

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité

**ECOLE DOCTORALE 389 :
La physique de la particule au solide : Modèles et expériences**

Présentée par

Mademoiselle Véra MACARY

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS VI - PIERRE ET MARIE CURIE

Discipline : Physique Nucléaire

Sujet de la thèse :

Etude expérimentale de l'émission de neutrons retardés issus de la photofission des actinides

soutenue le 4 Avril 2008

devant le jury composé de :

Directeur de Recherche Bernard BERTHIER (Directeur de thèse)
Chercheur – Ingénieur Diane DORE (Responsable CEA)
Directeur de Recherche Gérard RUDOLF (Rapporteur)
Chercheur (thèse d'état) Stephan OBERSTEDT (Rapporteur)
Professeur de Paris VI Jean-Pierre ROZET (examineur)
Directeur de Recherche au CEA Nicolas ALAMANOS (examineur)
Chercheur – Ingénieur Xavier LEDOUX (examineur)

Thèse préparée dans le Service de Physique Nucléaire au Commissariat à l'Energie Atomique (CEA/ Saclay), CEA/DSM/IRFU/SPhN

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord Nicolas Alamanos, Michel Garçon et Françoise Auger de m'avoir accueilli au sein du Service de Physique Nucléaire.

Mes seconds remerciements vont à Diane Doré pour m'avoir encadré, guidé, aidé, encouragé et surtout qui m'a permis de réussir ce travail de thèse. Merci pour tout Diane. Je remercie également Bernard Berthier pour avoir dirigé ce travail de thèse et pour son soutien pendant toutes ces années.

Je voudrais ensuite témoigner ma reconnaissance à tous les membres du jury. Merci à Jean-Pierre Rozet pour avoir accepté de le présider, merci à Gérard Rudolf et Stephan Oberstedt, les deux rapporteurs, pour leur lecture minutieuse du manuscrit. Je remercie aussi Nicolas Alamanos et Xavier Ledoux d'avoir accepté de faire partie du jury. Merci une nouvelle fois à Bernard Berthier d'avoir dirigé cette thèse et Diane Doré pour l'avoir encadré.

Je tiens à remercier Danas Ridikas et Eric Berthoumieux pour leurs conseils et leur soutien pendant ces années. Je voudrais remercier tous les membres du groupe Mesures Nucléaire et Modélisation : Emmeric Dupont, Frank Gunsing, Alain Letourneau, David Lhuillier, Stefano Panebianco. Merci à tous les thésards et les post-doctorants du groupe : Dana, Gediminas, Alin, Priyamvada, Franco.

Je fournis un grand merci à Egle Tomasi, ma tutrice, pour son écoute et ses conseils.

Je remercie également : Sébastien Boyer, Pavel Bokov, Olivier Bringer, Sébastien Chabod, Marie-Laure Giacri-Mauborgne, Walid Dridi, Aymeric Van Lauwe et Jean Marc Laborie.

Je désire remercier grandement Danielle Coret et Isabelle Richard, nos secrétaires, Valérie Poyeton, notre bibliothécaire, Gilles Tricoche, Pierre-Francois Honoré et Patrick Champion, nos techniciens.

Merci à mes amis qui m'ont encouragé pendant ces années ; je ne les nommerai pas de crainte d'en oublier.

Enfin, mes remerciements vont à mes parents et mes sœurs qui m'ont soutenu tout au long de ces années avec un immense merci à Jojo pour ton écoute, ton soutien et tes conseils dès le premier jour de mon arrivée en France.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION	11
CHAPITRE 1 ELEMENTS DE PHYSIQUE	15
1.1 PHENOMENOLOGIE DE LA FISSION	15
1.2 FISSION INDUITE PAR NEUTRONS	16
1.2.1 <i>Section efficace de fission neutronique</i>	17
1.2.2 <i>Chronologie de la fission</i>	20
1.2.3 <i>Distribution en masse des produits de fission</i>	20
1.2.4 <i>Neutrons prompts</i>	22
1.2.5 <i>Neutrons retardés</i>	22
1.3 REACTIONS PHOTONUCLEAIRES ET PHOTOFISSION	27
1.3.1 <i>Photoabsorption</i>	27
1.3.2 <i>Photofission</i>	29
CHAPITRE 2 PHOTOFISSION POUR LES APPLICATIONS	35
2.1 SONDE : RAYONNEMENT DE BREMSSTRAHLUNG	35
2.2 OBSERVABLES ETUDIEES	37
2.3 REVUE DES DONNEES EXISTANTES SUR LES NEUTRONS RETARDES DE LA PHOTOFISSION	38
2.3.1 <i>Mesures de rendements de neutrons retardés</i>	38
2.3.2 <i>Mesures des spectres temporels de neutrons retardés</i>	43
2.4 PROCEDURE EXPERIMENTALE	46
2.4.1 <i>Stratégie de mesure des rendements absolus</i>	47
2.4.2 <i>Stratégie de mesure des paramètres des six groupes de neutrons retardés</i> 48	
2.5 MODELISATION	49
2.5.1 <i>Calcul du spectre de Bremsstrahlung : MCNPX</i>	50
2.5.2 <i>Absorption du Bremsstrahlung : GDR</i>	50
2.5.3 <i>Désexcitation du noyau composé : ABLA</i>	50
2.5.4 <i>Evolution des produits de fission : CINDER'90</i>	50
CHAPITRE 3 DISPOSITIF EXPERIMENTAL	53
3.1 PRESENTATION GENERALE	53
3.2 INSTALLATION ELSA	53
3.3 CIBLES D'ACTINIDES	55
3.4 OPTIMISATION DU DETECTEUR DE NEUTRONS RETARDES	56
3.4.1 <i>Problématique</i>	56
3.4.2 <i>Choix du détecteur</i>	57
3.4.3 <i>Optimisation des dimensions du détecteur</i>	58
3.4.4 <i>Détecteur optimisé</i>	61
3.4.5 <i>Calcul de l'efficacité de détection pour les différentes cibles</i>	61
3.5 ACQUISITION ET ELECTRONIQUE	63
3.5.1 <i>Synchronisation faisceau-acquisition</i>	63
3.5.2 <i>Acquisition et électronique</i>	64

CHAPITRE 4 MESURES DES RENDEMENTS ABSOLUS DE NEUTRONS RETARDES EN FONCTION DE L'ENERGIE ELECTRON POUR LE ^{232}Th , L' $^{235,238}\text{U}$ ET LE ^{237}Np67

4.1	STRATEGIE DE MESURES DE RENDEMENTS ABSOLUS DE NEUTRONS RETARDES	67
4.2	SPECTRE TEMPOREL	68
4.2.1	<i>Mesures</i>	68
4.2.2	<i>Traitement des données</i>	69
4.3	MESURE DE BRUIT DE FOND	71
4.4	CONTRIBUTION D'AUTRES FISSIONS A L'EMISSION DE NEUTRONS RETARDES	73
4.5	EFFICACITE DE DETECTION	73
4.6	CALCUL DU NOMBRE DE FISSIONS	74
4.7	RENDEMENT ABSOLU : DISCUSSION DES RESULTATS ET COMPARAISON AVEC LE MODELE.....	76
4.7.1	<i>Thorium-232</i>	76
4.7.2	<i>Uranium-238</i>	79
4.7.3	<i>Uranium-235</i>	81
4.7.4	<i>Neptunium-237</i>	83

CHAPITRE 5 MESURES DES PARAMETRES DE NEUTRONS RETARDES ISSUS DE LA PHOTOFISSION DE L'URANIUM-235 ET DU NEPTUNIUM-23787

5.1	EXPERIENCE DE L' ^{235}U A 15 MeV ET A 18 MeV	87
5.1.1	<i>Spectres temporels</i>	87
5.1.2	<i>Mesure du bruit de fond</i>	88
5.1.3	<i>Analyse des données</i>	90
5.1.4	<i>Analyse des résultats à 15 MeV</i>	94
5.1.5	<i>Analyse des résultats à 18 MeV</i>	102
5.1.6	<i>Discussion des résultats</i>	107
5.2	ANALYSE DE LA MESURE DU ^{237}Np A 15 MeV	112
5.2.1	<i>Mesures</i>	112
5.2.2	<i>Traitement des spectres</i>	114
5.2.3	<i>Comparaison avec les paramètres de Ganich</i>	114
5.2.4	<i>Analyse</i>	116
5.2.5	<i>Résultat global</i>	119
5.2.6	<i>Discussion des résultats</i>	120

CHAPITRE 6 IDENTIFICATION ISOTOPIQUE ET QUANTIFICATION D'UN MELANGE D'ACTINIDES125

6.1	DEMARCHE EXPERIMENTALE	125
6.2	ANALYSE DES DONNEES	126
6.3	RESULTATS	127
6.3.1	<i>Identification isotopique</i>	127
6.3.2	<i>Evolution du comptage avec la masse d'^{235}U et d'^{238}U</i>	129
6.3.3	<i>Rapport des masses</i>	129
6.3.4	<i>Quantification des masses d'actinides</i>	130

CHAPITRE 7 MESURE DU RENDEMENT ABSOLU DE NEUTRONS RETARDES DU ²³²TH.....	135
7.1 EXPERIENCE AU 4 MV	135
7.1.1 Production du faisceau de neutrons au 4 MV.....	136
7.1.2 Système de détection	138
7.1.3 Acquisition et électronique	138
7.1.4 Stratégie de mesures	139
7.1.5 Mesures.....	139
7.1.6 Analyse des données	142
7.1.7 Rendement absolu de neutrons retardés.....	143
7.2 MESURES AU TANDEM	146
Conclusion	149
Annexes	153
Annexe A	155
Annexe B	159
Annexe C	163
Table des figures	167
Liste des tableaux.....	173
Bibliographie.....	177

Introduction

Il existe actuellement un regain d'intérêt pour les réactions de photofission. En effet, plusieurs applications basées sur la photofission ont vu le jour ces dernières années. Citons, parmi les plus courantes, la caractérisation des déchets nucléaires et la détection des matériaux fissiles à la frontière entre les pays pour lutter contre la prolifération nucléaire. La faisabilité de cette dernière application est étudiée conjointement par deux laboratoires aux Etats-Unis depuis 2002: Idaho National Engineering and Environmental Laboratory (INEEL) et Los Alamos National Laboratory (LANL). Leur but est de détecter la présence ou de confirmer l'absence de matière fissile dans les conteneurs transportés vers l'intérieur des Etats-Unis. Pour ce faire, ils utilisent des flux de photons provenant du rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) d'un faisceau d'électrons sur des cibles lourdes (Tantale, Tungstène). Le faisceau d'électrons, quant à lui, est fourni par un accélérateur linéaire d'électrons transportable avec une énergie réglable jusqu'à 12 MeV. Les photons ont été privilégiés par rapport aux neutrons car ils activent moins les matériaux irradiés. Les photons induisent la photofission des actinides éventuellement présents pour des énergies supérieures à 6 MeV. De nombreux produits de fission riches en neutron étant des précurseurs de neutrons retardés, la signature de la présence d'actinides sera donc la détection de neutrons après interruption du faisceau. La même méthode est utilisée pour la caractérisation des déchets nucléaires. Elle constitue pour cette application une nouvelle méthode active non destructive qui s'ajoute à l'interrogation par neutron. Elle permet de s'affranchir des limitations imposées par les méthodes non destructives passives comme la spectrométrie gamma ou la détection passive de neutrons émis lors de la fission spontanée des actinides.

Au CEA, deux projets mettant en jeu le processus de photofission sont en cours. Le premier, le projet INPHO (INterrogation PHotonique), mené au CEA depuis 2004 a pour but de faire l'analyse non-destructive des colis de déchets afin d'optimiser leur classement en TFA (très faible activité) ou FA (faible activité). Le deuxième voit actuellement le jour au CEA. Il s'agit du projet DEMIP (DEtection de Matière par Interrogation Photonique) visant à détecter les matières nucléaires dans des conteneurs afin de lutter contre la prolifération. Le SPhN est impliqué dans ces deux projets et a la tâche de fournir les données nucléaires de base nécessaires à l'optimisation de ces applications.

Les neutrons retardés, comme il est mentionné ci-dessus, sont un élément important pour l'interrogation non-destructive afin de détecter la présence d'actinides. Les précurseurs de neutrons retardés, sont regroupés traditionnellement en six groupes selon leur temps de demi-vie, cette représentation ayant été adoptée en physique des réacteurs. Chaque actinide a une signature unique en ce qui concerne les caractéristiques des neutrons retardés : la contribution relative en neutrons et le temps de demi-vie de chaque groupe (a_i , T_i) ainsi que le rendement absolu de neutrons retardés (v_d). L'ensemble de ces caractéristiques va permettre, outre la détection de la matière fissile, l'identification et la quantification de cette matière. Les mesures de neutrons retardés en photofission sont rares contrairement à celles réalisées en fission par neutron qui sont nombreuses et motivées par le rôle de ces neutrons dans le pilotage des réacteurs. Les mesures en photofission ont été effectuées dans les années

60-70. Les résultats de ces expériences sont parfois incohérents voire contradictoires. De plus, plusieurs d'entre eux présentent de grandes incertitudes.

Pour mener à bien les applications en cours et celles envisagées, la qualité et la quantité des données existantes sont insuffisantes. Pour cette raison, une campagne expérimentale de mesures de spectres d'émission de neutrons retardés a été entreprise par une équipe du Service de Physique Nucléaire (SPhN) à Saclay en collaboration avec le Service de Physique Nucléaire (SPN) du CEA/DIF en 2004. Les expériences se déroulent auprès de l'accélérateur d'électrons ELSA à Bruyères-le-Châtel. En parallèle à cette étude expérimentale, une modélisation de ces expériences a été développée. Elle permettra de fournir des informations pour les actinides qui ne sont ou ne seront pas mesurés. Cette modélisation est en cours de validation sur nos propres mesures.

Les premiers actinides qui ont été étudiés par notre groupe sont l'uranium-238 (^{238}U) et le thorium-232 (^{232}Th). Ces travaux ont mis en évidence, comme il sera démontré, la nécessité de mesurer à nouveau les paramètres des groupes pour les principaux actinides. Le programme expérimental a donc été poursuivi par les mesures des spectres temporels d'émission de neutrons retardés de l'uranium-235 (^{235}U) et du neptunium-237 (^{237}Np). Ces deux expériences récentes ainsi que l'analyse constituent une partie du travail présenté ici.

Les mesures de rendements absolus disponibles dans la littérature et nos résultats sur l' ^{238}U et le ^{232}Th ont fait apparaître une certaine dispersion des mesures en fonction de l'énergie. Un intérêt particulier a donc été porté pendant cette thèse à l'étude de l'évolution du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie maximale du faisceau de Bremsstrahlung incident, relié à l'énergie d'excitation moyenne du noyau, pour quelques actinides (^{232}Th , ^{235}U , ^{237}Np , ^{238}U).

L'une des applications de la photofission mentionnée précédemment est l'identification isotopique et la quantification d'un mélange d'actinide. Une expérience préliminaire avec des mélanges d'actinides a donc été effectuée. Les résultats pour les paramètres des groupes et les rendements absolus lors de notre campagne ont été mis à profit afin d'extraire le contenu isotopique d'un mélange d'actinides.

Les divers points abordés ci-dessus sont détaillés dans les différents chapitres de ce document. Dans le premier chapitre, les notions de physique utilisées pendant cette thèse sont présentées. Une revue détaillée des données existantes sur les neutrons retardés issus de la photofission d'actinides est effectuée dans le deuxième chapitre. Ensuite la stratégie de mesure adoptée lors de notre campagne expérimentale est expliquée. Enfin, la dernière partie de ce chapitre est consacrée à la modélisation de nos expériences et aux codes de calcul utilisés pour y parvenir.

Une description du dispositif expérimental utilisé pendant cette campagne est faite au troisième chapitre : l'accélérateur d'électrons ELSA, les cibles qui seront utilisées, le détecteur et le système d'acquisition sont décrits. L'optimisation du détecteur est détaillée. Une expérience dédiée à l'étude de l'évolution du rendement absolu de neutrons retardés pour différents actinides en fonction de l'énergie maximale du faisceau de photons de Bremsstrahlung a été effectuée en

Novembre 2006. Elle est décrite en détail au quatrième chapitre et les résultats sont discutés et comparés aux mesures antérieures et aux résultats de la modélisation. Le cinquième chapitre est consacré aux expériences de mesures de spectres temporels de neutrons retardés effectuées pour l' ^{235}U avec des énergies maximales de faisceau de Bremsstrahlung de 15 et 18 MeV et pour le ^{237}Np avec une énergie de 15 MeV. Ces expériences sont décrites au cinquième chapitre. La méthode d'analyse des spectres est détaillée et les paramètres extraits sont ensuite comparés à ceux de la littérature et de la modélisation.

Dans le sixième chapitre, nous présentons l'expérience que nous avons menée pour tester la faisabilité de l'identification isotopique et la quantification d'un mélange d' ^{235}U et d' ^{238}U .

Parallèlement aux expériences de photofission, notre groupe est impliqué dans des mesures de rendements de neutrons retardés issus de la fission induite par neutron du ^{232}Th . L'expérience acquise dans la mesure des neutrons retardés et l'extraction des paramètres des six groupes et des rendements absolus, est mise ici à profit pour fournir des données recommandées par l'OECD/NEA dans le cadre des études sur les réacteurs innovants, notamment en ce qui concerne le cycle Th-U. Dans la seconde partie du document, l'expérience de fission induite par neutron du ^{232}Th qui s'est déroulée auprès de l'accélérateur électrostatique de particules 4MV au CEA/DIF est présentée. Une description détaillée de cette expérience est effectuée. Les rendements ont pu être déterminés pour trois énergies différentes : 2,0, 2,4 et 16,0 MeV. Ces résultats sont comparés à ceux de la littérature ainsi qu'aux évaluations.

Les conclusions de ce travail et les perspectives envisagées sont finalement discutées.

