] pour le cycle d'irradiation 140 μ s-30 s	135
6.9	Extraction des groupes de neutrons retardés pour l'irradiation de 300 s . . .	137
6.10	Extraction des groupes de neutrons retardés pour l'irradiation de 5 s . . .	139
6.11	Extraction des groupes de neutrons retardés pour l'irradiation de 140 μ s .	140
6.12	Comparaison entre la paramétrisation en six groupes obtenue ici et les données expérimentales pour l'irradiation de 300 s	141
6.13	Comparaison entre la paramétrisation en six groupes obtenue ici et les données expérimentales pour l'irradiation de 5 s	141
6.14	Comparaison entre la paramétrisation en six groupes obtenue ici et les données expérimentales pour l'irradiation de 140 μ s	141
7.1	Contribution relative des différents groupes pour différentes énergies de Bremsstrahlung	146
7.2	Comparaison des prédictions de INCL et de Mashnik aux données expérimentales de GSI pour la distribution isotopique du brome dans le cas de la spallation du plomb par des protons de 1 GeV	148
7.3	Conséquence de la modification de la section efficace de photoabsorption pour l'uranium-235 et l'uranium-238	150
7.4	Nombre de neutrons retardés émis par l'uranium-238 suite à la fission induite par neutron en fonction de l'énergie du neutron incident	151
7.5	Nombre de neutrons retardés émis par l'uranium-238 issus de photofission en fonction de l'énergie maximale du Bremsstrahlung	152
7.6	Schéma du mini-irradiateur	154
C.1	Section efficace de photoabsorption pour le thorium-232	169
C.2	Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-233	170
C.3	Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-234	170
C.4	Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-235	171
C.5	Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-236	171
C.6	Section efficace de photoabsorption pour l'uranium-238	172
C.7	Section efficace de photoabsorption pour le plutonium-239	172
D.1	Structure en temps de la source	176

Liste des tableaux

1.1	Exemples de seuils de réactions photonucléaires (en MeV)	15
1.2	Variation du rapport pic/vallée en fonction de l'énergie maximale de Bremsstrahlung pour la photofission de l'uranium-238 [Jac79]	21
1.3	Temps de demi-vie des différents groupes et exemple de précurseurs	24
2.1	Liste des noyaux pour lesquels des distributions de produits de fission sont disponibles dans la bibliothèque d'activation de CINDER'90	32
2.2	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur l'uranium-235 (en gras les écarts supérieurs à 20%)	35
3.1	Comparaison des valeurs de E_1 pour différents noyaux (données expérimentales et RIPL-2)	45
3.2	Comparaison de l'intégrale des sections efficaces de photoabsorption pour le neptunium-237	55
3.3	Comparaison du taux de fission relatif du neptunium-237 (données expérimentales et évaluées) par rapport à l'uranium-238 (données de l'IAEA et évaluation GNASH entre parenthèses) pour différentes énergies de Bremsstrahlung	57
3.4	Efficacité de transmutation du neptunium-237 dans un flux de photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 20 MeV	58
3.5	Comparaison du taux de fission relatif de l'américium-241 (données expérimentales et évaluées) par rapport à l'uranium-238 (données de l'IAEA et évaluation GNASH entre parenthèses) pour différentes énergies de Bremsstrahlung	61
3.6	Comparaison du nombre de neutrons prompts émis	70
3.7	Caractéristiques de différentes distributions de photofission	71
3.8	Masse moyenne de quelques éléments produits lors de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	74
3.9	Distribution cumulative et contribution absolue de quelques précurseurs pour la photofission de l'uranium-238 avec des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	74
3.10	Répartition en six groupes du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	75

3.11 Répartition en six groupes du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec des photons de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV calculés avec deux bibliothèques de précurseurs différentes	75
3.12 Comparaison des activités calculées et mesurées du cobalt-60 dans les tranches des différentes carottes	81
3.13 Comparaison de calculs de transmutation dans le cas du strontium-90 dans un flux de photons (voir le texte pour les détails)	82
3.14 Comparaison de calculs de transmutation dans le cas du césium-137 dans un flux de photons (voir le texte pour les détails)	82
4.1 Comparaison entre les simulations et les mesures de l'efficacité intrinsèque du détecteur pour la source d'américium-béryllium	95
4.2 Comparaison entre les simulations et les mesures de l'efficacité intrinsèque du détecteur pour la source de californium	96
4.3 Comparaison entre les simulations et les mesures de l'efficacité du détecteur pour différentes énergies de neutrons monoénergétiques produits avec la cible de lithium	99
4.4 Comparaison entre les simulations et les mesures de l'efficacité du détecteur pour différentes énergies de neutrons monoénergétiques produits avec la cible de tritium	99
5.1 Résumé des irradiations au 4 MV	104
5.2 Valeurs initiales et plages de variation utilisées pour les temps de vie en secondes lors de l'ajustement numérique	113
5.3 Données des différents groupes pour la fission de l'uranium-238 induite par des neutrons rapides	116
5.4 Contribution des groupes 1 à 4 obtenue lors de l'irradiation de 125 s	117
5.5 Temps de vie des groupes 2 et 4 obtenu lors de l'irradiation de 125 s	117
5.6 Contribution relative des groupes 3, 4 et 5 obtenue lors de l'irradiation de 20 s	118
5.7 Temps de vie des groupes 4 et 5 obtenu lors de l'irradiation de 20 s	118
5.8 Contribution relative des groupes 4, 5 et 6 obtenue lors de l'irradiation de 6.25 s	120
5.9 Temps de vie du groupe 5 obtenu lors de l'irradiation de 6.25 s	120
5.10 Paramètres de la courbe de décroissance en neutrons retardés pour $n+^{238}\text{U}$ à 2 MeV comparés aux données expérimentales de Keepin	122
6.1 Résumé des irradiations à ELSA	128
6.2 Comparaison entre l'intensité du faisceau relevée et celle déduite de l'irradiation d'un barreau de cuivre	131
6.3 Contributions relatives des différents groupes extraites des différentes mesures caractérisées par le temps d'irradiation (en gras les contributions validées)	136
6.4 Contribution relative des différents groupes	136