Chapitre 1 Eléments de physique

Dans ce premier chapitre, nous ferons un rappel des éléments de physique que nous utiliserons dans ce document. Ce rappel contient des informations qui concernent à la fois les mécanismes de réaction et les produits de réaction. Nous discuterons donc de la fission et des produits de fission. Puis nous nous intéresserons particulièrement aux neutrons retardés issus de la fission qui constituent le sujet principal de cette étude. Ces éléments seront détaillés dans le cadre de la fission induite par neutron puisque les données disponibles pour cette réaction sont abondantes. Les réactions photonucléaires seront ensuite brièvement présentées. Les caractéristiques de la photofission (sections efficaces, distributions de produits de fission) seront finalement abordées. Les neutrons retardés issus de la photofission faisant l'objet de ce travail, ils seront abondamment discutés dans le chapitre 2.

1.1 Phénoménologie de la fission

La fission est la scission d'un noyau lourd en deux fragments plus légers. Elle peut avoir lieu après interaction avec des neutrons, des particules chargées, des rayons gammas, ... Ce dernier type de fission est nommé photofission et sera le mécanisme utilisé lors de notre étude sur les neutrons retardés. Dans cette section, nous rappelons les propriétés et les notions fondamentales de la fission induite par neutron ou fission neutronique

Le processus de la fission induite par neutron fut découvert en décembre 1938 par Otto Hahn et Fritz Strassmann. En 1939, Bohr et Wheeler ont décrit la fission en s'appuyant sur le modèle de la goutte liquide [Boh39] développé par Von Weizsäcker (1935). Ce modèle est basé sur des analogies entre la goutte liquide et la matière nucléaire suggérées par Bohr. Les hypothèses essentielles sont :

- Le noyau est de la matière incompressible d'où $R \sim A^{1/3}$
- La force nucléaire est identique pour chaque nucléon, en particulier elle ne dépend pas de la nature du nucléon (neutron ou proton)
- La force nucléaire est à courte portée.

Il a été construit pour expliquer le comportement de l'énergie de liaison des noyaux dans leur état fondamental en fonction de leur nombre de masse A et de leur numéro atomique Z . L'énergie de liaison étant l'énergie minimale qu'il faut fournir au noyau pour libérer tous ses nucléons. La formule semi-empirique dite de Bethe et Weizsäcker associée à ce modèle est :

$$B(A, Z) = a_v A - a_s A^{2/3} - a_c \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}} - a_a \frac{(N-Z)^2}{A} \pm \delta \quad (1.1)$$

où $a_v A$ est le terme dépendant du volume appelé aussi énergie de volume

$-a_s A^{2/3}$ est le terme de surface proportionnel à l'aire $4\pi R^2$ qui représente l'énergie de surface

$-a_c \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}}$ est le terme représentant l'énergie de répulsion coulombienne entre les protons

$-a_a \frac{(N-Z)^2}{A}$ est le terme d'énergie d'asymétrie

δ est le terme d'énergie d'appariement valant zéro pour les nucléides dont A est impair, positif pour les nucléides pairs-pairs et négatif pour les nucléides impairs-impairs.

Les quatre constantes de la relation (1.1) sont déterminées par ajustement sur les énergies de liaisons mesurées. L'énergie de liaison par nucléon traitée par la formule de Bethe et Weizsäcker est représentée en fonction de la masse A sur la figure 1.1.

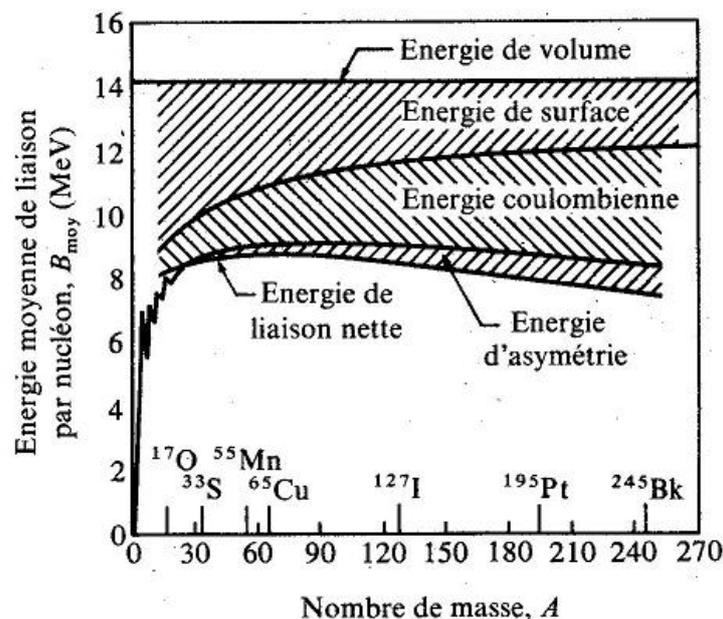


Figure 1.1 – Energie de liaison par nucléon en fonction du nombre de masse A. Les différents termes de l'énergie de liaison sont aussi présentés [Mey67].

1.2 Fission induite par neutrons

Selon le modèle de la goutte liquide, la forme d'un noyau est sphérique. Une perturbation externe tel qu'un neutron incident peut déformer le noyau et modifier les deux contributions à l'énergie de liaison : l'énergie de surface E_s et l'énergie coulombienne E_c . Quand la déformation augmente, l'énergie de surface augmente et

l'énergie coulombienne diminue. Le noyau se met à osciller sous l'effet des deux tendances contraires de E_s et E_c , il va s'allonger. Si l'énergie d'excitation apportée par le neutron incident est suffisamment importante, les deux bouts de l'élongation peuvent produire une structure de deux lobes. Ces derniers constituant deux centres chargés positivement se repoussent jusqu'à ce que le noyau initial soit complètement cassé en deux fragments c'est à dire qu'une fission soit produite. En revanche, si la déformation initiale n'est pas très importante, le noyau tend à revenir à sa forme initiale. La figure 1.2 illustre le processus de la fission que nous venons de décrire. Elle montre la variation de l'énergie potentielle du système en fonction de la distance qui sépare les deux fragments supposés identiques.

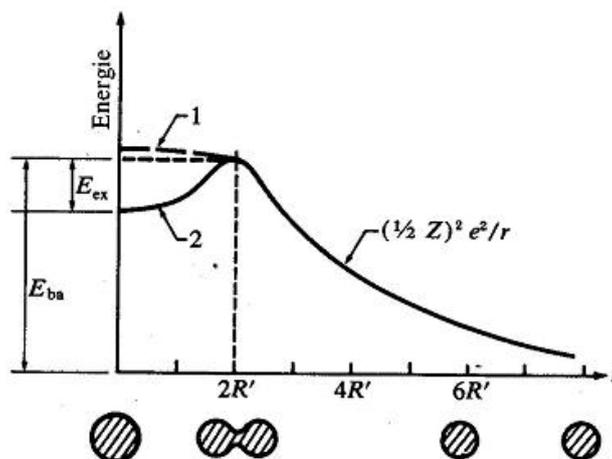


Figure 1.2 – Diagramme de l'énergie potentielle. La forme approximative du système est donnée en dessous de l'axe des abscisses [Mey67].

L'énergie d'excitation fournie au noyau pour qu'il se casse lui permet de franchir sa *barrière de fission*. Elle est de l'ordre de 5 à 7 MeV pour les noyaux lourds. Le phénomène décrit ci-dessus est la fission induite par neutron et est appelé fission de première chance. Il existe aussi la fission de seconde chance, de troisième chance, ..., de n-ième chance. La fission de seconde chance est expliquée par la possibilité de la désexcitation du noyau composé, formé du noyau et de la particule incidente, par émission d'un neutron. Si le noyau résiduel garde une énergie d'excitation interne plus grande que sa barrière de fission, il peut fissionner.

Mentionnons aussi le cas de la fission spontanée qui, contrairement au mécanisme décrit ci-dessus, se produit sans interaction avec une particule. Le noyau traverse la barrière de fission par effet tunnel. C'est le cas, notamment, du californium-252 qui est utilisé comme source de fragments ou de neutrons.

1.2.1 Section efficace de fission neutronique

La probabilité de fission neutronique des noyaux pairs est différente de celle des noyaux impairs. La section efficace de fission des noyaux impairs fissiles est caractérisée par une variation en $1/v$ (v étant la vitesse du neutron) pour le domaine thermique (25 meV – 1 eV), suivie d'une région de résonances bien résolues au début puis tendant vers le continuum dans le domaine épithermique. Dans le domaine

rapide, la section efficace décroît jusqu'à se stabiliser suivant un palier comme le montre la figure 1.3 dans le cas de l'uranium-235 (trait plein).

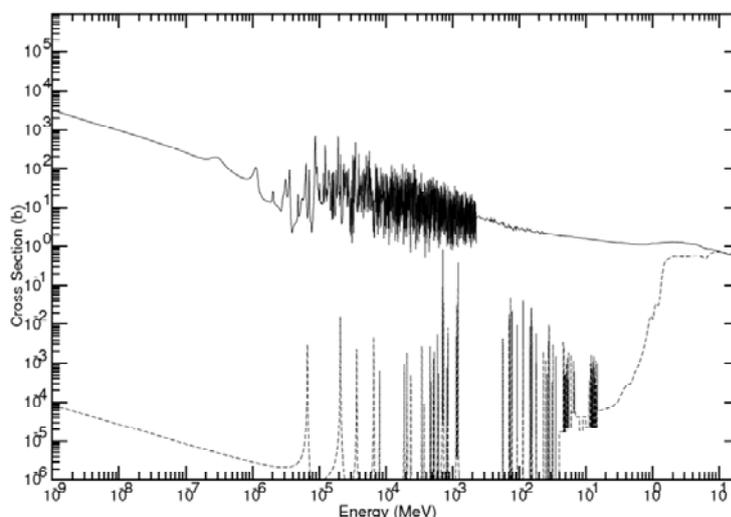


Figure 1.3 – Section efficace de la fission induite par neutron de l' ^{235}U (ligne continue) et de l' ^{238}U (pointillé) en fonction de l'énergie de neutron incident.

Les sections efficaces de fission de quelques actinides induite par des neutrons thermiques (0,025eV) sont données dans le tableau 1.1. Ces noyaux sont nommés noyaux fissiles parce qu'ils subissent la fission pour un neutron incident d'énergie nulle.

Nucléide	Section efficace de fission (barns)
^{235}U	585
^{239}Pu	748
^{241}Pu	1012

Tableau 1.1 – Sections efficaces de fission induite par des neutrons thermiques pour quelques actinides [END07].

Pour les noyaux pair – pair non fissiles, la fission est une réaction à seuil comme on peut le voir sur la figure 1.3 où la section efficace de fission de l' ^{238}U est représentée par la courbe pointillée. Les sections efficaces de fission pour les neutrons rapides sont de l'ordre de quelques barns. La figure 1.4 représente la section efficace de l' ^{238}U en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Nous pouvons observer sur ce graphe les seuils (flèches) des fissions de seconde et troisième chance. Lors du franchissement d'un seuil, la section efficace augmente rapidement puis se stabilise.

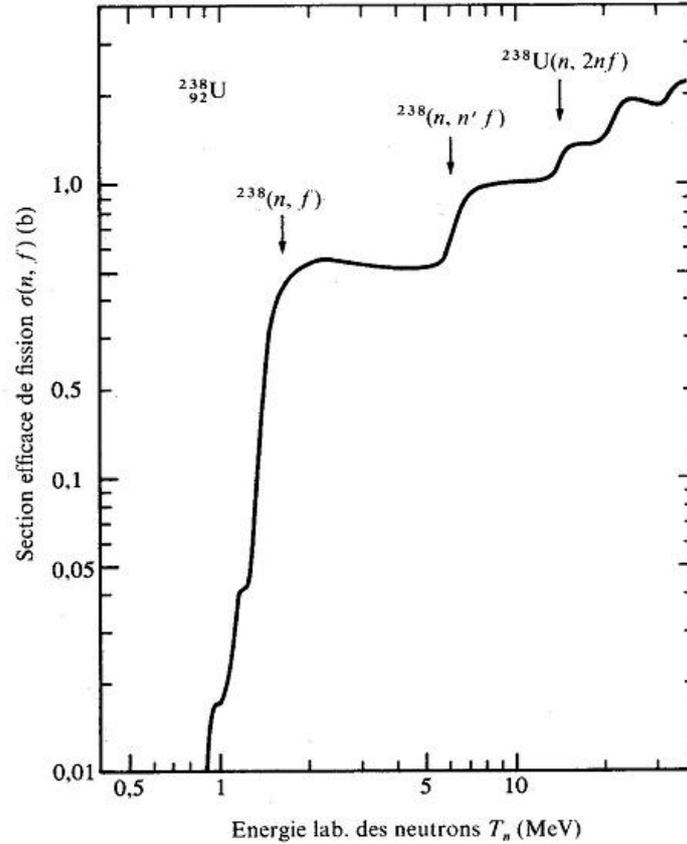


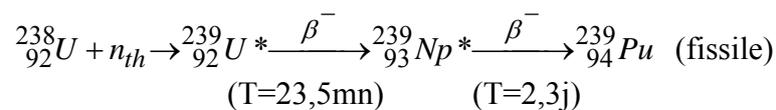
Figure 1.4 – Section efficace de fission de l' ^{238}U en fonction de l'énergie du neutron. Les différents seuils de fission sont indiqués jusqu'à la fission de troisième chance [Mey67].

Le tableau 1.2 ci-dessous regroupe la valeur de la section efficace de fission induite par un neutron incident de 2 MeV pour quelques actinides dont le noyau est pair – pair.

Nucléide	Section efficace de fission (barns)
^{232}Th	0,114
^{238}U	0,534
^{240}Pu	1,750

Tableau 1.2 – Sections efficaces de fission induite par des neutrons de 2 MeV pour quelques actinides [END07].

Ces noyaux sont appelés noyaux fertiles puisqu'ils ne fissionnent pas aux énergies thermiques mais conduisent à un noyau fissile. Par exemple :



1.2.2 Chronologie de la fission

La cassure d'un noyau mène à deux fragments de fission dans un état excité. Ces fragments se désexcitent par émission de neutrons dans un temps très court après la fission (environ 10^{-17} s). Ces neutrons sont donc appelés neutrons prompts. Ils sont suivis par une émission des gammas prompts. Les fragments restants sont appelés, à ce stade, produits de fission. Certains de ces produits, riches en neutrons, se désintègrent par émission β^- . Parfois après cette émission, les produits de fission gardent une énergie d'excitation suffisante pour émettre un neutron, celui-ci est appelé neutron retardé. L'émission des gammas retardés a lieu, pour sa part, après la désintégration β^- . Le déroulement de ce processus [Mey67] est présenté sur la figure 1.5.

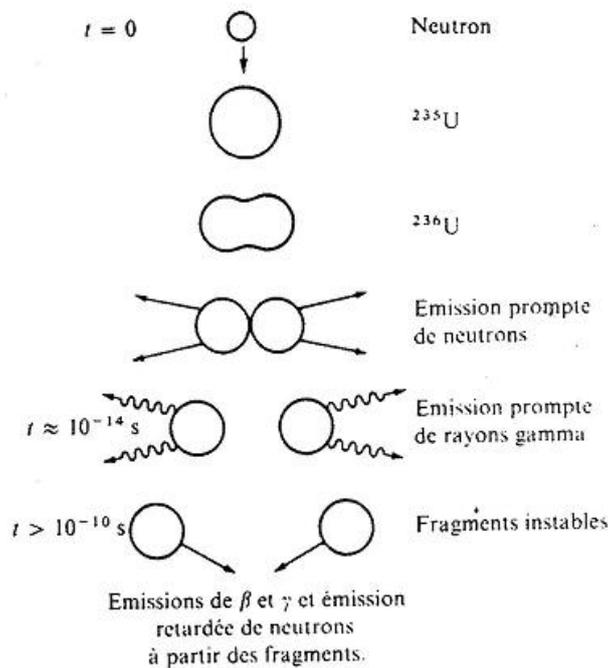


Figure 1.5 – Représentation graphique du processus de la fission [Mey67].

1.2.3 Distribution en masse des produits de fission

Lors de la fission le noyau se scinde en deux noyaux plus légers. Si les produits de fission ont des masses différentes, la fission est dite asymétrie. Quand les deux produits de fission sont de masses équivalentes, la fission est dite symétrique. La figure 1.6 montre l'allure générale de la répartition en masse des produits de fission induite par un neutron thermique sur les noyaux impairs ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu . Les pics de produits légers et lourds se trouvent respectivement aux environs de $A = 96$ et $A = 137$. Sur la figure 1.6 on observe aussi que le pic des fragments lourds est stable pour les noyaux considérés et que seul le pic des fragments légers se déplace. La figure 1.7 présente la répartition de masse des produits de fission pour ^{235}U pour des neutrons thermiques et de 14 MeV. Nous remarquons que l'asymétrie diminue lorsque l'énergie du neutron incident augmente.

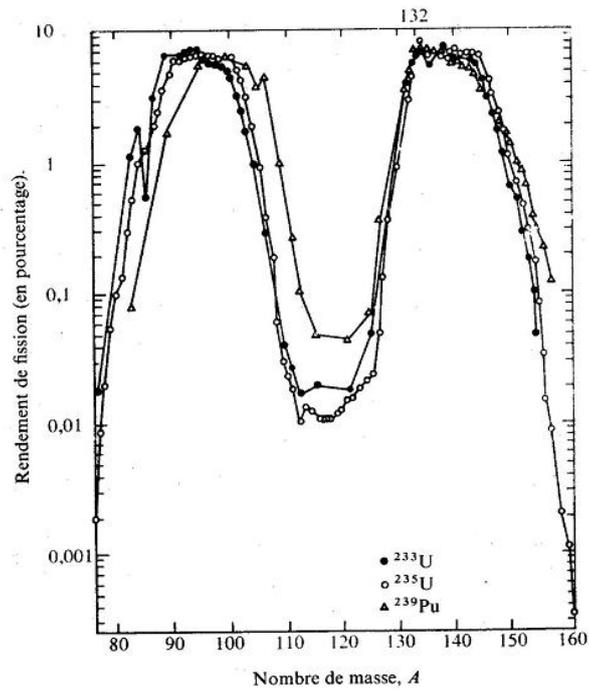


Figure 1.6 – Rendement en masse des fragments pour la fission induite par neutron thermique de ^{233}U , ^{235}U et du ^{239}Pu [Mey67].

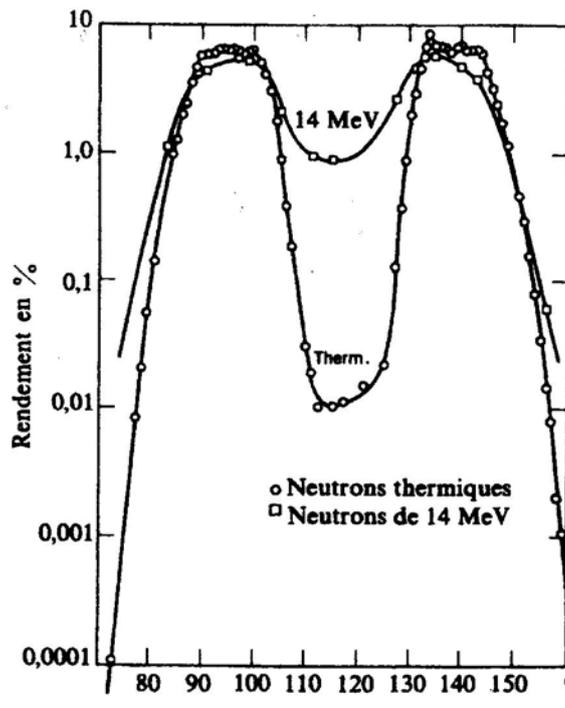


Figure 1.7 – Rendement en masse pour la fission de ^{235}U avec des neutrons thermiques et de 14 MeV [Mey67].

1.2.4 Neutrons prompts

Tel que mentionné à la section 1.1.3, des neutrons prompts sont émis par les fragments de fission ou par le noyau composé. Généralement le nombre moyen des neutrons prompts ν_p émis après la fission est supérieur à 2. Les neutrons prompts ont une énergie moyenne de 2 MeV. Le tableau 1.3 donne les valeurs de ν_p pour quelques actinides.

E_n (MeV)	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu
Thermique	2,42	---	2,87
4	2,87	2,86	3,45

Tableau 1.3 – Nombre moyen de neutrons prompts émis par fission pour quelques actinides [END07].

1.2.5 Neutrons retardés

Les neutrons retardés ont été observés pour la première fois en 1939 par Roberts et al. [Rob39] quelques mois après la découverte de la fission. Ils représentent environ 1% du nombre total de neutrons émis par fission. Le mécanisme de leur émission est représenté sur le schéma 1.8 ci-dessous.

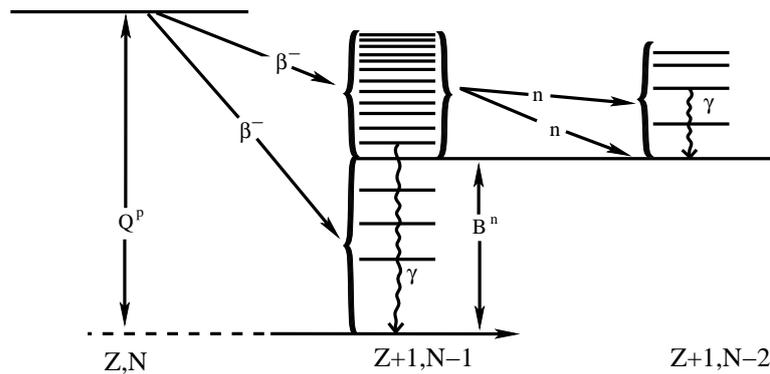


Figure 1.8 – Mécanisme d'émission de neutrons retardés.

Les produits de fission riches en neutrons sont instables. Ils subissent donc une ou plusieurs décroissances par émission β^- . Si l'énergie d'excitation des noyaux fils est supérieure à B_n (l'énergie de liaison d'un neutron) il peut émettre un neutron. Le neutron émis est appelé neutron retardé et le produit de fission concerné précurseur. Environ 300 précurseurs de neutrons retardés sont connus. La demi-vie de ces précurseurs varie de la dizaine de millisecondes à quelques dizaines de secondes. La liste des précurseurs répertoriés par England [Eng94] est présentée dans l'annexe A.

Un précurseur peut être produit immédiatement après la fission en tant que produit de fission c'est-à-dire après l'émission de neutrons et gammas prompts mais avant toute décroissance β^- . Il se peut aussi que ce précurseur soit formé à la suite d'une chaîne de décroissance β^- d'un produit de fission. Nous définissons donc un

taux de production cumulatif $Y_{Z,A}^C$ qui englobe les différents modes de formation du précurseur de numéro atomique Z et de nombre de masse A .

Dans le cas de l'irradiation d'un échantillon d'un atome d'un actinide donné avec un flux ϕ de neutrons monocinétiques, la concentration $C_{Z,A}$ d'un précurseur de constante de décroissance $\lambda_{Z,A}$ est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{dC_{Z,A}}{dt} = \phi \Sigma_f Y_{Z,A}^C - \lambda_{Z,A} C_{Z,A} \quad (1.2)$$

Le terme $\phi \Sigma_f Y_{Z,A}^C$ représente le nombre de ces précurseurs créés et le terme $-\lambda_{Z,A} C_{Z,A}$ définit le nombre qui a décré. La solution de (1.2) donne la concentration en fonction du temps de ce précurseur (ici la transmutation du précurseur est négligée).

$$C_{Z,A}(t) = \frac{\phi \Sigma_f Y_{Z,A}^C}{\lambda_{Z,A}} (1 - \exp(-\lambda_{Z,A} t)) \quad (1.3)$$

Après un temps d'irradiation 5 à 6 fois plus grand que la période de ce précurseur, sa concentration atteint son équilibre qui est :

$$C_{Z,A} = \frac{\phi \Sigma_f Y_{Z,A}^C}{\lambda_{Z,A}} \quad (1.4)$$

Le taux de production de ce précurseur à un instant t par unité de volume de l'échantillon après l'irradiation est égal à :

$$\tau = C_{Z,A} \lambda_{Z,A} \exp(-\lambda_{Z,A} t) \quad (1.5)$$

Alors le taux d'émission des neutrons retardés par unité de volume de l'échantillon et à un instant t est donné par la formule suivante :

$$\tau_{dn} = P_n(Z, A) C_{Z,A} \lambda_{Z,A} \exp(-\lambda_{Z,A} t) \quad (1.6)$$

où $P_n(Z, A)$ est la probabilité de décroissance (comprise entre 0 et 1) de ce précurseur par émission de neutrons retardés. Enfin, le spectre temporel d'émission de neutrons retardés par fission pour tous les précurseurs est donné par :

$$Y_{dn}(t) = \sum_{Z,A} P_n(Z, A) Y_{Z,A}^C \exp(-\lambda_{Z,A} t) \quad (1.7)$$

Une étude faite par Keepin [Kee57] a montré que ces précurseurs peuvent être répartis en six groupes selon leur temps de vie. Une telle représentation facilite l'ajustement numérique des spectres temporels de neutrons retardés. En effet, il a montré qu'une représentation de ces spectres par un nombre d'exponentielles plus petites ou plus grandes que six ne permet pas de bien ajuster les données. La représentation en six

exponentielles semble optimale. Depuis, les paramètres de neutrons retardés sont généralement donnés pour six groupes. Cette représentation est aussi adoptée en physique des réacteurs. La répartition des précurseurs en six groupes selon leur temps de vie est présentée dans le tableau 1.4.

Groupe	$T_{1/2}$ minimal (s)	$T_{1/2}$ maximal (s)
1	30	Infini
2	10	30
3	3	10
4	1	3
5	0,3	1
6	0	0,3

Tableau 1.4 – Temps de demi-vie des différents groupes.

Chaque groupe a une contribution absolue en neutrons A_i et une période T_i . Le spectre d'émission de neutrons retardés s'écrit ainsi :

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 A_i \exp(-\lambda_i t) \quad (1.8)$$

où

$$A_i = \sum_{prec \in \text{groupe } i} P_n(Z, A) Y_{Z,A}^C$$

$$\lambda_i = \frac{\sum_{prec \in \text{groupe } i} P_n(Z, A) Y_{Z,A}^C \lambda_{Z,A}}{A_i}$$

Plusieurs mesures de spectres d'émission de neutrons retardés ont été réalisées en fission neutronique [Kee57, Mak58, Wal81] vu leur rôle primordial dans le contrôle des réacteurs nucléaires. Les spectres d'émission de neutrons retardés pour différents actinides sont présentés sur la figure 1.9. Cette figure montre que chaque actinide est identifiable par son spectre d'émission de neutrons retardés.

Un autre paramètre important à définir est le rendement absolu de neutrons retardés ν_d :

$$\nu_d = \sum_{i=1}^6 A_i \quad (1.9)$$

La contribution relative de chaque groupe a_i peut être calculée à partir de la contribution absolue A_i et le rendement absolu de neutrons retardés ν_d :

$$a_i = \frac{A_i}{\nu_d} \quad (1.10)$$

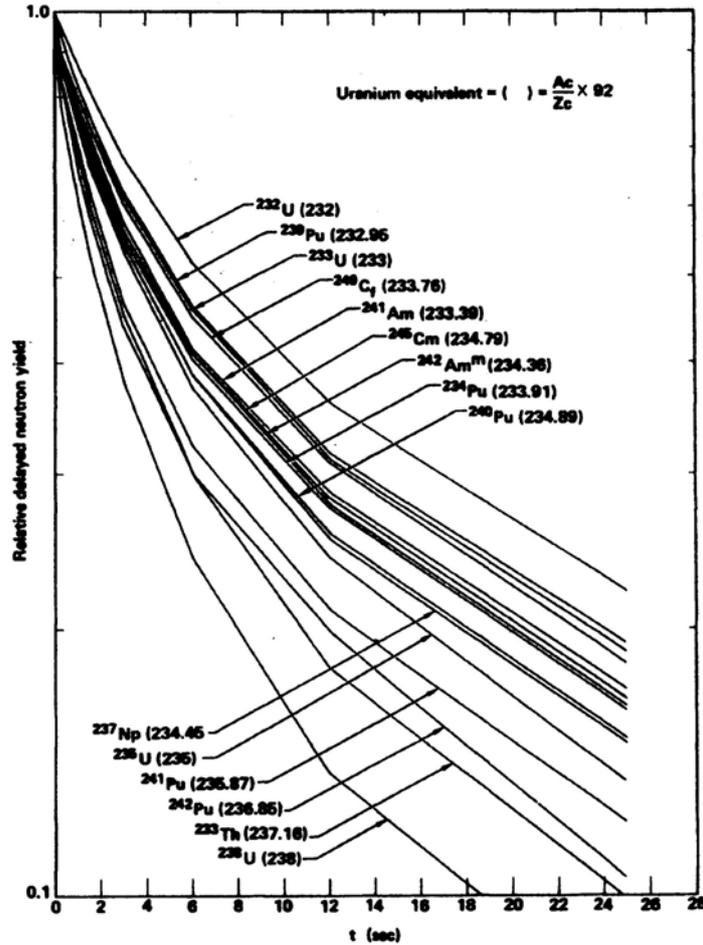


Figure 1.9 – Spectre d'émission de neutrons retardés pour différents actinides irradiés par un flux de neutrons de spectre rapide [Wal81].

La variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie du neutron incident est présentée pour l' ^{238}U sur la figure 1.10. Nous constatons que ce rendement diminue avec l'énergie du neutron incident à partir d'une valeur autour de 5 MeV qui est l'énergie seuil de la seconde chance de fission neutronique pour l' ^{238}U . Ce phénomène est généralement expliqué par le fait que le noyau qui fissionne lors de la fission de seconde chance possède un neutron en moins [Mas69, Bey74]. Les précurseurs riches en neutrons seraient produits avec une probabilité moins importante dans le cas cette fission de seconde chance ce qui se traduit par un rendement de neutrons retardés diminué.

Pour les énergies supérieures à 7 MeV, une unique mesure a été faite. Elle donne le rendement absolu de neutrons retardés à 15 MeV. Les évaluations ENDF/B-VI et JENDL-3.3 montrent une chute de la valeur de ν_d jusqu'à 9 MeV puis une stabilisation traduite par un palier entre 9 et 16,0 MeV.

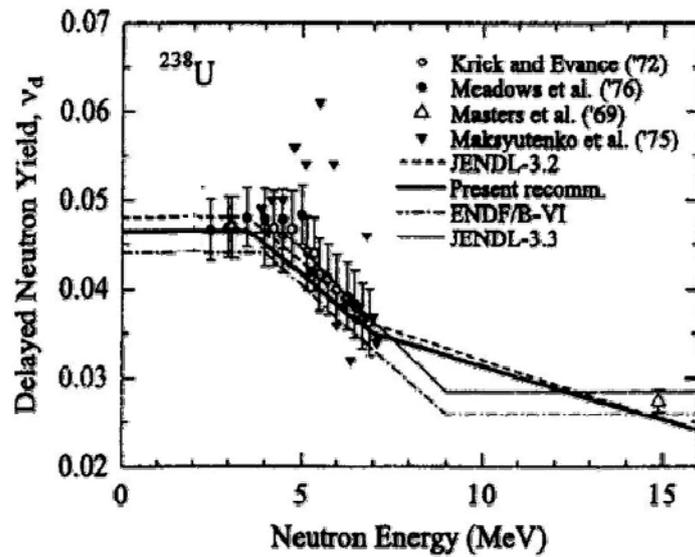


Figure 1.10 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés de l' ^{238}U suite à la fission induite par neutron en fonction de l'énergie de neutron incident [Yos02].

Chaque actinide a des paramètres et un rendement absolu de neutrons retardés qui lui sont propres. Keepin a remarqué que la proportion des neutrons retardés était corrélée au paramètre $(A-3Z)$ du noyau [Kee58]. Cette observation est valable aussi bien pour la fission induite par neutron ou par photon, que pour la fission spontanée (figure 1.11). Cela peut donc servir à estimer le nombre de neutrons retardés pour des noyaux pour lesquels aucune mesure n'existe.

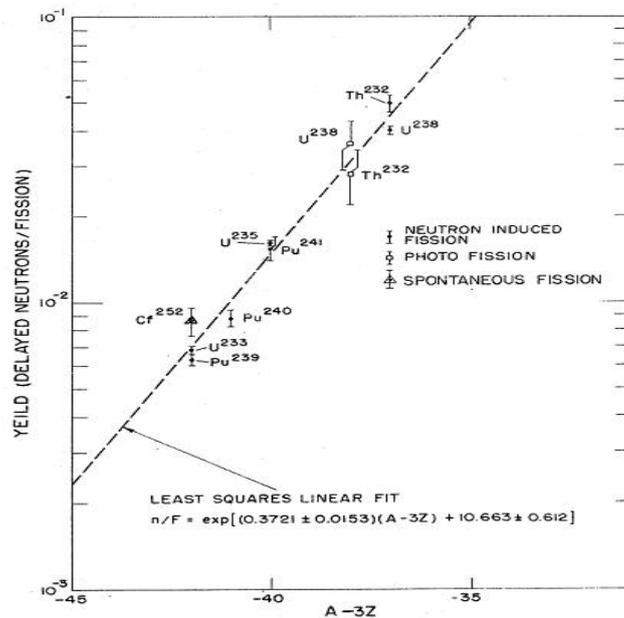


Figure 1.11 – Rendement absolu de neutrons retardés en fonction du paramètre $A-3Z$ où A et Z sont le nombre de masse et le numéro atomique du noyau composé [Kee58].

La dernière observable concernant les neutrons retardés dont nous parlerons ici est l'énergie. Les spectres en énergie de neutrons retardés sont mal connus. Il est difficile de mesurer l'énergie de ces neutrons et encore plus difficile de corréler l'énergie à la constante de décroissance. De rares mesures existent dans la littérature [Bat56, Tan86]. La figure 1.12 montre les spectres en énergie de neutrons retardés issus de la fission induite par neutron thermique pour ^{235}U pour différents groupes. On observe que la majeure partie des neutrons est comprise entre 0,1 et 1,0 MeV.

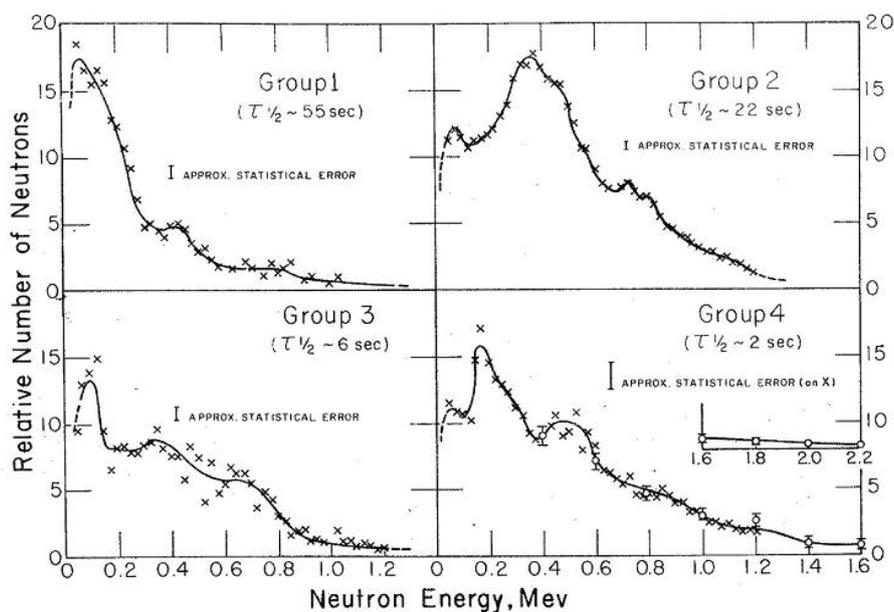


Figure 1.12 – Spectres en énergie des quatre premiers groupes de neutrons retardés issus de la fission de ^{235}U induite par neutrons thermiques [Kee58].

1.3 Réactions photonucléaires et Photofission

Lors de leur étude de la photodésintégration du deutérium, Chadwick et Goldhaber ont observé pour la première fois l'effet photonucléaire [Cha34]. Ces réactions photonucléaires concernant l'interaction d'une onde électromagnétique avec le noyau se produisent en deux étapes. La première est l'absorption du photon par le noyau. Elle est appelée photoabsorption. Elle conduit le noyau à un état excité dont la durée de vie est de l'ordre de 10^{-17} s. La deuxième étape est la désexcitation du noyau composé par émission photonique, neutronique (réactions (γ, n) , $(\gamma, 2n)$, ...), de particules chargées $((\gamma, p)$, (γ, np) , ...) ou par fission (γ, f) .