6.5	Valeurs des différents paramètres pour $\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV Bremsstrahlung) après une irradiation de 300 s	138
6.6	Valeur des différents paramètres pour $\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV Bremsstrahlung) après une irradiation de 5 s	139
6.7	Valeur des différents paramètres pour $\gamma+^{238}\text{U}$ (15 MeV Bremsstrahlung) après une irradiation de 140 μs	140
6.8	Paramètres des six groupes de neutrons retardés issu de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	142
7.1	Rappel des résultats de la mesure de neutrons retardés à ELSA comparés aux données de Nikotin	145
7.2	Comparaison des prédictions de ABLA et HMS-ALICE et de nos résultats expérimentaux pour la représentation en six groupes du spectre d'émission de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV	147
7.3	Modèle à 12 groupes [Isa02]	149
7.4	Énergie des barrières de fission utilisées lors de l'évaluation GNASH	152
B.1	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur le thorium-232	165
B.2	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur l'uranium-233	166
B.3	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur l'uranium-233	166
B.4	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur l'uranium-235	166
B.5	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur l'uranium-238	167
B.6	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par neutron thermique sur le plutonium-239	167
B.7	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur le plutonium-239	167
B.8	Groupe de neutrons retardés pour la fission induite par des neutrons rapides sur le plutonium-240	168
D.1	Valeur de la correction pour différentes durées d'irradiation	175
D.2	Valeur de la correction pour différentes mesures avec un faisceau pulsé	177
D.3	Valeur de la correction liée à la superposition des mesures	180

Bibliographie

- [Ale86] B. M. ALEKSANDROV, A. S. KRIVOKHATSKIY, L. E. LAZAREVA, V. G. NEDOREZOV, P. S. SOLOSHENKOV et A. S. SUDOV : Neutron and fission widths of U-235, U-238, Np-237, Pu-239, Am-241 and Am-243 nuclei. *Yadernaya Fizika*, 43:p290, 1986.
- [Bar93] R. BARJON : *Physique des réacteurs nucléaires*. 1993.
- [Bat56] R. BATCHELOR et H. R. McK. HYDER : The energy of delayed neutrons from fission. *Journal of Nuclear Energy*, 3:p7, 1956.
- [Bel03] T. BELGYA, O. BERSILLON, R. CAPOTE NOY, T. FUKAHORI, G. ZHIGANG, S. GORIELY, H. HERMAN, A. V. IGNATYUK, S. KAILAS, A. KONIN, P. OBLOZINSKI, V. PLUJKO et P. G. YOUNG : RIPL 2 web site. *National Nuclear Data Center*, 2003. <http://www-nds.iaea.org/RIPL-2/>.
- [Bel04] T. BELGYA, O. BERSILLON, R. CAPOTE NOY, T. FUKAHORI, G. ZHIGANG, S. GORIELY, M. HERMAN, A. V. IGNATYUK, S. KAILAS, A. J. KONING, P. OBLOZINSKY, V. PLUKO et P. G. YOUNG : Reference Input Parameter Library RIPL-2. Handbook for calculations of nuclear reaction data. *IAEA-techdoc*, 2004.
- [Ben98] J. BENLLIURE, A. GREWE, M. DE JONG, K.-H. SCHMIDT et S. ZHANOV : Calculated nuclide productions yields in relativistic collisions of fissile nuclei. *Nuclear Physics A*, 628:p458, 1998.
- [Ber68] R. BERGERE, H. BEIL et A. VEYSSIÈRE : Photoneutrons cross sections of La, Tb, Ho and Ta. *Nuclear Physics A*, 121:p463, 1968.
- [Ber70] M. J. BERGER et S. M. SELTZER : Bremsstrahlung and photoneutrons from thick tungsten and tantalum targets. *Physical Review C*, 2 2:p621, 1970.
- [Ber86] B. L. BERMAN, J. T. CALDWELL, E. J. DOWDY, S. S. DIETRICH, P. MEYER et R. A. ALVAREZ : Photofission and photoneutron cross sections and photofission neutron multiplicities for ^{233}U , ^{234}U , ^{237}Np and ^{239}Pu . *Physical Review C*, 34 6:p2201, 1986.
- [Bla71] M. BLANN : Hybrid model for pre-equilibrium decay in nuclear reactions. *Physical Review Letters*, 27:p337, 1971.
- [Bla83] M. BLANN, B. L. BERMAN et L. L. KOMOTO : Precompound-model analysis of photonuclear reactions. *Physical Review C*, 28 6:p2286, 1983.
- [Bla96] M. BLANN : New pre-compound decay model. *Physical Review C*, 54 4:p1341, 1996.