1.3.1 Photoabsorption

La figure 1.13 montre l'allure générale de la section efficace de photoabsorption quel que soit le noyau.

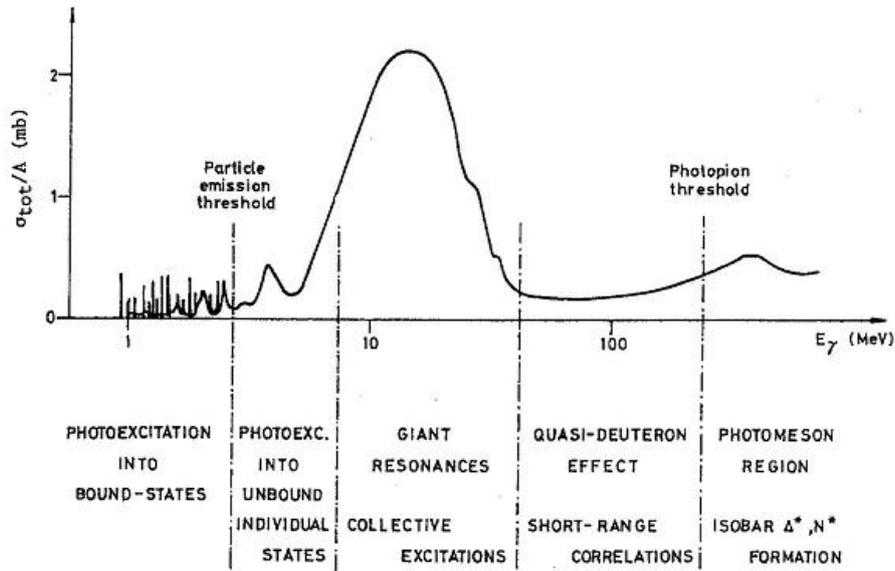


Figure 1.13 – Variation de la section efficace d'absorption d'un photon par un noyau exprimée par nucléon avec l'énergie du photon (MeV) [Fin90].

Elle présente pour tous les noyaux une résonance large pour des photons entre 5 et 30 MeV appelée résonance dipolaire géante GDR (pour Giant Dipolar Resonance). La section efficace de la GDR pour les noyaux sphériques (lourds) est représentée par une lorentzienne. Pour les noyaux déformés, sous forme d'ellipsoïde, il existe deux directions d'oscillations suivant le grand axe ou les deux petits axes de cet ellipsoïde avec deux fréquences différentes. Il s'ensuit que pour les noyaux déformés tels que les actinides, la GDR est représentée par deux lorentziennes et sa section efficace σ_{GDR} est donc définie par l'équation suivante :

$$\sigma_{GDR} = \sigma_1 \frac{E^2 \Gamma_1^2}{(E_1^2 - E^2) + E^2 \Gamma_1^2} + \sigma_2 \frac{E^2 \Gamma_2^2}{(E_2^2 - E^2) + E^2 \Gamma_2^2} \quad (1.11)$$

E_1, E_2 énergie correspondante au pic de la première et de la seconde lorentzienne respectivement

Γ_1, Γ_2 largeur du pic

σ_1, σ_2 hauteur du pic

L'intégrale de la section efficace de la résonance dipolaire géante est donnée par la règle de somme :

$$\int_0^{\infty} \sigma dE \approx 60 \left(\frac{N \cdot Z}{A} \right) (\text{mbarn} \cdot \text{MeV}) \quad (1.12)$$

La probabilité d'émission de particules chargées ((γ, p) , (γ, np) , ...) est très faible dans le cas des actinides pour des énergies inférieures à 20 MeV (domaine d'énergie de

notre étude) à cause de la barrière coulombienne. De ce fait, les seuls processus qui contribuent à la photoabsorption sont (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et (γ, f) . La section efficace totale de photoabsorption devient donc :

$$\sigma(\gamma, tot) = \sigma(\gamma, n) + \sigma(\gamma, 2n) + \sigma(\gamma, f) \quad (1.13)$$

Les seuils de ces trois réactions sont présentés pour quelques actinides dans le tableau 1.5.

Nucléide	(γ, n)	$(\gamma, 2n)$	(γ, f)
^{232}Th	6,43	11,56	6,0
^{235}U	5,31	12,15	5,8
^{238}U	6,14	11,27	5,8
^{239}Pu	5,66	12,65	5,8

Tableau 1.5 – Energie seuil en MeV des trois réactions photonucléaires (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ et (γ, f) [END07].

La figure 1.14 représente la section efficace totale d'absorption en fonction de l'énergie du photon incident, nous distinguons aussi celles des trois réactions photonucléaires.

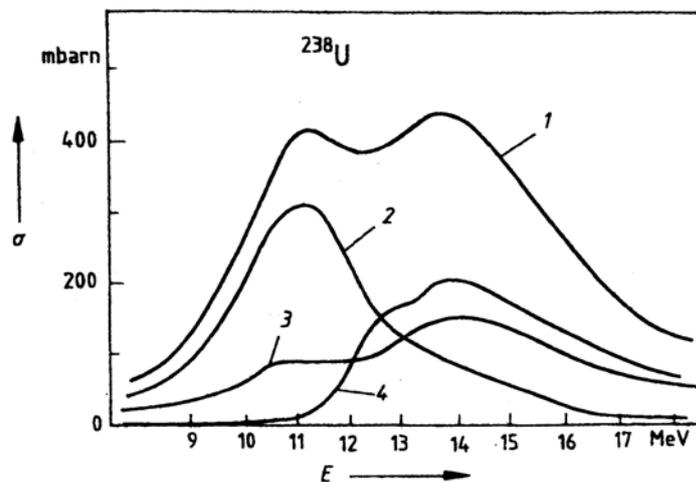


Figure 1.14 – Section efficace totale d'absorption pour ^{238}U (1). Celle de chacune des trois réactions photonucléaires est aussi présentée : 2 - (γ, n) , 3 - (γ, f) , 4 - $(\gamma, 2n)$ [Huy99].

1.3.2 Photofission

Les caractéristiques générales de la fission induite par neutron présentées précédemment restent vraies pour la photofission (scission en deux fragments, émission de particules promptes et retardées, ...). Cependant, la valeur des différentes observables changent ce qui est le cas par exemple pour la section efficace, la multiplicité de neutrons prompts et celle de neutrons retardés.

1.3.2.1. Section efficace de photofission

Les sections efficaces de photofission des noyaux des différents types : ^{232}Th et ^{238}U (pair – pair), ^{233}U et ^{239}Pu (pair – impair), ^{237}Np et ^{241}Am (impair - pair) sont données sur la figure 1.15. Nous observons que pour tous ces noyaux lourds le seuil de la photofission est situé vers 6 MeV, contrairement à la fission neutronique où le seuil de la fission change selon le noyau (cf. section 1.2.1). Cet aspect rend cette réaction intéressante. La section efficace augmente rapidement et atteint son maximum vers 15 MeV pour ensuite décroître comme on peut le voir sur la figure 1.15.

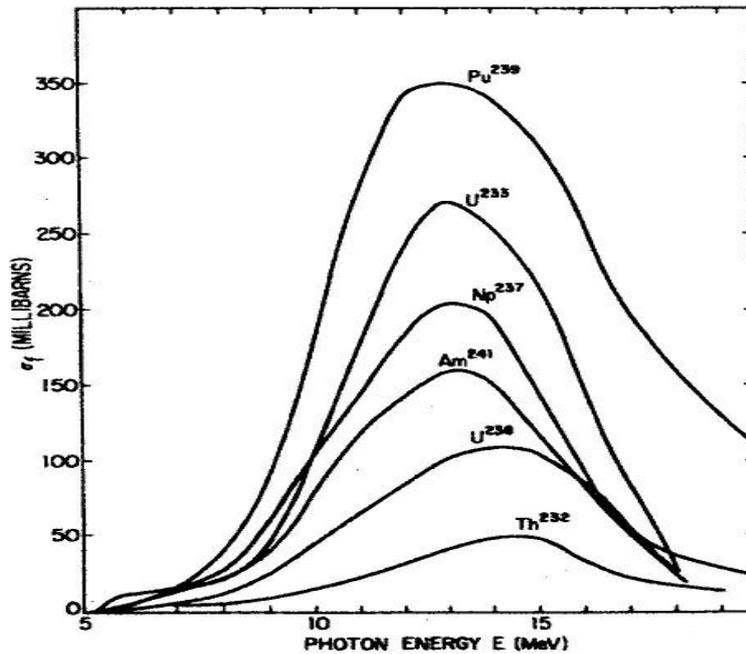


Figure 1.15 – Section efficace de photofission du ^{232}Th , de ^{238}U , de ^{241}Am , du ^{237}Np , de ^{235}U et du ^{239}Pu en fonction de l'énergie de photons [Huy99].

La voie de fission de seconde chance est aussi possible pour la photofission. Le seuil de cette réaction pour des faisceaux de photons monoénergétiques est de 11,3 MeV pour ^{235}U , de 12,3 MeV pour ^{238}U et de 12,6 MeV pour le ^{232}Th [Cal80b]. La figure 1.16 représente le rapport de la section efficace de photofission de première chance sur la somme de la section efficace de première et de seconde chance pour ^{238}U .

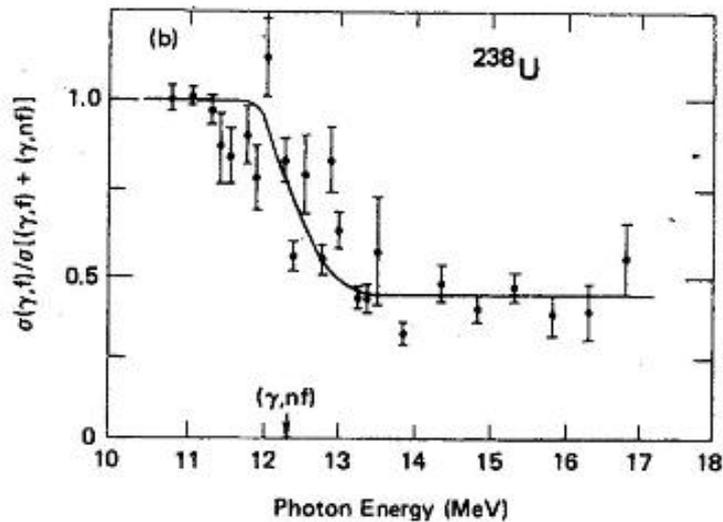


Figure 1.16 – Rapport de la section efficace de la première chance de fission sur la section efficace totale de photofission pour l'²³⁸U [Cal80a].

On observe que ce rapport décroît quand la fission de seconde chance commence à contribuer. En outre, quelques MeV après le seuil de cette fission, les sections efficaces de la première et de la seconde chance de fission deviennent comparables. La courbe solide a été tracée seulement pour montrer l'allure de la variation du rapport des sections efficaces présenté en fonction de l'énergie d'un faisceau monocinétique de photons.

1.3.2.2. Distribution en masse des produits de photofission

La distribution en masse des produits de photofission de l'²³⁵U pour plusieurs énergies est représentée sur la figure 1.17. Il s'agit ici de spectres obtenus avec des photons provenant du rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) des électrons sur des cibles lourdes. Nous retrouvons des résultats très proches de la fission neutronique. Nous constatons que les masses moyennes des pics des produits légers et lourds sont pratiquement indépendantes de l'énergie. Néanmoins en comparant les valeurs de l'²³⁵U et de l'²³⁸U dans le tableau 1.6, nous remarquons qu'il y a un déplacement du pic des produits légers vers les masses les plus lourdes lorsque la masse du noyau augmente tandis que le pic des fragments lourds reste quasiment constant.

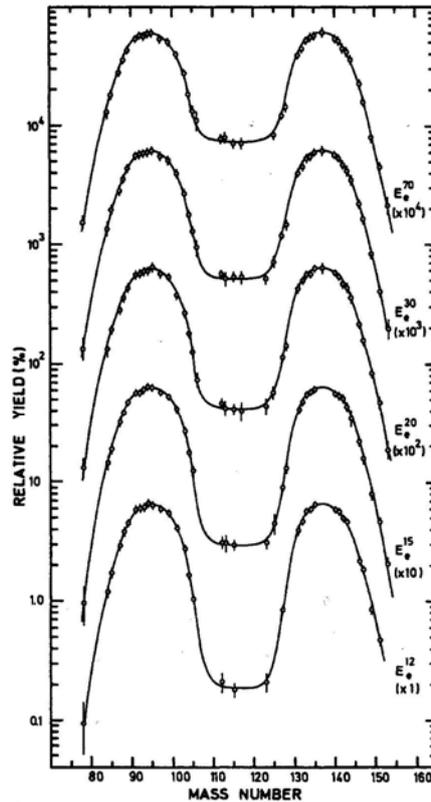


Figure 1.17 – Variation du rendement de photofission de l' ^{235}U avec des énergies électrons de 12, 15, 20, 30 et 70 MeV [Jac80].

Noyau	Energie du faisceau d'électrons (MeV)	Pic des produits légers	Pic des produits lourds
^{235}U	12	94,85	137,28
	15	94,7	137,24
	20	94,8	137,09
	30	94,68	137,15
	70	94,77	137,14
^{238}U	12	97,25	137,87
	15	97,01	137,8
	20	96,99	137,61
	30	96,8	137,64
	70	96,89	137,55

Tableau 1.6 – Distribution des masses dans la photofission de l' ^{235}U [Jac80] et de l' ^{238}U [Jac79].

1.3.2.3. Neutrons de photofission

La multiplicité des neutrons est corrélée à l'énergie du photon incident, ce qui a été montrée lors des études lancées dans les années 70. Elle est définie par l'équation suivante :

$$\overline{\nu}_p = \overline{\nu}_0 + \frac{d\overline{\nu}_p}{dE} \langle E_\gamma \rangle \quad (1.14)$$

La figure 1.18 présente les mesures de $\overline{\nu}_p$ en fonction de l'énergie du photon pour l' ^{233}U , l' ^{234}U , le ^{237}Np et le ^{239}Pu faites par B.L. Berman et al. [Ber86] et l'ajustement numérique de l'équation 1.14 sur ces mesures. Le résultat de l'ajustement pour les quatre actinides est donné dans le tableau 1.7.

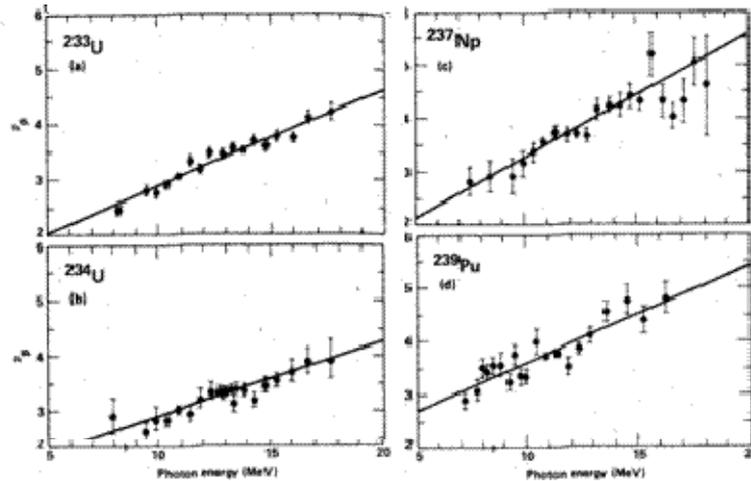


Figure 1.18 – Nombre de neutrons prompts mesurés issus de la photofission de l' ^{233}U , l' ^{234}U , le ^{237}Np et le ^{239}Pu en fonction de l'énergie des photons (points). L'ajustement numérique de ces mesures (droite) est aussi présenté [Ber86].

Noyau	ν_p
^{233}U	$1,194 + 0,1693E_\gamma$
^{234}U	$1,582 + 0,1326E_\gamma$
^{237}Np	$0,977 + 0,2266E_\gamma$
^{239}Pu	$1,76 + 0,1803E_\gamma$

Tableau 1.7 – Relation entre le nombre de neutrons prompts et l'énergie du photon [Ber86].

Les neutrons retardés de photofission ont été peu étudiés jusqu'à maintenant. Certaines mesures de rendements absolus [Mos62, Nik66, Cal75] et de spectres d'émission [Nik66, Kul70] de neutrons retardés ont été effectuées dans les années 60 et 70. Elles seront présentées et discutées dans le chapitre suivant.

Synthèse

Nous avons présenté dans ce chapitre les éléments de physique relatifs au phénomène de la fission. En plus du mécanisme lui-même, les produits de fission et les particules émises ont été présentées dans le cas des fissions neutronique et photonique. Cette dernière nous intéresse particulièrement car plusieurs nouvelles applications sont basées sur ce mécanisme.

Chapitre 2 Photofission pour les applications

Plusieurs applications basées sur les réactions photonucléaires [Fin90] et plus particulièrement sur la photofission ont vu le jour ces dernières années. Les applications utilisant la photofission vont du contrôle non destructif des colis des déchets nucléaires [Jal01, Inp06] à la détection des matériaux nucléaires [Gma06, Cha03, Jon00] en passant par l'identification des isotopes d'un mélange de matériaux nucléaires [Kin05]. Pour ces applications, des photons d'énergie supérieure à 6 MeV (énergie seuil de la photofission des actinides) sont nécessaires. De plus, un flux de photons important est également nécessaire pour que le temps de mesure ne soit pas un obstacle pour ces applications. C'est pour cette raison que le rayonnement de Bremsstrahlung est privilégié. Les observables explorées pour mener à bien ces applications sont les neutrons prompts, les neutrons retardés et les gammas retardés. Dans ce chapitre, nous allons présenter le phénomène de production de rayonnement de freinage (appelé rayonnement Bremsstrahlung) avec ses distributions en énergie et angulaire. Les trois observables étudiées pour les applications seront ensuite présentées. L'exemple du projet INPHO (INterrogation par PHOtofission), projet auquel notre groupe participe, servira de trame à cette partie. Une revue des données disponibles dans la littérature sera ensuite réalisée. La procédure expérimentale utilisée pour ce travail de thèse ainsi qu'une courte description de la modélisation de l'ensemble du processus seront ensuite présentées.

2.1 Sonde : Rayonnement de Bremsstrahlung

L'électromagnétisme classique montre que lorsqu'une particule de masse m et de charge z passe dans le voisinage du champ électromagnétique d'un noyau de charge Z , elle est déviée de sa trajectoire initiale en même temps qu'elle est freinée (figure 2.1). L'énergie cédée par cette particule se traduit par l'émission d'un ou plusieurs photons. Le rayonnement électromagnétique produit présente un spectre continu. C'est le spectre de freinage ou spectre de Bremsstrahlung. L'énergie emportée par ce rayonnement est définie par la perte d'énergie ΔE_{br} comme suit :

$$\Delta E_{br} \approx \frac{z^2 Z^2 e^4}{m^2 r^4} \quad (2.1)$$

où e est la charge élémentaire et r la distance entre le noyau et la particule.

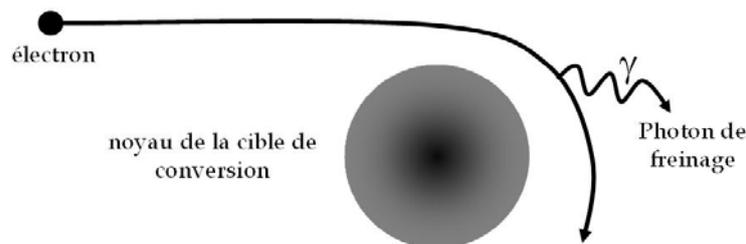


Figure 2.1 – Schéma de production de rayonnement de freinage.

La relation (2.1) montre qu'un bon rendement de Bremsstrahlung est obtenu pour les particules incidentes les plus légères possibles et un noyau cible le plus lourd possible (Z élevé). En général, les cibles utilisées pour produire des rayonnements de Bremsstrahlung sont des cibles de tantale (Ta), de tungstène (W) et d'or (Au) et les particules incidentes sont des électrons.

Le spectre de Bremsstrahlung est calculé avec le code MCNPX [Hen05] qui est un code de transport qui sera décrit à la section 2.5.1. La figure 2.2 présente le spectre obtenu avec MCNPX pour un faisceau d'électrons de 0,1 cm de diamètre et pour des énergies de 10, 15 et 20 MeV, les électrons étant freinés par une cible de Tantale de 2,6 cm de diamètre et 1,2 mm d'épaisseur. Nous observons que le spectre en énergie des photons de freinage est continu et décroissant jusqu'à une valeur maximale qui est celle des électrons incidents.

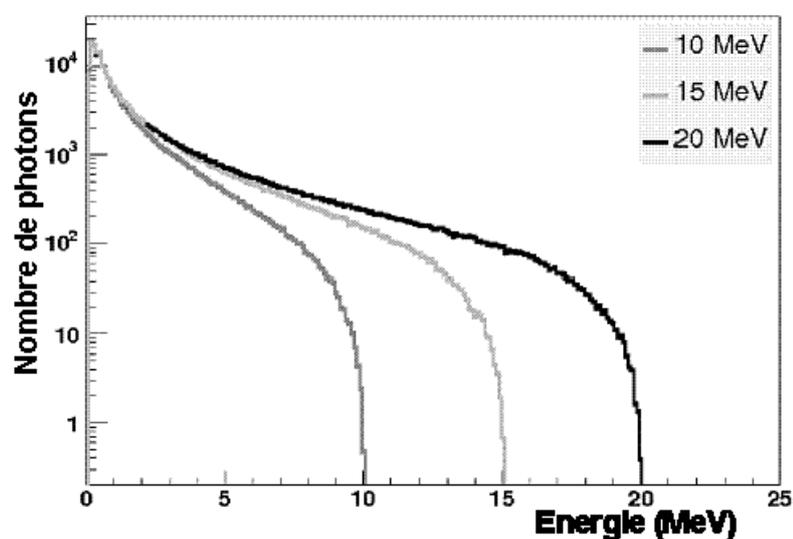


Figure 2.2 – Spectres en énergie des faisceaux de Bremsstrahlung simulés avec MCNPX pour des faisceaux d'électrons de 10, 15 et 20 MeV sur une cible de Ta.

Un autre aspect du rayonnement de Bremsstrahlung intéressant à aborder est la distribution angulaire des photons. La distribution angulaire calculée avec MCNPX pour des énergies de 10, 15 et 20 MeV est montré sur la figure 2.3. Le spectre est d'autant plus piqué vers l'avant que l'énergie des électrons augmente. Pour des énergies d'électrons plus petites, le faisceau de photons est quasi-isotrope. Par ailleurs, le creux observé à 90° est lié à la présence de la cible de conversion qui absorbe une partie des gammas autour de cet angle.

Ces deux exemples réalisés avec MCNPX nous permettent d'illustrer les dépendances en énergie et angle du rayonnement Bremsstrahlung. Nous utiliserons ultérieurement la distribution en énergie lors de la modélisation.

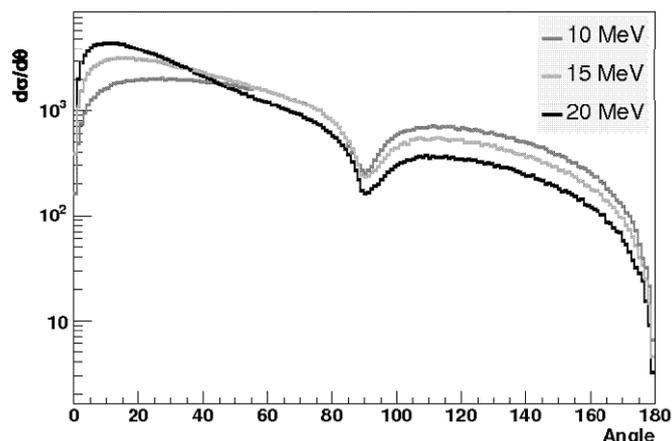


Figure 2.3 – Distribution angulaire du rayonnement de Bremsstrahlung calculée avec MCNPX pour des faisceaux d'électrons de 10, 15 et 20 MeV sur une cible de Ta.

2.2 Observables étudiées

L'objectif du projet INPHO [Inp06, Gma06] est d'abaisser la limite de détection des transuraniens qui sont contenus dans les colis de déchets anciens par une méthode non destructive basée sur la photofission. L'objectif est de détecter 0,1 g de Pu/ tonne, soit un facteur 100 par rapport à la limite actuelle. Trois observables ont été envisagées pour ce projet : la mesure des neutrons prompts, des neutrons retardés et des gammas retardés produits par ces transuraniens suite à l'irradiation de ces colis par des faisceaux de Bremsstrahlung. Ces trois observables seront décrites brièvement dans les paragraphes suivants.

Neutrons prompts

Le rendement des neutrons prompts lors de la fission des actinides est de l'ordre de 3 neutrons par fission. Ce rendement assez élevé nous a incités à les utiliser comme signature de la présence d'actinide dans un fût de déchet. Lors de ma première année de thèse, j'ai participé au travail de simulation afin de déterminer la faisabilité de cette méthode. Nos travaux ont finalement montré que cette méthode ne peut pas être utilisée pour la caractérisation des déchets nucléaires car le rapport signal/bruit n'est pas satisfaisant. Par ailleurs, une expérience réalisée au CEA avec un colis de déchets est venue confirmer les simulations. En effet, une masse d'1 kg d'uranium-238 placée dans un colis des déchets n'a pas pu être détectée. Le signal des neutrons prompts était noyé par le bruit de fond provenant des réactions photonucléaires (γ, n) sur les différents éléments du colis. Il faut ajouter qu'il est difficile de détecter les neutrons en présence d'un flash gamma. Le travail de simulation est présenté à l'annexe B.

Gammas retardés

Une autre observable susceptible de signer la présence d'actinides et de les identifier est étudiée par notre groupe. Il s'agit des gammas retardés issus de la photofission pour lesquels aucune mesure n'a été publiée concernant les rendements ou les caractéristiques des différents groupes. Ces gammas retardés sont beaucoup plus abondants que les neutrons retardés et présentent aussi l'avantage d'un

rendement peu dépendant du contenu en hydrogène. Dans le cadre du projet INPHO, des mesures ont été menées sur le ^{232}Th , l' ^{235}U , le ^{237}Np et l' ^{238}U . Il a été montré qu'afin de bien reproduire les spectres temporels expérimentaux, cinq groupes sont nécessaires. Pour plus de détails sur ce travail, le lecteur pourra consulter les documents [Boy06, Dig07] cités dans la bibliographie.

Neutrons retardés

La détection de neutrons retardés issus de la photofission des actinides s'avère une méthode très intéressante pour caractériser les colis des déchets nucléaires. En effet, la détection de neutrons quelques dizaines de millisecondes après une irradiation du colis signe la présence de matière fissile. D'autre part, l'analyse du spectre mesuré permet l'identification de l'actinide, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.2.5, chaque actinide étant caractérisé par un spectre d'émission de neutrons retardés précis. Malheureusement, les mesures disponibles sur les neutrons retardés issus de la photofission des actinides sont insuffisantes pour réaliser une telle application comme il sera démontré dans la section suivante où les mesures existantes seront présentées. Pour cette raison, une campagne expérimentale a été lancée au CEA pour effectuer des mesures de spectres temporels de neutrons retardés afin d'extraire les rendements absolus et les paramètres des six groupes pour un ensemble d'actinides. Les premières mesures réalisées dans le cadre de cette campagne étaient dédiées à l' ^{238}U et au ^{232}Th . Ces résultats seront aussi présentés lors de la revue des données existantes. L' ^{235}U et le ^{237}Np ont ensuite été étudiés. Ces dernières expériences effectuées pendant la deuxième et la troisième année de ma thèse ainsi que leurs analyses constituent le sujet de ce mémoire.

2.3 Revue des données existantes sur les neutrons retardés de la photofission

Depuis la mise en évidence des neutrons retardés issus de la fission neutronique, les spectres temporels et les rendements absolus ont fait l'objet de plusieurs mesures. Ces dernières sont motivées par le rôle primordial des neutrons retardés dans le contrôle des réacteurs nucléaires. En revanche, les mesures concernant les neutrons retardés issus de la photofission d'actinides sont rares. Dans cette section, nous allons d'abord présenter et discuter les mesures existantes de rendements absolus (paragraphe 2.3.1). Les paramètres des six groupes de neutrons retardés seront discutés au paragraphe 2.3.2. Les données datent toutes des années 60-70. Concernant le rendement absolu, deux méthodes ont été utilisées pour le mesurer. Nous détaillerons ces deux méthodes à la section 2.4. Pour l'instant, précisons seulement que le rendement peut être déterminé soit à partir de l'intégrale des neutrons retardés émis après un temps d'irradiation inférieur au temps de demi-vie des précurseurs ou bien à partir de la valeur à $t=0$ du spectre temporel obtenu après un temps d'irradiation supérieur au temps de demi-vie des précurseurs.

2.3.1 Mesures de rendements de neutrons retardés

La plupart des mesures de rendements absolus de neutrons retardés sont effectuées avec des faisceaux de Bremsstrahlung. A notre connaissance, les premières

mesures ont été celles de G. Moscati et al. [Mos62] en 1962. L' ^{238}U et le ^{232}Th ont été étudiées pour des énergies électron de 12 et 20 MeV. Le rendement absolu est extrait en utilisant la méthode de l'irradiation longue. Quelques années plus tard, O. P. Nikotin et al. [Nik66] ont réalisé des mesures de rendements absolus sur l' ^{238}U , le ^{232}Th , l' ^{235}U et le ^{239}Pu avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 15 MeV. Ils ont utilisé la même méthode que celle utilisée par G. Moscati et al.. Enfin, les dernières mesures dont nous connaissons l'existence sont celles de J. T. Caldwell et al. [Cal75]. Elles datent de 1975. Ces mesures ont porté sur huit isotopes : ^{232}Th , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{237}Np et ^{239}Pu . Des énergies de Bremsstrahlung comprises entre 8 et 13 MeV ont été utilisées et la méthode de l'irradiation courte a été adoptée. Le tableau 2.1 regroupe les résultats de toutes ces mesures de rendements absolus menées pour différentes énergies et par différents auteurs. Elles sont aussi présentées sur les figures 2.4 à 2.8 pour le ^{232}Th , l' ^{235}U , le ^{237}Np , l' ^{238}U et le ^{239}Pu .

Mesures de rendements absolus ν_d (n/100fiss)	Energie maximale du faisceau d'électrons (MeV)	^{232}Th	^{235}U	^{237}Np	^{238}U	^{239}Pu
Moscati [Mos62]	12	2,7±0,8	-	-	3,6±0,8	-
	20	3,0±1,2	-	-	3,6±1	-
Nikotin [Nik66]	15	3,8±0,6	0,96±0,13	-	3,1±0,4	0,36±0,06
Caldwell [Cal75]	8	3,1±0,28	0,90±0,08	-	3,06±0,24	-
	10	3,06±0,31	0,88±0,08	0,38±0,04	2,76±0,17	-
	10,2	2,67±0,21	1,13±0,07	-	3,06±0,14	0,37±0,04
	12	2,59±0,31	1,12±0,08	0,50±0,04	2,75±0,19	0,37±0,04
	13	-	-	0,54±0,04	-	-

Tableau 2.1 – Rendements absolus de neutrons retardés issus de la photofission du ^{232}Th , de l' ^{235}U , de l' ^{238}U , du ^{237}Np , et du ^{239}Pu .

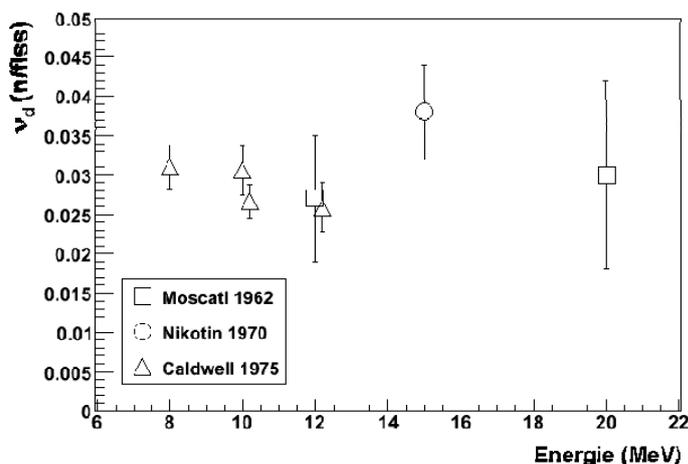


Figure 2.4 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission du ^{232}Th . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.

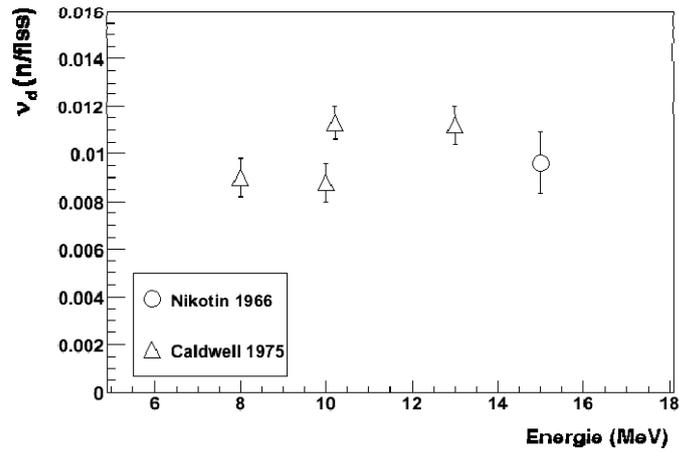


Figure 2.5 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission de l' ^{235}U . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.

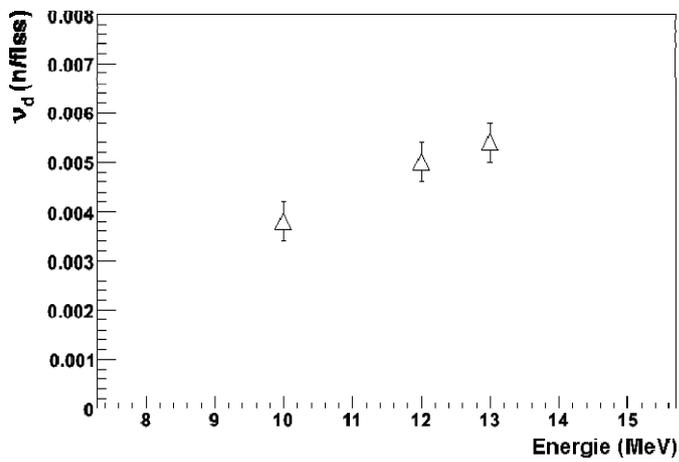


Figure 2.6 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np mesuré par Caldwell.

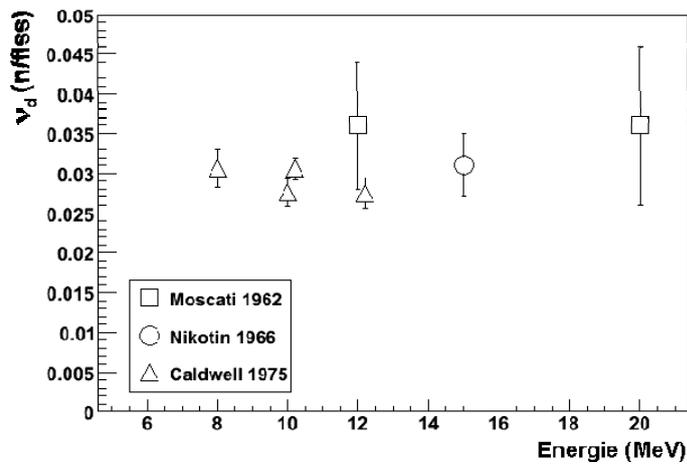


Figure 2.7 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission de l' ^{238}U . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.