- [Bla05] M. BLANN : Manual for code Alice. *Communication privée*, 2005.
- [Boh39] N. BOHR et J. A. WHEELER : The mechanism of nuclear fission. *Physical Review*, 56:p426, 1939.
- [Bra63] R. L. BRAMBLETT, J. T. CALDWELL, G. F. AUCHAMPAUGH et S. C. FULTZ : Photoneutron cross sections of Ta¹⁸¹ and Ho¹⁶⁵. *Physical Review*, 129:p2723, 1963.
- [Bra89] M. C. BRADY et T. R. ENGLAND : Delayed neutron data and group parameters for 43 fissioning systems. *Nuclear Science and Engineering*, 103:p129, 1989.
- [Bri00] J. F. BRIESMEISTER : MCNPTM - a general Monte Carlo N-Particle transport code - version 4C. *Los Alamos Manual LA-13709-M*, 2000.
- [Bru93] O. T. BRUN, C. A. BEARD, L. L. DAEMEN, E. J. PITCHER et W. B. WILSON : LAHET Code System/CINDER'90 validation calculations and comparison with experimental data. In *Twelfth Meeting of the International Colaboration on Advanced Neutron Sources, Abingdon, Oxfordshire, U. K.*, 24-28 mai 1993.
- [Bru03] R. BRUN, F. RADEMAKERS, S. PANACEK, I. ANTICHEVA et D. BUSKULIC : *The ROOT Users Guide*. 2003.
- [Cal80] J. T. CALDWELL, E. T. DOWDY, B. L. BERMAN, R. A. ALVAREZ et P. MEYER : Giant resonance for actinide nuclei : Photoneutron and photofission cross sections of ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U and ²³²Th. *Physical Review C*, 21 4:p1215, 1980.
- [Cha34] J. CHADWICK et M. GOLDHABER : A 'nuclear photo-effect' : Disintegration of the diplon by γ -rays. *Nature*, 134:p237, 1934.
- [Cha73] A. CHATTOPADYAY, K. A. DOST, K. A. KRAJBICH et D. H. SHARMA : Mass-yield distribution in photofission of ²³²Th and ²³⁸U. *Journal of inorganic nuclear chemistry*, 35:p2621, 1973.
- [Cha03a] M. B. CHADWICK et M.-L. GIACRI : Photonuclear reactions for detection of nuclear materials and nonproliferation. In *Proc. of the Intl. Conf. on Nuclear Reaction Mechanisms, Varenna, Italy*, June 2003. LA-UR-03-4005.
- [Cha03b] M. B. CHADWICK, P. G. YOUNG, R. E. MACFARLANE, M. C. WHITE et R. C. LITTLE : Photonuclear physics in radiation transport I : Cross sections and spectra. *Nuclear Science and Engineering*, 144:p157, 2003.
- [Com05] M. COMETTO, F. DAMOY, M.-L. GIACRI-MAUBORGNE, D. RIDIKAS et W. THOMAS : Étude de zonage déchets de l'accélérateur LURE. *Rapport interne : CEA Saclay, DSM/DAPNIA, DAPNIA-05-74*, 2005.
- [Cro01] Cross Section Working GROUP : ENDF-102 data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF-6, 2001. BNL-NCS-44945-01/04.
- [Dan58] M. DANOS : On the long range model of the photonuclear effect. *Nuclear Physics*, 5:23, 1958.
- [Dav03] J.-C. DAVID, M.-L. GIACRI-MAUBORGNE et D. RIDIKAS : Mass and charge distributions from photon-induced fission : Comparison with experimental data and yield from neutron-induced fission. In *Proc. Of the XVth Int. Workshop on Physics of Nuclear Fission, IPPE, Obninsk, Russie*, 7-10 Oct. 2003.