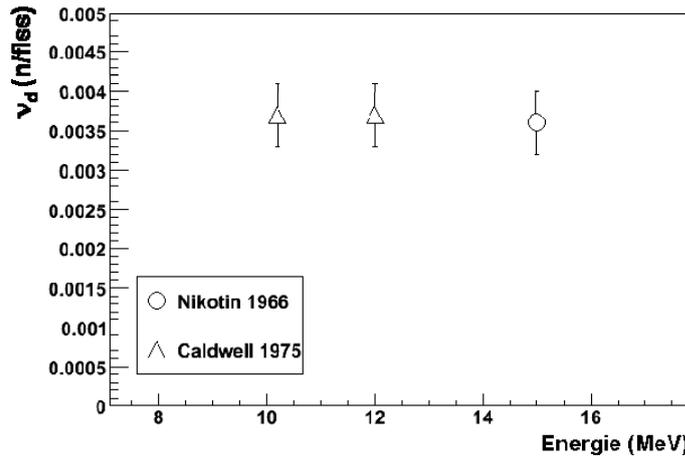


Figure 2.8 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission du ^{239}Pu . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.

Pour la majorité des actinides, nous ne constatons aucune dépendance du rendement absolu de neutrons retardés avec l'énergie maximum du rayonnement Bremsstrahlung. Rappelons que pour la fission induite par neutron, une diminution est observée près de l'énergie correspondant à l'ouverture de la voie de seconde chance. Pour la photofission, le seuil de la voie de seconde chance pour ces actinides pour des photons monoénergétiques est donné dans le tableau 2.2.

Actinide	^{232}Th	^{235}U	^{237}Np	^{238}U	^{239}Pu
$E_s(\gamma, \text{nf})$ (MeV)	12,6	11,3	13,5	12,3	11,46

Tableau 2.2 – Seuils de la photofission de seconde chance pour les actinides étudiés. [Cal80a]

Nous remarquons que très peu de mesures ont été réalisées au-dessus de ces seuils. Cependant, même pour le ^{232}Th et l' ^{238}U pour lesquels un large domaine en énergie a été couvert, aucune diminution n'est observée (voir figures 2.4 et 2.7).

En ce qui concerne la cohérence des mesures, il est difficile de conclure. Nous observons que plusieurs mesures présentent de grandes incertitudes. Nous remarquons aussi que peu de mesures ont été faites par deux groupes différents à la même énergie. Seules deux mesures sur le ^{232}Th et l' ^{238}U à 12 MeV peuvent être comparées. Celles sur le ^{232}Th sont cohérentes par contre celles sur l' ^{238}U présentent un grand écart. Les données de Caldwell pour l' ^{235}U ne sont pas cohérentes entre elles non plus. Enfin, nous concluons que les mesures sont très rares, non cohérentes et présentent de grandes barres d'erreurs. C'est ce constat qui a motivé la mise en œuvre de notre campagne expérimentale pendant laquelle nous avons mesuré les rendements absolus de neutrons retardés pour l' ^{238}U et le ^{232}Th pour des énergies électron de 12, 15, 16,5 et 18 MeV en adoptant la méthode basée sur l'utilisation d'une irradiation courte. Ces résultats (symboles pleins), antérieurs à ce travail de thèse [Gia05, Van06, Dor05, Dor07a], sont comparés à ceux trouvés dans la littérature (symboles vides) sur la figure 2.9 pour le ^{232}Th et sur la figure 2.10 pour l' ^{238}U .

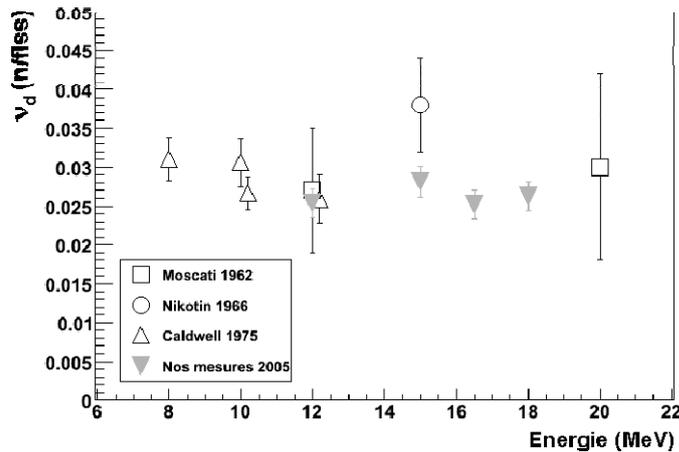


Figure 2.9 – Rendements absolus de neutrons retardés du ^{232}Th déterminés pendant notre expérience de 2005 comparés aux mesures de Moscati, Nikotin et Caldwell.

Nous remarquons pour le ^{232}Th (figure 2.9) que notre mesure à 12 MeV est cohérente avec celles de Caldwell et Moscati. Notre résultat à 15 MeV est inférieur à celui de Nikotin. Cet écart pourrait être expliqué en partie par le fait que Nikotin n'a pas corrigé ses données pour tenir compte des neutrons retardés provenant de la fission du ^{232}Th induite par neutrons. Nous avons déterminé pour la première fois le rendement absolu de neutrons retardés à 16,5 et à 18 MeV. Nos mesures de rendements absolus de neutrons retardés pour le ^{232}Th ne révèlent pas une variation significative en fonction de l'énergie électronique.

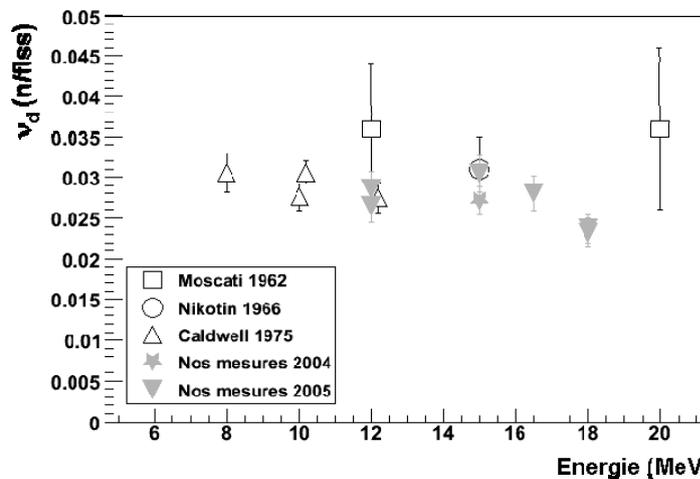


Figure 2.10 – Rendements absolus de neutrons retardés de l' ^{238}U déterminés lors nos expériences de 2004 et de 2005 comparés aux mesures de Moscati, Nikotin et Caldwell.

La figure 2.10 représente le rendement absolu de neutrons retardés mesuré pour l' ^{238}U en fonction de l'énergie maximale du faisceau de Bremsstrahlung utilisée. Cette fois-ci, notre mesure à 12 MeV est plus éloignée de celle de Moscati mais reste en accord à l'intérieur des incertitudes. Il faut noter que l'incertitude sur le résultat de Moscati est particulièrement grande. Notre mesure et celle de Caldwell sont aussi en accord. Notre valeur de v_d à 15 MeV obtenue en 2005 est plus proche de la valeur de Nikotin que celle obtenue en 2004. En 2005, un dysfonctionnement du boîtier servant à sommer les signaux est survenu ce qui peut expliquer l'écart entre la mesure de 2004 et de 2005. Nous avons aussi mesuré pour la première fois le rendement absolu de

neutrons retardés à 16,5 et à 18 MeV. Cependant les problèmes techniques rencontrés lors de cette expérience nous incitent à rester prudent.

2.3.2 Mesures des spectres temporels de neutrons retardés

En ce qui concerne les spectres d'émission de neutrons retardés en photofission, les seules mesures disponibles dans la littérature sont celles de O. P. Nikotin et al. [Nik66] et L. A. Kull et al. [Kul70]. Le premier a fait des mesures sur le ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U et le ^{239}Pu pour une énergie électron de 15 MeV. Il a utilisé une irradiation longue et en a extrait les paramètres des six groupes de neutrons retardés. Les mesures de Kull ont été faites pour ^{235}U et ^{238}U pour une énergie maximale de Bremsstrahlung de 8 et 10 MeV. Il a fixé les périodes des six groupes aux valeurs trouvées par Nikotin et al. et a donc extrait seulement les contributions relatives. Pour sa méthode de mesures, il a choisi d'effectuer trois types d'irradiations. Sa méthode est inspirée de celle de Hughes et al. [Hug48] qui a mesuré les paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de la fission induite par neutron de ^{235}U . Les tableaux 2.3 et 2.4 regroupent les paramètres trouvés par Nikotin et Kull respectivement. Notons l'absence de données pour le ^{237}Np .

Actinide	Groupe	$T_{1/2}$ (s)	Contribution relative du groupe (%)
^{232}Th	1	55,6±1,5	4,4±0,2
	2	10,3±0,8	16,3±1,0
	3	5,45±0,50	15,9±1,5
	4	1,98±0,20	37,5±3,0
	5	0,43±0,10	17,2±2,0
	6	0,18±0,03	8,7 (+2,0 -4,0)
^{235}U	1	54,7±2,5	5,4±0,5
	2	20,3±1,0	20,0±2,0
	3	5,45±0,60	15,2±2,0
	4	2,01±0,25	36,9±4,0
	5	0,50±0,10	13,9±2,0
	6	0,19±0,04	8,6 (+2,0 -5,0)
^{238}U	1	56,2±0,8	1,98±0,08
	2	21,3±0,3	15,7±0,5
	3	5,50±0,20	17,5±0,7
	4	2,15±0,10	31,1±0,8
	5	0,70±0,06	17,7±0,9
	6	0,19±0,02	16,1 (+2,0 -5,0)
^{239}Pu	1	54,3±3,0	6,05±0,60
	2	20,6±1,0	20,6±2,0
	3	5,7±0,7	18,3±3,0
	4	1,94±0,30	29,5±4,0
	5	0,58±0,10	14,9±3,0
	6	0,20±0,04	10,6 (+2,0 -5,0)

Tableau 2.3 – Périodes et contributions relatives des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission du ^{232}Th , de ^{235}U , de ^{238}U et du ^{239}Pu pour des énergies électron de 15 MeV [Nik66].

Groupe	Contribution relative de neutrons retardés (%)			
	^{235}U (8 MeV)	^{235}U (10 MeV)	^{238}U (8 MeV)	^{238}U (10 MeV)
1	5,2±0,5	5,6±0,5	2,5±0,1	2,1±0,1
2	25,3±0,3	24,5±0,5	17,3±0,4	16,3±0,1
3	21,3±1,3	24,4±0,9	17,0±1,1	16,7±0,3
4	35,0±1,2	33,7±0,5	36,1±0,9	36,4±0,4
5	4,4±2,2	9,1±1,0	17,9±1,1	18,1±1,0
6	8,8±3,2	2,8±1,1	9,2±1,4	10,5±1,1

Tableau 2.4 – Contributions relatives des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission de l' ^{235}U et de l' ^{238}U pour des énergies électron de 8 et 10 MeV [Kull70].

L' ^{235}U et l' ^{238}U ont donc été les seuls actinides étudiés par deux auteurs différents. Leurs paramètres sont déterminés pour des énergies électron de 8, 10 (Kull) et 15 MeV (Nikotin). Kull a comparé ses paramètres obtenus à 8 et 10 MeV. Pour les groupes 5 et 6 de l' ^{235}U un écart est observé entre les deux énergies. Kull a attribué cet écart à un manque de statistique ainsi qu'aux incertitudes apportées par les corrections pour les réactions $^{235}\text{U}(n, f)$ et à l'absence de corrections pour les réactions $^{238}\text{U}(\gamma, f)$. Il a donc choisi de comparer la somme des contributions des groupes 5 et 6. Il a finalement conclu qu'il n'y avait pas de différence entre les contributions des six groupes de neutrons retardés ni pour l' ^{235}U ni pour l' ^{238}U entre 8 et 10 MeV. Si on compare maintenant les résultats de Kull et Nikotin, nous remarquons un écart pour les contributions des groupes 4 et 6 pour l' ^{238}U alors que pour l' ^{235}U les écarts sont plutôt pour les groupes 2 et 3. Kull a attribué cet écart à l'ouverture de la voie de seconde chance de fission. Nous avons étudié cette hypothèse lors de notre campagne expérimentale.

Notre première mesure des spectres temporels de neutrons retardés a été réalisée pour l' ^{238}U avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 15 MeV [Gia05]. La méthode de mesure est semblable à celle de Kull, bien que les temps de vie des groupes ne soient pas fixés. La méthode sera expliquée en détail dans la section 2.4. Les résultats de cette expérience, représentés sur la figure 2.11 par des carrés noirs ont montré qu'il n'y a pas d'écart entre les contributions des six groupes à 8, 10 et 15 MeV. Même notre mesure de 2005 réalisée à 18 MeV (cercles noirs) confirme cette affirmation [Van06]. Les écarts observés avec Nikotin ne peuvent donc être expliqués par l'ouverture de la voie de fission de seconde chance. Les écarts sont plutôt liés à la méthode d'extraction que Nikotin a utilisée. En effet, nous avons vérifié en utilisant nos données que pour une irradiation longue, les groupes à demi-vies courtes sont difficiles à extraire correctement.

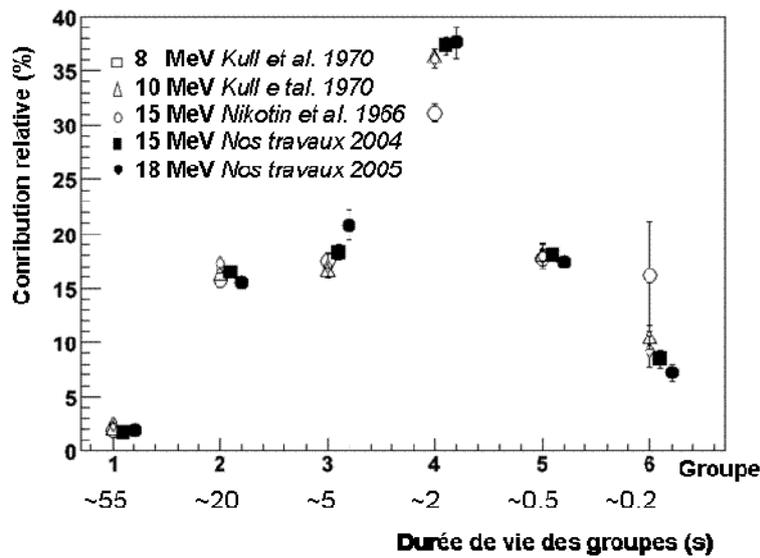


Figure 2.11 – Comparaison des contributions relatives des six groupes de neutrons retardés de ^{238}U déterminées à 15 et à 18 MeV à celles trouvées par Kull à 8 et 10 MeV et par Nikotin à 15 MeV.

Pour le ^{232}Th , les contributions relatives des six groupes de neutrons retardés sont comparées au résultat de Nikotin sur la figure 2.12. Ici aussi, aucun écart n'est observé entre nos paramètres à 15 et 18 MeV. Par contre nous observons un écart entre nos données et celles de Nikotin pour les contributions des groupes 3 et 6 à 15 MeV. Ces mesures viennent confirmer le constat établi pour ^{238}U : l'ouverture de la voie de fission de seconde chance n'a pas d'impact significatif sur les paramètres des six groupes de neutrons retardés.

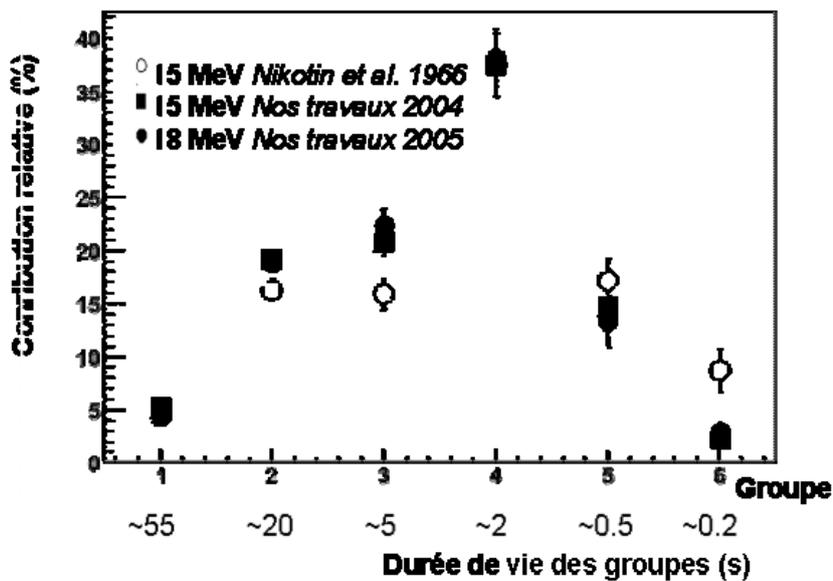


Figure 2.12 – Comparaison des contributions relatives des six groupes de neutrons retardés du ^{232}Th déterminées à 15 et à 18 MeV à celles trouvées par Nikotin à 15 MeV.

En conclusion, cette étude des données disponibles dans la littérature et la comparaison avec les premières mesures de notre campagne expérimentale nous ont amené à établir quelques constats. Concernant les mesures de rendements absolus, il nous apparaît nécessaire de réaliser une série de mesures afin d'étudier l'évolution du rendement absolu en fonction de l'énergie et ce, pour plusieurs actinides. Pour ce qui est des contributions relatives des six groupes, nos mesures ont permis de comprendre la provenance des écarts entre les données de Nikotin et Kull. Les contributions des groupes 4 et 6 ont été corrigées pour l' ^{238}U et le ^{232}Th . Les valeurs de Nikotin pour les autres actinides devront aussi être corrigées. C'est ce qui a motivé les expériences sur l' ^{235}U , le ^{237}Np et le ^{239}Pu . Les deux premières expériences font l'objet de ce travail.