-
- [Dav04] J.-C. DAVID, D. DORÉ, M.-L. GIACRI-MAUBORGNE, D. RIDIKAS et A. VAN LAUWE : Fission fragments distributions and delayed neutrons. *In Proc. of the Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND04), Santa Fe, NM, USA. In AIP Conf. Proc. 769 (2005)*, page 1120, Sep. 26 - Oct. 1 2004.
- [DeF82] D. DE FRENNE, H. THIERENS, B. PROOT, E. JACOBS, P. DE GELDER, A. DE CLERQ et W. WESTMEIIEE : Charge distribution dor the photofission of ^{235}U and ^{238}U with 12-30 MeV bremsstrahlung. *Physical Review C*, 26 4:p1356, 1982.
- [DeF84] D. DE FRENNE, H. THIERENS, B. PROOT, E. JACOBS, P. DE GELDER et A. DE CLERQ : Isotopic distributions and elemental yield for the photofission of $^{235,238}\text{U}$ with 12-30 MeV bremsstrahlung. *Physical Review C*, 29 5:p1908, 1984.
- [Dia99] W. T. DIAMOND : A radioactive ion beam facility using photofission. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 432:p471, 1999.
- [Die88] S. S. DIETRICH et B. L. BERMAN : Atlas of photoneutron cross sections obtained with momoenergetic photons. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 38 2:p199, 1988.
- [Eng94] T. R. ENGLAND et B. F. RIDER : Evaluation and compilation of fission product yields. *ENDF-349, Los Alamos National Laboratory, preprint LA-UR-94-3106*, 1994. <http://ie.lbl.gov/fission.html>.
- [Eth03] T. ETHVIGNOT, M. DEVLIN, R. DROSG, T. GRANIER, R. C. HAIGHT, B. MORILLON, R. O. NELSON, J. M. O'DONNELL et D. ROCHMAN : Prompt-fission-neutron average energy for $^{238}\text{U}(n,f)$ from threshold to 200 MeV. *Physics Letters B*, 575:p221, 2003.
- [Fer50] E. FERMI : High-energy nuclear events. *Progress of Theoretical Physics*, 5:p570, 1950.
- [Fin90] D. J. S. FINDLAY : Applications of photonuclear reactions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 50:p314, 1990.
- [Fin92] D. J. S. FINDLAY, S. J. WATSON et M. R. SENÉ : Photofission and photoneutron measurements on ^{241}Am between 5 and 10 Mev. *Nuclear Physics A*, 548 3:p365, 1992.
- [Ful73] E. G. FULLER : *In Proc. of the Int. Conf. on Photonuclear Reactions and Applications, Asilomar*, page 1201, 1973.
- [Ful76] E. G. FULLER et E. HAYWARD : *Photonuclear reactions*. Dowden, Huchinson and Ross, 1976.
- [Ger00] L. P. GERALDO, R. SEMMLER, O. L. GONÇALEZ, J. MESA, J. D. T. ARRUDANETO, F. GARCIA et O. RODRIGUEZ : Photofission cross section for ^{237}Np in the energy interval from 5.27 to 10.83 MeV. *Nuclear Science and Engineering*, 136:p357, 2000.
- [Gia04] M.-L. GIACRI-MAUBORGNE, R. RIDIKAS, M. B. CHADWICK, J.-C. DAVID, D. DORÉ, A. VAN LAUWE et W. B. WILSON : Status of the photonuclear

activation data library for CINDER'90. *In Proc. of the Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND04), Santa Fe, NM, USA. In AIP Conf. Proc. 769 (2005)*, page 195, Sep. 26 - Oct. 1 2004.

- [Gia05a] M.-L. GIACRI-MAUBORGNE, M. B. CHADWICK, J.-C. DAVID, D. DORÉ, A. VAN LAUWE et W. B. WILSON : Evaluation of photonuclear cross sections for actinides. *In Proc. Of the 3rd Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, Cadarache, France. In AIP Conf. Proc. 798 (2005)*, page 31, 11-14 mai 2005.
- [Gia05b] M.-L. GIACRI-MAUBORGNE, M. B. CHADWICK, D. RIDIKAS, W. B. WILSON et P. YOUNG : Photonuclear physics in radiation transport III : Actinide cross sections and spectra. *Nuclear Science and Engineering*, 2005. Publication prévue en mai 2006.
- [Gle81] L. E. GLENDENIN, J. E. GINDLER, D. J. HENDERSON et J. W. MEADOWS : Mass distributions for monoenergetic-neutron-induced fission of ^{235}U . *Physical Review C*, 24:p2600, 1981.
- [Gma00] M. GMAR : *Dosage et différenciation des actinides dans les colis de déchets radioactifs par photofission et spectrométrie des gamma retardés de produits de fission*. Thèse de doctorat, INPG, 2000.
- [Gol48] M. GOLDHABER et E. TELLER : On nuclear dipole vibrations. *Physical Review*, 74:p1046, 1948.
- [Gri66] J. J. GRIFFIN : Statistical model of intermediate structure. *Physical Review Letters*, 17:p478, 1966.
- [Gun80] W. GÜNTER et K. HUBER : Symmetric and asymmetric yields in the photofission of ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu . *Zeitschrift für Physics A*, 295:333, 1980.
- [Gur76] G. M. GUREVICH, L. E. LAZAREVA, V. M. MAZUR, G. V. SOLODUKHOV et B. A. TULUPOV : Giant resonance in the total photoabsorption cross section near of $Z=90$ nuclei. *Nuclear Physics A*, 273:p326, 1976.
- [Hah39] O. HAHN et F. STRASSMANN : Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle. *Naturwissenschaft*, 27:p11, 1939.
- [Hau52] W. HAUSER et H. FESCHBACH : The inelastic scattering of neutrons. *Physical Review*, 87:p366, 1952.
- [Hug48] D. J. HUGHES, J. DABBS, A. CAHN et D. HALL : Delayed neutrons from fission of U^{235} . *Physical Review*, 73 2:p111, 1948.
- [Hui54] J. R. HUIZENGA, J. E. GINDLER et R. B. DUFFIELD : Relative photofission yields of several fissionable materials. *Physical Review*, 95 4:p1009, 1954.
- [IAE00] IAEA : Handbook on photonuclear data for applications. Cross sections and spectra. *IAEA TECHDOC*, 1178, octobre 2000.
- [Ibr03] F. IBRAHIM : The ALTO project at IPN Orsay. *Physics of Atomic Nuclei*, 66:p1399, 2003.