2.4 Procédure expérimentale

Notre campagne expérimentale s'est poursuivie en 2006 par des mesures de spectres d'émission de neutrons retardés pour l' ^{235}U avec des faisceaux de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 15 et de 18 MeV. La même année, une autre expérience a été réalisée pendant laquelle nous avons effectué une série de mesures de rendements absolus de neutrons retardés pour trois actinides (^{232}Th , ^{235}U , et ^{238}U) pour des énergies électron comprises entre 12 et 18,5 MeV. En 2007, nous avons enchaîné cette série d'expériences avec une mesure des spectres d'émission de neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np avec un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 15 MeV. Cette expérience est d'une grande importance parce qu'aucune mesure n'a été répertoriée dans la littérature jusqu'à maintenant. Toutes les mesures de notre campagne expérimentale sont regroupées ci-dessous dans le tableau 2.5.

Date de l'expérience	Actinide	Energie électron (MeV)	Observable
10/2004	^{238}U	15	v_d, a_i, λ_i
07/2005	^{232}Th ^{238}U	12, 15, 16,5, 18	v_d, a_i, λ_i
07/2006	^{235}U	15, 18	v_d, a_i, λ_i
11/2006	^{232}Th ^{235}U ^{238}U	12 à 18,5 (pas de 0,5 MeV)	v_d
07/2007	^{237}Np	15, 16,5, 18	v_d, a_i, λ_i

Tableau 2.5 – Expériences réalisées dans le cadre de notre campagne expérimentale sur le ^{232}Th , l' ^{235}U , le ^{237}Np et l' ^{238}U . Les énergies électron utilisées et les observables déterminées sont aussi indiquées.

Dans cette section, la stratégie des mesures de rendements absolus et des paramètres des six groupes de neutrons retardés adoptée lors de cette campagne sera décrite. Pour ce faire, nous utilisons l'équation (1.8) qui donne le rendement de neutrons retardés mais dans sa forme générale c'est-à-dire pour un temps d'irradiation T_{irr} du même ordre de grandeur que le temps de demi-vie des précurseurs. Avec cette condition, l'équilibre n'est donc pas atteint et l'équation (1.8) doit être corrigée pour tenir compte du temps d'irradiation [Gia05], elle devient :

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 A_i \exp(-\lambda_i t) (1 - \exp(-\lambda_i T_{irr})) \quad (2.2)$$

2.4.1 Stratégie de mesure des rendements absolus

Le rendement absolu est défini par le nombre total de neutrons retardés émis par fission par tous les précurseurs. Il est calculé à l'aide de l'équation (1.9) rappelée ici :

$$\nu_d = \sum_{i=1}^6 A_i$$

Pour mesurer ce rendement, deux méthodes peuvent être utilisées. La première est la détermination du ν_d après une irradiation longue de l'échantillon c'est-à-dire après un temps d'irradiation T_{irr} très supérieur au temps de demi-vie des précurseurs. A ce temps T_{irr} , la population des précurseurs a atteint son équilibre. L'équation (2.2) revient donc à la forme de l'équation (1.8) rappelée ici :

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 A_i \exp(-\lambda_i t)$$

Le rendement absolu est donc extrait de la valeur à $t=0$ de cette équation.

La deuxième méthode est de mesurer le ν_d après un temps d'irradiation T_{irr} très inférieur au temps de demi-vie des précurseurs. Alors en approchant le facteur correctif de l'équation (2.2) $(1 - \exp(-\lambda_i T_{irr})) \approx \lambda_i T_{irr}$, cette équation devient :

$$Y_{dn}(t) = \sum_{i=1}^6 A_i \exp(-\lambda_i t) (\lambda_i T_{irr}) \quad (2.3)$$

A partir de cette équation, nous pouvons déterminer la valeur de ν_d grâce à l'équation suivante :

$$\nu_d = \frac{1}{T_{irr}} \int_0^{\infty} Y_{dn}(t) dt \quad (2.4)$$

Pour toutes les mesures de rendements absolus de neutrons retardés présentés dans la suite de ce document, la deuxième méthode a été choisie parce qu'elle est plus précise et plus rapide expérimentalement que la première. Le rendement absolu déduit de l'irradiation longue dépend de la valeur à $t=0$ du spectre, en d'autres termes de la réponse du détecteur à cet instant. Le temps de récupération du détecteur est de quelques dizaines de millisecondes ce qui induit une erreur sur les valeurs de rendements absolus extraits à $t=0$.

2.4.2 Stratégie de mesure des paramètres des six groupes de neutrons retardés

L'équation (2.2) montre une dépendance entre la contribution de chaque groupe et le temps d'irradiation T_{irr} . Pour un T_{irr} court, les groupes à vie longue contribuent moins à l'émission des neutrons retardés et la contribution majeure provient des groupes à vie courte. En revanche, les irradiations longues permettent de voir les groupes à vie longue et de déterminer ainsi leurs paramètres. Nous choisissons pertinemment les temps d'irradiation pour mettre en valeur certains groupes dont nous voulons extraire les paramètres. Une irradiation de 300 s est donc choisie pour déterminer les paramètres des groupes 1 et 2, de 10s pour ceux des groupes 3 et 4 et de 100 μ s pour ceux des groupes 5 et 6. L'influence de ce choix de temps d'irradiation est visible sur la figure 2.13 où nous présentons la contribution relative de chaque groupe par rapport à la contribution totale de tous les groupes en fonction du temps de décroissance pour les irradiations de 300 s et 140 μ s.

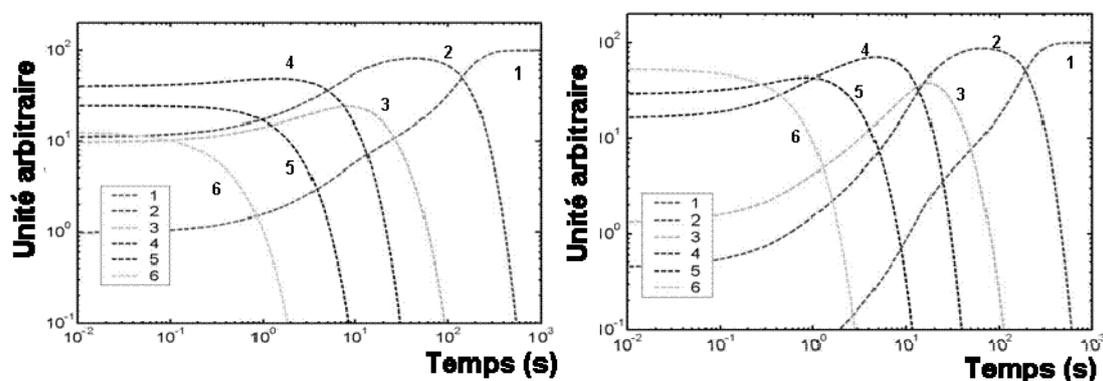


Figure 2.13 – Contribution relative des six groupes de neutrons retardés de ^{235}U suite à l'irradiation longue (à gauche) et l'irradiation courte (à droite).

Les paramètres utilisés pour construire ces spectres sont ceux de Nikotin pour la fission de ^{238}U par une énergie maximale de Bremsstrahlung de 15 MeV [Nik66]. Nous constatons tout d'abord que les groupes 1 et 2 sont omniprésents après 80 s de décroissance. Cette influence relative des groupes 1 et 2 diminue en passant de l'irradiation de 300 s à celle de 10 s. Le groupe 3, pour sa part, n'est jamais dominant. Le groupe 4 sera dominant entre 7 et 10 s suite à l'irradiation de 10 s et les groupes 5 et 6 le seront au début de la décroissance suite à l'irradiation courte. Ces figures nous montrent aussi qu'un temps de décroissance ($T_{déc}$) de 300 s est suffisant pour extraire les paramètres des groupes 1 et 2. Un $T_{déc}$ de 100 s et de 40 s est choisi pour les irradiations intermédiaire et courte respectivement.

Le but principal de ces mesures est d'extraire la contribution A_i et la constante de décroissance λ_i de chaque groupe de neutrons retardés à partir de ces spectres temporels obtenus. La contribution A_i est, par définition, le nombre de neutrons retardés émis par fission dans le cas d'une irradiation infinie et avec un faisceau continu. Nos mesures ne remplissent pas ces deux conditions. En effet, nos mesures sont réalisées auprès de l'accélérateur d'électrons ELSA qui fournit un faisceau d'électrons pulsé. Comme nous venons de le voir dans cette section, les temps d'irradiation ne sont pas infinis. Pour cela, une correction tenant compte de ces facteurs est appliquée aux contributions A_i . Cette correction [Gia05] est donnée par la formule suivante :

$$M_i^{pulse, finie}(K, T, \tau) = \frac{(K-1)T + \tau}{K\tau} \frac{1 - \exp(-\lambda_i KT)}{1 - \exp(-\lambda_i T)} (1 - \exp(-\lambda_i \tau)) \quad (2.5)$$

où K le nombre des impulsions du faisceau d'électrons durant un cycle de mesure
 T périodes des impulsions
 τ durée des impulsions

De plus, plusieurs cycles d'irradiation et de décroissance sont effectués pour obtenir la statistique voulue. La cible est donc à nouveau irradiée avant la décroissance de tous les précurseurs et un autre facteur correctif doit être appliqué aux contributions A_i . Ce facteur [Gia05] est représenté par l'équation donnée ci-dessous :

$$M_i^{somme}(N, T_c) = \frac{1}{1 - \exp(-\lambda_i T_c)} \left[1 - \frac{1 - \exp(-\lambda_i N T_c)}{N(\exp(\lambda_i T_c) - 1)} \right] \quad (2.6)$$

où N est le nombre de cycles effectués et T_c la période des cycles.

La procédure expérimentale décrite dans cette section a été appliquée aux mesures présentées dans ce travail. Les différentes corrections associées au temps d'irradiation, à la pulsation du faisceau et à la répétition des mesures seront prises en compte lors de la détermination des paramètres des groupes.

2.5 Modélisation

Le nombre d'actinides pour lequel les paramètres de neutrons retardés doivent être connus est important. Evidemment, il est impossible de réaliser toutes les mesures. Une modélisation complète de l'expérience et des processus impliqués a donc été développée. Cette modélisation sera comparée ici à nos résultats expérimentaux. Après cette validation, la modélisation sera utilisée afin de fournir les informations pour les actinides pour lesquels nous ne pouvons pas faire d'expérience. Cette modélisation est divisée en quatre étapes. Lors de la première étape, le calcul du spectre de Bremsstrahlung est effectué à l'aide du code de calcul MCNPX [Hen05] ; la deuxième étape est constituée du calcul de l'absorption des photons par les noyaux d'actinide. L'absorption est décrite par le modèle de la GDR. La désexcitation du noyau, la troisième étape, est effectuée par le code ABLA [Ben98, Jun98]. La compétition évaporation-fission est traitée et les distributions individuelles des produits de réactions sont calculées. Les distributions individuelles seront transformées en distributions cumulatives à l'aide du code d'évolution CINDER'90 [Wil99]. A la suite de cette quatrième étape, les précurseurs de neutrons retardés seront classés en six groupes et les paramètres de ces groupes ainsi que le rendement absolu des neutrons retardés seront calculés. Les étapes de la modélisation sont détaillées ci-dessous et les codes de calcul servant à les accomplir sont brièvement décrits.

2.5.1 Calcul du spectre de Bremsstrahlung : MCNPX

Nous avons utilisé le code de calcul MCNPX, très utilisé en physique nucléaire, pour simuler le spectre de Bremsstrahlung dans la cible d'actinide. MCNPX est un code de transport de type Monte Carlo. Ce code est plus complet que MCNP puisqu'il est utilisable pour toutes les particules (neutron, proton, électron,...) et pour une plus large gamme en énergie. Les bibliothèques de neutron, proton et photonucléaires sont étendues jusqu'à 150 MeV. Il faut lui fournir en entrée la géométrie tridimensionnelle de l'environnement avec les matériaux utilisés. En sortie, il fournit la valeur du paramètre demandé, ce paramètre pouvant être un nombre de réactions par particule incidente, un flux de particules à travers une surface, etc. Dans notre cas, nous calculons le spectre en énergie des photons sur l'échantillon d'actinide.

2.5.2 Absorption du Bremsstrahlung : GDR

La section efficace d'absorption des photons est calculée avec le modèle de la résonance dipolaire géante. Celle-ci est paramétrisée par une somme de deux lorentziennes dont les paramètres sont extraits de la table RIPL-2 [Bel04]. Cette étape du calcul est intégrée à la voie d'entrée du code ABLA et donne la probabilité d'absorption des photons. Cette probabilité est pondérée par le spectre en énergie des photons calculé avec MCNPX. A la suite de cette étape, s'il y a absorption, le noyau composé a une énergie d'excitation égale à l'énergie du photon.

2.5.3 Désexcitation du noyau composé : ABLA

La désexcitation du noyau composé par émission de particules ou par fission est décrite par le code ABLA. La désexcitation est basée sur un modèle statistique ou la fission est en compétition avec l'émission de particules. Ce code fournit, en sortie, les sections efficaces d'émission de neutrons, celles de fission mais aussi les distributions de produits de fission. La fission de multi-chance est aussi prise en compte bien que de façon non satisfaisante pour l'instant. Les distributions en masse et en charge des produits de fission d'ABLA ont été comparées aux rares données existantes [Dav04, Van06]. La qualité de l'accord entre mesures et prédictions nous a conforté dans le choix de ce code de désexcitation.

2.5.4 Evolution des produits de fission : CINDER'90

Le code CINDER'90 est un code d'activation multi-groupes. Il décrit les concentrations temporelles des nucléides détruits et/ou créés dans les matériaux soumis généralement à un flux de neutrons. Pour chaque étape en temps spécifiée dans un fichier d'entrée, CINDER'90 calcule la densité atomique, la densité d'activité, etc. Dans notre cas, la distribution des produits de fission individuelle donnée par ABLA sert de taux de production de produits de fission pour CINDER. Ces distributions individuelles sont évoluées en temps (via les chaînes de décroissance) à l'aide de CINDER'90 afin d'obtenir les distributions cumulatives à l'équilibre. Les précurseurs de neutrons retardés sont ensuite extraits parmi les produits de fission à l'aide d'une table de précurseurs. Elle contient, pour chaque

précurseur, son temps de demi-vie et la probabilité d'émission de neutrons retardés (P_n). Pour obtenir le rendement de neutrons retardés, nous multiplions le rendement des précurseurs par sa valeur de P_n associée, puis nous regroupons les précurseurs en six groupes en fonction de leur temps de demi-vie. Nous obtenons ainsi la contribution de chaque groupe. Le temps de demi-vie d'un groupe est défini par la moyenne pondérée du temps de demi-vie de chaque précurseur et sa contribution. Le rendement absolu de neutrons retardés est obtenu en additionnant les contributions absolues des six groupes. Ces paramètres seront comparés aux résultats expérimentaux aux chapitres 3 et 4.

Synthèse

Nous avons présenté dans ce chapitre les principales observables étudiées dans le cadre de la caractérisation de fûts de déchets par photofission. Nous nous sommes particulièrement intéressés aux neutrons retardés. Toutes les mesures des paramètres et des rendements absolus de neutrons retardés trouvées dans la littérature ont été présentées et discutées. La nécessité de réaliser d'autres mesures a été mise en évidence. Les stratégies de mesures utilisées lors de nos expériences ont été décrites dans ce chapitre. Le travail de modélisation accompagnant l'effort expérimental a été brièvement décrit.

Chapitre 3 Dispositif expérimental

Nos expériences de photofission se déroulent auprès de l'accélérateur d'électrons ELSA installé au CEA/DIF/DPTA à Bruyères-le-Châtel. Dans ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental que nous avons utilisé lors de nos expériences. Après une brève présentation générale de l'ensemble du dispositif, l'installation ELSA et les cibles d'actinides sont décrites. Le choix et l'optimisation du détecteur de neutrons retardés utilisé sont ensuite détaillés. Enfin, l'acquisition et l'électronique seront présentées.

3.1 Présentation générale

La figure 3.1 présente le schéma du dispositif expérimental utilisé. L'accélérateur ELSA fournit des électrons d'énergie allant jusqu'à 19 MeV. Ces électrons sont ralentis dans une cible de tantale afin de produire un rayonnement de freinage appelé rayonnement Bremsstrahlung. L'ouverture angulaire du faisceau de photons est réduite par le collimateur (Pb). Ces photons, pour des énergies supérieures à 6 MeV, induisent la fission des actinides étudiés. Les neutrons retardés émis par certains produits de fission sont mesurés dans un détecteur approprié.

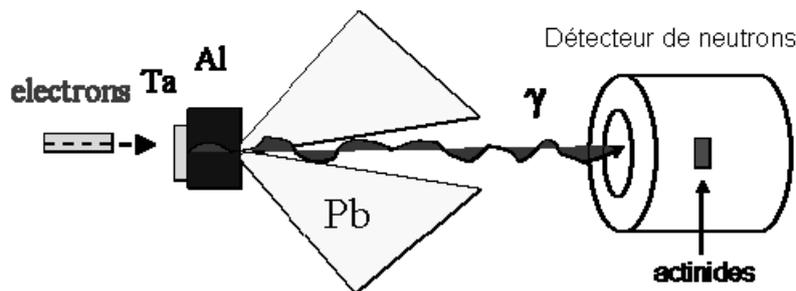


Figure 3.1 – Schéma du dispositif expérimental à ELSA.

3.2 Installation ELSA

L'accélérateur ELSA est un accélérateur linéaire d'électrons (LINAC) utilisant la technique d'accélération par champs radiofréquence [Dei90, Gui02, Mar02, Pic04]. Les électrons sont extraits d'une photocathode par effet photoélectrique suite à l'interaction d'un laser (Nd-YAG) avec celle-ci. Le faisceau d'électrons possède une double structure temporelle qui est l'image de celle du laser venant illuminer la photocathode. Cette structure, schématisée sur la figure 3.2, consiste en :

- Une série de micro-impulsions, d'une durée allant de 10 ps à 120 ps de largeur à mi-hauteur avec une fréquence élevée (typiquement 72 MHz).
- Une macro-impulsion dont la durée peut varier entre 10 ps et 150 μ s contenant les micro-impulsions. Le taux de répétition de cette macro-impulsion peut, quant à lui, varier entre 1 Hz et 10 Hz.