-
- [Isa02] S. G. ISAEV, V. M. PIKSAIKIN, L. E. KAZAKOV et V. A. ROSHCENKO : Delayed neutrons as a probe of nuclear charge distribution in fission of heavy nuclei by neutrons. *INDC (CCP) 342-8*, 2002.
- [Jac79] E. JACOBS, H. THIERENS, A. DE CLERCQ, P. D'HONDT, P. DE GELDER et A. J. DERUYTTER : Product yields for the photofission of ^{238}U with 12-, 15-, 20-, 30- and 70-MeV bremsstrahlung. *Physical Review C*, 19:p422, 1979.
- [Jal01] F. JALLU, A. LYOUSSI, C. PASSARD, E. PAYAN, H. RECROIX, G. NURDIN, A. BUISSON et J. ALLANO : Fissile and non-fissile element separation in concrete radioactive waste drums using the SIMPHONIE method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 179:p267, 2001.
- [Jon00] J. L. JONES, W. Y. YOON, Y. D. HARKER, J. M. HOGGAN, K. J. HASKELL et L. A. VAN AUSDEL : Proof-of-concept assessment of a photofission-based interrogation system for the detection of shielded nuclear material. *Idaho National Engineering and Environmental Laboratory*, INEEL/EXT-2000-01523, 2000.
- [Jun98] A. R. JUNGHANS, M. DE JONG, H.-G. CLERC, A. V. IGNATYUK, G. A. KUDYAEV et K.-H. SCHMIDT : Projectile-fragment yields as a probe for collective enhancement in the nuclear density level. *Nuclear Physics A*, 629:p635, 1998.
- [Kas92] T. KASE, A. YAMADERA, T. NAKAMURA, S. SHIBATA et I. FUJIWARA : Products yields of ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np and ^{239}Pu by photofission reaction with 20-, 30-, and 60 MeV Bremsstrahlung. *Nuclear Science and Engineering*, 111:p368, 1992.
- [Kee57a] G. R. KEEPIN, T. F. WIMET et R. K. ZEIGLER : Delayed neutrons from fissionable isotopes of uranium, plutonium and thorium. *Physical Review*, 107:p1044, 1957.
- [Kee57b] G. R. KEEPIN, T. F. WIMET et R. K. ZEIGLER : Delayed neutrons from fissionable isotopes of uranium, plutonium and thorium. *Journal of Nuclear Energy*, 6:p1, 1957.
- [Kee65] G. R. KEEPIN : *Physics of nuclear kinetics*. Addison-Wesley Publishing Company, Reading, Massachusetts, 1965.
- [Kis04] N. KISHIDA, T. MURATA, T. ASAMI, K. KOSAKO, K. MAKI, H. HARADA, Y.-O. LEE, J. CHANG, S. CHIBA et T. FUKATORI : JENDL photonuclear data file. *In Proc. of the Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND04), Santa Fe, NM, USA. In AIP Conf. Proc. 2005*, Sep. 26 - Oct. 1 2004.
- [Kle03] J.-C. KLEIN, Y. PENELIAU, C. TLILI, F. LAMBERT, D. RIDIKAS, H. SAFA et M.-L. GIACRI : Etude d'un concept de source basé sur la photofission. *Rapport interne SERMA/LCA/RT/02-3209/A*, 2003.
- [Kon04] A. J. KONING, S. HILAIRE et M. C. DUIJVESTIJN : TALYS : comprehensive nuclear modeling reaction. *In Proc. of the Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND04), Santa Fe, NM, USA. In AIP Conf. Proc. 2005*, page 1154, Sep. 26 - Oct. 1 2004.
- [Kor79] I. S. KORETSKAYA, V. L. KUSNETSOZ, L. E. LAZAREVA, V. G. NEDOREZOV et N. V. NIKITA : Photofission cross sections of ^{241}Am and ^{243}Am in the region of the E1 giant resonance. *Soviet Journal of Nuclear Physics*, 30 4:p472, 1979.

- [Kul70] L. A. KULL, R. L. BRAMBLETT, T. GOZANI et D. E. RUNDQUIST : Delayed neutrons from low energy photofission. *Nuclear Science and Engineering*, 39: p163, 1970.
- [Lan04] I. LANTUÉJOUL : *Étude expérimentale des mécanismes de pré-équilibre dans les réactions (n,xn)*. Thèse de doctorat, Université de Caen/Basse-Normandie, 2004.
- [Lev50] J. S. LEVINGER et H. A. BETHE : Dipole transitions in the nuclear photo-effect. *Physical Review*, 78:p115, 1950.
- [Li04] X. LI, R. HENKELMANN et F. BAUMGÄRTNER : Rapid determination of uranium and plutonium content in mixtures through measurement of the intensity-time curve of delayed neutrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 215:p246, 2004.
- [Lyo00] A. LYOUSSI, J. ROMEYER-DHERBEY, F. JALLU, E. PAYAN, A. BUISSON, G. NURDIN et J. ALLANO : Transuranic waste detection by photon interrogation and on-line delayed neutron counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 160:p280, 2000.
- [Mas00] S. G. MASHNIK et A. J. SIERK : CEM2k - recent developments in CEM. *In arXiv :nucl-th/0208048 - Proc. 2000 ANS/ENS International Meeting, Nuclear Applications of Accelerator Technology (AccApp00), Washington, DC, USA, November 12-16 2000*.
- [Mas02] S. G. MASHNIK, A. J. SIERK et K. K. GUDIMA : Complex particle and light fragment emission in the cascade-exciton model of nuclear reactions. *In arXiv :nucl-th/0208048 - 12th Biennial RPSD Topical Meeting, 2002, Santa Fe, NM, April 14-18, 2002*.
- [Mat88] T. MATSUMOTO : Calculations of gamma ray incineration of ^{90}Sr and ^{137}Cs . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 268:p234, 1988.
- [McC79] R. C. MCCALL et W. P. SWANSON : Neutrons sources and their characteristics. *In Proc. of Neutrons from Electron Medical Accelerators, Gaithersburg, April 9-10 1979*.
- [Mea66] J.-L. MEASON et P. K. KURODA : Photofission of U^{238} by 17.5 MeV monoenergetic gamma rays. *Physical Review*, 142:p691, 1966.
- [Mor72] R. MOREH et T. BAR-NOY : Utilization of 11.4 MeV photons from the $^{59}\text{Ni}(n,\gamma)^{60}\text{Ni}$ reaction for scattering experiments. *Nuclear Instruments and Methods*, 105:p557, 1972.
- [Mos62] G. MOSCATI et J. GOLDEMBERG : Delayed neutron yields in the photofission of U^{238} and Th^{232} . *Physical Review*, 126:p1098, 1962.
- [Nik65] O. P. NIKOTIN et K. A. PETRZHAK : Delayed neutrons in the photofission of heavy nuclei. *Atomnaya Energiya*, 20 3:p268, 1965.
- [Obl02] P. OBLOZINSKY : Photonuclear data. *Journal of Nuclear Science and Technology*, Supplement 2:p31, mars 2002.

-
- [Pfe01] B. PFEIFFER, K.-L. KRATZ et P. MÖLLER : Status of delayed-neutrons precursor data : half-lives and neutron emission probabilities. *arXiv :nucl-ex/0106020v1*, 2001.
- [Pik02] V. M. PIKSAIKIN, L. E. KAZAKOV, S. G. ISAEV, M. Z. TARASKO, V. A. RO-SHENKO, R. G. TERTYTCHNYI, G. D. SPIGGS et J. M. CAMPBELL : Energy de-pendance of relative abundances and periods of delayed neutrons from neutron-induced fission of ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu in 6- and 8-groups model representation. *Progress in Nuclear Energy*, 41:p203, 2002.
- [Pra01] R. E. PRAEL : Release notes for LAHET code system with LAHETTM version 3.16. *LA-UR-01-1655*, 2001.
- [Rid02] D. RIDIKAS, H. SAFA et M.-L. GIACRI : A sub-critical neutron irradiator driven by an electron accelerator. *In Proc of the 7. Information Meeting on Actinide and Fission Product P&T (NEA/OCDE), Jeju, Korea, Oct. 14-16 2002.*
- [Rid04] D. RIDIKAS, F. DAMOY, A. PLUKIS et R. PLUKIENE : Nuclear material interro-gation via high energy β -delayed neutrons and gamma rays from photofission. *In Proc. of the Int. Workshop NEMEA-2, Bucharest, Roumania, Oct. 20-23 2004.*
- [Rid05] D. RIDIKAS, P. BOKOV, J.-C. DAVID, D. DORÉ, M.-L. GIACRI, X. LEDOUX, A. PLUKIS, R. PLUKIENE et A. VAN LAUWE : Delayed neutrons from high energy fission-spallation reactions. *In Proc. Of the 3rd Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, Cadarache, France. In AIP Conf. Proc. 798 (2005), page 377, 11-14 mai 2005.*
- [Rob39a] R. ROBERTS, R. MEYER, F. HAFSTAD et P. WANG : The delayed neutrons emission which accompanies fission of uranium and thorium. *Physical Review*, 55:p664, 1939.
- [Rob39b] R. ROBERTS, R. MEYER et P. WANG : Further observations on splitting of uranium and thorium. *Physical Review*, 55:p510, 1939.
- [Run73] D. E. RUNDQUIST : Applications of photofission for the quantitative measure-ment of nuclear reactor fuel material. *In Int. Conf. on photonuclear reactions and applications, Pacific Grove, CA, USA, 26 mars 1973.*
- [Sch51] L. I. SCHIFF : Energy-angle distribution of thin target Bremsstrahlung. *Physical Review*, 83 2:p252, 1951.
- [Shc02] A. O. SHCHERBAKOV, A. Yu. DONETS, A. V. EVDOKIMOV, A. V. FOMICHEV, T. FUKAHORI, A. HASEGAWA, A. B. LAPTEV, G. A. PETROV, Yu. V. TUBOLT-SEV et A. S. VOROBYEV : Neutron-induced fission of ^{233}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{239}Pu and ^{232}Th in the energy range 1 - 200 MeV. *Journal of Nuclear Science and Technology Tokyo*, Supplement Vol.2, Issue.1:p230, 2002.
- [Sol94] A. S. SOLDATOV et G. N. SMIRENKIN : Results of relative measurement of photofission yields and cross sections for $^{233,235}\text{U}$, ^{237}Np , $^{239,241}\text{Pu}$ and ^{241}Am nuclei in the 5-11 MeV region. *INDC(CCP)*, 379, 1994.
- [Sol00] A. S. SOLDATOV, A. I. BLOKHIN, A. V. IGNATYUK et A. N. STOROZHENKO : Photofission of ^{238}Pu , ^{240}Pu and ^{242}Pu in the energy range 5-10 MeV. *Physics of Atomic Energy*, 63 1:p31, 2000.

- [Spr99] G. D. SPRIGGS, J. M. CAMPBELL et V. M. PIKSAIKIN : An 8-group delayed neutron model based on a consistent set of half-lives. *Report LA-UR-98-1619*, 1999.
- [Tam01] B. TAMAIN : Interactions rayonnement matière. *Support de cours de l'ISMRA*, 2001.
- [Thi76] H. THIERENS, D. DE FRENNE, E. JACOBS, A. DE CLERCQ, P. D'HONDT et A. J. DERUYTTER : Product yield for the photofission of ^{235}U and ^{238}U with 25-MeV bremsstrahlung. *Physical Review C*, 14 3:p1058, 1976.
- [Tho04] W. THOMAS : Étude déchets de deux installations nucléaires. *Rapport de stage de Master*, 2004.
- [Tul00] J.K. TULI : *Nuclear wallet card*. National Nuclear Data Center, janvier 2000.
- [Uni73] J. P. UNIK, J. E. GINDLER, L. E. GLENDENIN, K. F. FLYNN, A. GORSKI et R. K. SJOBLUM : *In Physics and Chemistry of Fission, IAEA, Vienna, Austria*, volume 11, page 19, 1973.
- [Var99] V. V. VARLAMOV, M. E. STEPANOV, N. N. PESKOV et D. S. RUDENKO : Atlas of giant dipole resonance parameters and graphs of photonuclear reaction cross sections. *INDC (NDS)-394*, 1999.
- [Var04] V. V. VARLAMOV, N. N. PESKOV, D. S. RUDENKO et M. E. STEPANOV : Consistent evaluation of photoneutron reaction cross-sections using data obtained in experiments with quasimonoenergetic annihilation photon beams at Livermore (USA) and Saclay (France). *INDC (CCP)-440*, page 37, 2004.
- [Ver02] P. VERTÈS et D. RIDIKAS : Some test calculations with the IAEA photonuclear data library. *Nuclear Science and Technology*, 2:p1167, 2002.
- [Vey73] A. VEYSSIÈRE, R. BERGERE, P. CARLOS et A. LEPRETRE : A study of photofission and photoneutron processes in giant dipole resonance of ^{232}Th , ^{238}U and ^{237}Np . *Nuclear Physics A*, 199:p45, 1973.
- [Vin76] Yu. A. VINOGRADOV, V. I. KASILOV, L. E. LAZAREVA, V. G. NEDOREZOV, N. N. NIKITINA, N. M. PAROVIK, Yu. N. RANYUK et P. V. SOROKIN : Fission of Am-241 and Am-243 nuclei by 50-1300 MeV photons. *Yadernaya Fizika*, 24:p686, 1976.
- [Wag91] C. WAGEMANS : *The Nuclear Fission Process*. 1991.
- [Wah69] A. C. WAHL et A. E. NORRIS : *In Proc. of the second Int. Symposium on Physics and Chemistry of Fission, Vienne, Autriche*, page p813, 1969.
- [Wal81] R. W. WALDO, R. A. KARAM et R. A. MEYER : Delayed neutron yields : Time dependant measurements and a predictive model. *Physical Review C*, 23 3:p1113, 1981.
- [Wat02] L. M. WATERS : MCNPXTM User's Manual Version 2.4.0. *Los Alamos National Laboratory, report LA-CP-02-408*, 2002.
- [Wei37] V. WEISSKOPF : Statistics and nuclear reactions. *Physical Review*, 52:p295, 1937.

-
- [Wei40] V. F. WEISSKOPF et D. H. EWING : On the yield of nuclear reactions with heavy elements. *Physical Review*, 57:p472, 1940.
- [Whi03] M. C. WHITE, R. C. LITTLE, M. B. CHADWICK, P. G. YOUNG et R. E. MACFARLANE : Photonuclear physics in radiation transport II : Implementation. *Nuclear Science and Engineering*, 144:p174, 2003.
- [Wil95] W. B. WILSON : Recent development of CINDER'90 transmutation code and data library for actinides transmutation studies. *In GLOBAL'95 Intenational Conference, Versailles, France, September 11-15 1995.*
- [Wil99] W. B. WILSON, T. R. ENGLAND et K. A. VAN KIPER : Status of CINDER'90 codes and data. *Los Alamos National Laboratory, preprint LA-UR-99-361*, 1999.
- [You96] P. G. YOUNG, E. D. ARTHUR et M. B. CHADWICK : Comprehensive nuclear model calculations : Introduction to the theory and use of GNASH code. *In Proc. IAEA Workshop Nuclear Reaction Data and Nuclear Reactors-Physics, Design, and Safety, Trieste, Italy, page 227, April 15-May 17 1996.*

BIBLIOGRAPHIE

Résumé en français : Création d'une bibliothèque d'activation photonucléaire et mesures de spectre d'émission de neutrons retardés

Cette thèse a deux objectifs.

Le premier consiste à produire une bibliothèque d'activation photonucléaire afin de développer les calculs d'activation induite par des photons. Pour créer cette bibliothèque, nous avons utilisé diverses sources de données : des évaluations mais aussi des calculs que nous avons effectués avec différents codes (HMS-ALICE, GNASH, ABLA). Cette bibliothèque contient les sections efficaces d'activation de plus de 600 noyaux mais aussi les distributions de fragments de fission pour 30 actinides à trois énergies maximales de Bremsstrahlung ainsi que les spectres d'émission de neutrons retardés associés. Ces spectres reproduisent assez mal les données expérimentales. Pour cette raison nous avons décidé de lancer une mesure systématique des spectres de neutrons retardés issus de photofission.

Deuxièmement cette thèse consiste à démontrer la faisabilité de telles mesures à ELSA. Nous avons alors développé le système de détection, l'acquisition et la méthode d'analyse des spectres. Ces développements ont été auparavant testés lors de la mesure des spectres d'émission de neutrons retardés issus de la fission induite par des neutrons de 2 MeV de l'uranium-238. Finalement nous avons mesuré le spectre d'émission de neutrons retardés suite à la photofission de l'uranium-238 avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale 15 MeV et nous avons comparé nos résultats aux données existantes.

Abstract : Development of a photonuclear activation file and measurement of delayed neutron spectra

This thesis work consists in two parts.

The first is the description of the creation of a photonuclear activation file which will be used to calculate photonuclear activation. To build this file we used different data sources : evaluations but also calculations done using several cross sections codes (HMS-ALICE, GNASH, ABLA). This file contains photonuclear activation cross sections for more than 600 nuclides and fission fragments distributions for 30 actinides at three different Bremsstrahlung energies and the delay neutron spectrum associated. These spectra are not in good agreement with experimental data. That's why we decided to launch measurement of delayed neutrons spectra from photofission.

The second part of this thesis consists in demonstrating the possibility to do such measurements at ELSA. For that we developed the detection, the acquisition system and the analysis method of such spectra. These were tested for the measurement of the delayed neutron spectrum of uranium-238 after irradiation in a 2 MeV neutron flux. After all, we measured the delayed neutron spectrum of uranium-238 after irradiation in a 15 MeV Bremsstrahlung flux. We compare our results with experimental data.

Discipline : physique nucléaire

Mots-clés : réactions photonucléaires, photoabsorption, fission nucléaire, produits de fission, neutrons, faisceaux de photons.