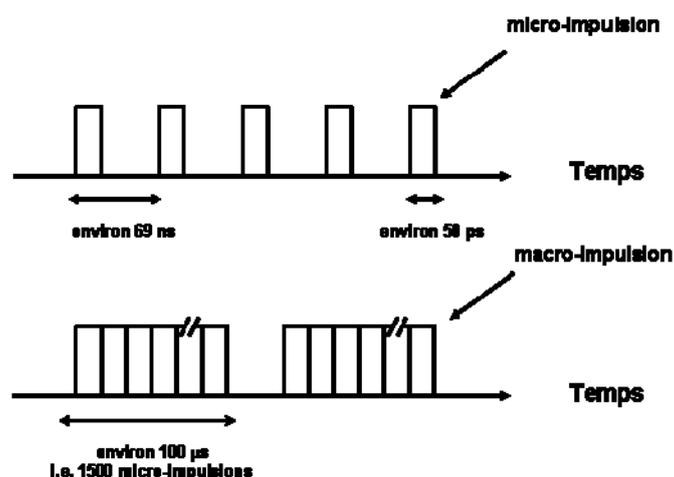


Figure 3.2 – Structure temporelle du faisceau d'électrons de l'accélérateur ELSA.

L'extraction des électrons est facilitée par l'application d'une haute tension (HV) sur la photocathode au moment de l'interaction laser. Cette tension appliquée avec une fréquence de 144 MHz permet d'accélérer les électrons jusqu'à 2,5 MeV. L'ensemble photocathode et haute tension est appelée ici photo-injecteur. Les électrons sont ensuite accélérés à l'énergie voulue par trois cavités accélératrices à 433 MHz. La tension sur la photocathode est coupée pendant le comptage des neutrons retardés afin de réduire le bruit de fond. En effet, lors de l'expérience de photofission sur ^{238}U [Gia05], il a été constaté que la présence de la tension d'extraction génère un bruit de fond. Ce phénomène est expliqué par le fait que des électrons sont arrachés à la photocathode et transportés jusqu'à la cible de conversion où ils produisent des réactions de Bremsstrahlung. Ces photons induisent des réactions photo nucléaires produisant des neutrons dans la cible d'actinides mais aussi dans la cible de conversion et le collimateur en plomb. Une partie de ces neutrons sera détectée dans le détecteur ^3He donnant lieu à un bruit de fond. L'énergie des électrons à la sortie des cavités accélératrices varie entre 2,5 et 19 MeV avec une résolution en énergie d'environ 100 keV. Un compresseur magnétique constitué de deux dipôles permet de diminuer la dispersion en temps. Finalement, ce faisceau d'électrons interagit avec la cible de conversion de Tantale. Cette cible de 1,2 mm d'épaisseur et de 2,6 cm de diamètre est inclinée de 45° . La tache-faisceau sur la cible de conversion est d'environ 2 mm. Un cylindre d'aluminium est placé derrière cette cible pour arrêter les électrons résiduels et atténuer les gammas de basse énergie. Un collimateur en plomb d'une ouverture angulaire de 2° est placé après la cible de conversion. Ce collimateur est placé dans un parallélépipède en inox de 42 cm d'épaisseur inséré dans un mur de béton de 60 cm d'épaisseur. L'ouverture à l'entrée du collimateur est de 0,77 cm et de 1,73 cm en sortie.

Pour des raisons de radioprotection, l'intensité moyenne du faisceau d'électrons est limitée à $1 \mu\text{A}$. Différents moniteurs, le long de la ligne de faisceau, permettent de mesurer l'intensité. Des caméras permettent de visualiser la forme, la taille et la position du faisceau. Pour nos expériences, les mesures d'intensité sont effectuées juste avant la cible de conversion et quelques mètres en amont. La comparaison de ces deux mesures permet de déterminer si le faisceau était bien aligné et si la mesure donnée est cohérente.

Sur la figure 3.3, la géométrie de la section de production de photons jusqu'à la sortie du collimateur est représentée. Nous distinguons sur cette figure le cylindre d'aluminium, la cible de tantale étant placée juste devant ce cylindre. La disposition des différentes composantes du collimateur (plomb, dénal, inox et béton) sont visibles sur la figure 3.3. Cette géométrie a été implantée dans le code de transport MCNPX afin de calculer le flux de photons et les taux de réactions au niveau des cibles. A titre d'exemple, précisons que le flux de photons est de $1,02 \cdot 10^8$ photons/cm²/s à 234 cm de la cible de tantale pour une énergie électron de 15 MeV et une intensité du faisceau de 1 μ A. Les cibles sont décrites dans la section suivante.

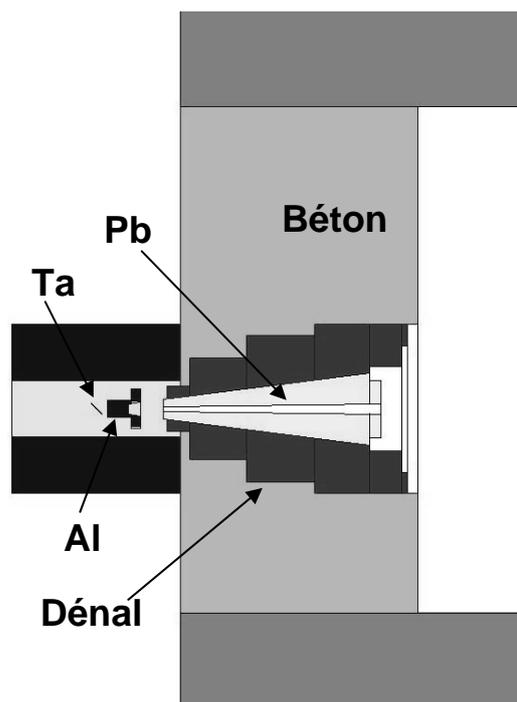


Figure 3.3 – Géométrie d'ELSA telle qu'elle a été implantée dans le code MCNPX.

3.3 Cibles d'actinides

Pour les mesures présentées dans ce travail, des cibles d'uranium-238 (²³⁸U), de thorium-232 (²³²Th), d'uranium-235 (²³⁵U) et de neptunium-237 (²³⁷Np) ont été utilisées. Pour les deux premiers actinides, des masses importantes ont été utilisées soit environ 400 et 300 g respectivement. Ces deux cibles d'actinides proviennent du CEA/DIF et de l'IPN d'Orsay respectivement. Pour l'²³⁵U et le ²³⁷Np de petites quantités d'actinides étaient disponibles et utilisables (environ 11 et 49 g). Le premier provient de l'IRSN/Fontenay- Aux-Roses et le deuxième de l'IRMM/Geel. D'autres cibles d'²³⁸U de masses plus petites et de dimensions différentes du CEA/DIF ont été aussi utilisées. Le tableau 3.1 regroupe toutes les informations sur les cibles utilisées dans ce travail. Les différents échantillons ont tous été placés à 234 cm de la cible de conversion, c'est-à-dire à 184 cm de la sortie du collimateur. La plupart des échantillons ont été analysés par spectroscopie gamma grâce à un détecteur GeHP. La mesure de l'efficacité du détecteur a été effectuée à l'aide des sources étalon comme le Cobalt-60, Manganèse-54, Europium-152, etc. La masse de chaque échantillon a

été extraite de l'activité gamma mesurée de cet échantillon. Les masses obtenues sont comparées aux masses pesées par le laboratoire d'origine dans le tableau 3.2.

Actinide	Diamètre (cm)	Epaisseur (cm)	Masse totale (g)	Impuretés (% masse)
^{235}U	6,5	0,02	12,49	7 % d' ^{238}U
^{237}Np	8,05	0,1	56,69	12,26 % d' ^{16}O 0,48 % de ^{232}Th
^{238}U	3	3	401,85	0,2 % d' ^{235}U
^{238}U	5	0,08	29,92	0,2 % d' ^{235}U
^{238}U	2	0,1	5,6	0,7 % d' ^{235}U
^{238}U	1,9	0,1	5,8	0,7 % d' ^{235}U
^{232}Th	2,55	5	303	-

Tableau 3.1 – Dimensions, masse et impuretés de chaque cible d'actinides.

Actinide	Masse totale (g)	Impuretés
^{235}U	12,6 ± 2,0	6,2 % d' ^{238}U
^{238}U	31,4 ± 5,0	0,2 % d' ^{235}U
^{238}U	5,95 ± 1,0	0,76 % d' ^{235}U
^{238}U	5,5 ± 0,8	0,62 % d' ^{235}U

Tableau 3.2 – Masse et impuretés mesurées par spectrométrie gamma de quelques cibles d'actinides.

Les mesures faites par spectrométrie gamma et celles réalisées par le laboratoire d'origine sont en accord.

3.4 Optimisation du détecteur de neutrons retardés

3.4.1 Problématique

Les mesures antérieures à 15 MeV pour l' ^{238}U [Gia05] ont été réalisées avec l'échantillon de 400 g. Le détecteur de neutrons était constitué d'un bloc de polyéthylène contenant un seul compteur d'hélium-3 (^3He). L'efficacité totale de détection de neutrons retardés était de 0,62 %. Dans le cas de l' ^{238}U , le nombre total de neutrons retardés émis suite à la photofission est de 3,1 n/100fiss (voir tableau 3.3) et la section efficace de photofission est de 156 mbarns pour un photon de 15 MeV. La petite efficacité est donc compensée par une section efficace relativement importante et un rendement de neutrons retardés important.

Actinide	Masse totale (g)	Rendement de neutrons retardés/fission (%)	$\sigma(\gamma, f)$ à 15 MeV (mbarns)	Nombre de neutrons retardés (relativement à 1^{238}U)
^{238}U	~ 400	3,1	156	1
^{235}U	~ 10	0,96	276	0,66
^{237}Np	~ 50	0,54	265	0,33

Tableau 3.3 – Rappel des masses, v_d , et sections efficaces de photofission pour 1^{238}U , 1^{235}U et le ^{237}Np [Nik66, Cal75]. Le nombre total de neutrons retardés attendu, relativement à une masse donnée d' ^{238}U est aussi présenté.

Les valeurs des masses, v_d et sections efficaces pour 1^{235}U et le ^{237}Np sont aussi présentés dans le tableau 3.3. Au total, pour une masse donnée, les rapports du nombre de neutrons émis dans le cas de 1^{235}U et du ^{237}Np par rapport à 1^{238}U sont de 0,66 et 0,33. En tenant compte de ces facteurs et de la masse de matière dont nous disposons pour les cibles d' ^{235}U et de ^{237}Np , nous constatons que pour réaliser nos mesures dans un temps raisonnable, il faut augmenter l'efficacité de détection d'un ordre de grandeur. Pour ce faire, un autre détecteur a été conçu et réalisé. Le choix du type de détecteur et l'optimisation de l'efficacité de détection sont discutés dans les sections suivantes.

3.4.2 Choix du détecteur

Les neutrons sont généralement détectés au moyen des réactions nucléaires qu'ils induisent. Les plus utilisées sont les réactions $^3\text{He} (n, p)$, $^{10}\text{B} (n, \alpha)$ et $^6\text{Li} (n, t)$. La section efficace de ces trois réactions en fonction de l'énergie des neutrons est présentée sur la figure 3.4. A la vue de cette figure, nous remarquons que les trois sections efficaces ont quasiment la même allure en fonction de l'énergie des neutrons. Elles sont de quelques milliers de barns pour les neutrons thermiques puis diminuent selon la loi en $1/v$ jusqu'à atteindre quelques dixièmes de barns dans la zone des neutrons rapides. Nous observons aussi que la section efficace la plus importante des trois est celle de la réaction des neutrons sur l'hélium-3. Par ailleurs, ^3He est peu sensible aux rayonnements gamma, une condition indispensable pour nos mesures. Pour ces raisons, nous avons donc choisi un détecteur de type gazeux ^3He afin de mesurer les neutrons retardés dont les énergies sont comprises entre 0,1 et 1 MeV.

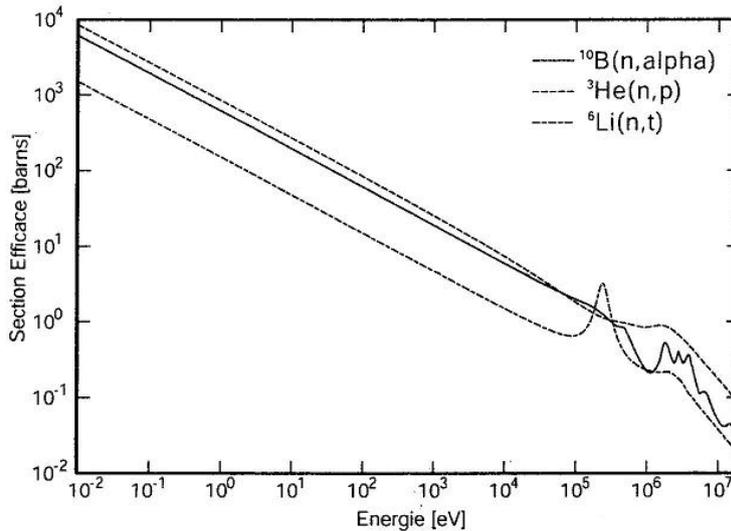


Figure 3.4 – Section efficace des réactions des neutrons sur le béryllium, le lithium-7 et l'hélium-3 en fonction de l'énergie des neutrons.

Les compteurs d' ^3He choisis sont du type 48NH30. Ils sont formés d'un tube en acier inoxydable et sont remplis d' ^3He à une pression de 4 bars. Ils ont une longueur de 30 cm et un diamètre de 2,5 cm. Les neutrons sont détectés dans les compteurs ^3He (par ionisation du gaz) suite à la réaction suivante :



La section efficace de cette réaction est de 5330 barns pour les neutrons thermiques (voir figure 3.4). Puisqu'elle est inversement proportionnelle à la vitesse des neutrons, il est donc judicieux de ralentir les neutrons vers le domaine d'énergie thermique pour augmenter l'efficacité de détection. Pour cela, les compteurs ^3He sont entourés de polyéthylène ($(\text{CH}_2)_n$). Une couche de cadmium de 1 mm d'épaisseur enrobe le polyéthylène pour réduire le bruit de fond provenant des neutrons thermiques réfléchis sur les murs de l'installation. Rappelons que la section efficace d'absorption des neutrons par le cadmium est de quelques milliers de barns dans le domaine thermique. L'ensemble compteur- $(\text{CH}_2)_n$ -Cd forme le détecteur de neutrons retardés.

3.4.3 Optimisation des dimensions du détecteur

La deuxième étape de l'optimisation vise à obtenir une efficacité de détection importante pour la zone en énergie couverte par les neutrons retardés, c'est-à-dire de 0,1 MeV à 1 MeV. Afin de s'affranchir de la dépendance en énergie des neutrons retardés, l'efficacité doit aussi être indépendante de l'énergie. Cette étape d'optimisation concerne donc le choix de la géométrie et de l'épaisseur de polyéthylène.

La faible émission de neutrons retardés issus de la photofission des actinides et l'isotropie de cette émission amènent à adopter une géométrie annulaire pour le détecteur. Cet anneau constitué de polyéthylène est perforé pour contenir les compteurs ^3He . L'étude est faite avec 12 compteurs. Ces derniers sont placés dans le

polyéthylène et espacés d'un angle de 30 degrés. La figure 3.5 présente la géométrie tridimensionnelle du détecteur tracée à l'aide de l'éditeur de géométrie Moritz [Mor]. Cette figure montre les douze compteurs ^3He (en rouge) insérés dans le polyéthylène (en vert). L'ensemble est entouré par une couche de cadmium (en bleu).

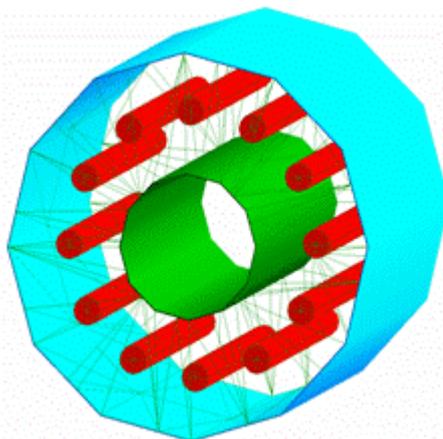


Figure 3.5 – Image 3D du détecteur hélium-3.

L'angle solide du détecteur augmente lorsque le rayon intérieur du détecteur diminue. Un petit rayon intérieur est donc favorable. Le rayon minimal R_{int} est choisi de façon à ce que le détecteur ne soit pas irradié par le flux de gamma à ELSA pour un emplacement du détecteur à 150 cm de la cible de tantale (distance initialement prévue). Ce rayon est évalué à 6 cm. La longueur des tubes étant de 30 cm, une longueur totale du détecteur de 37 cm a été choisie. L'angle solide couvert par un cylindre de rayon interne de 6 cm et d'une longueur de 37 cm pour une source ponctuelle isotrope placée en son centre est de 10,1 sr, soit 80,5 % de l'espace.

Il faut maintenant optimiser l'emplacement des compteurs dans le polyéthylène. La section de polyéthylène située entre la cible et les compteurs ralentit les neutrons vers le domaine d'énergie thermique où la probabilité d'interaction avec le gaz est maximum. Elle joue le rôle de modérateur. Celle située derrière les compteurs permet de réfléchir les neutrons qui n'ont pas encore interagit avec le gaz. Elle joue le rôle d'un réflecteur. Afin d'obtenir une efficacité maximale, il faut chercher à optimiser les épaisseurs du modérateur et du réflecteur. Ici les deux paramètres liés à ces deux épaisseurs sont respectivement : la distance cible-compteur et le rayon extérieur.

Tout d'abord, nous choisissons une épaisseur totale de polyéthylène de 10 cm. Cette épaisseur a été optimisée pour l'expérience sur l' ^{238}U . Le rayon extérieur, R_{ext} , est donc de 16 cm. Nous calculons ensuite l'efficacité en variant la distance d cible-compteur et l'énergie de la source ponctuelle isotrope de neutrons de 0,1 MeV à 1 MeV. Les résultats sont présentés sur la figure 3.6. A la vue de cette figure, les simulations MCNPX montrent que la distance cible-compteur optimale est de 11,5 cm. Il s'agit en fait du meilleur compromis pour avoir une bonne efficacité tout en ayant une stabilité en fonction de l'énergie. L'efficacité moyenne obtenue pour cette épaisseur est de $(0,230 \pm 0,018)$.

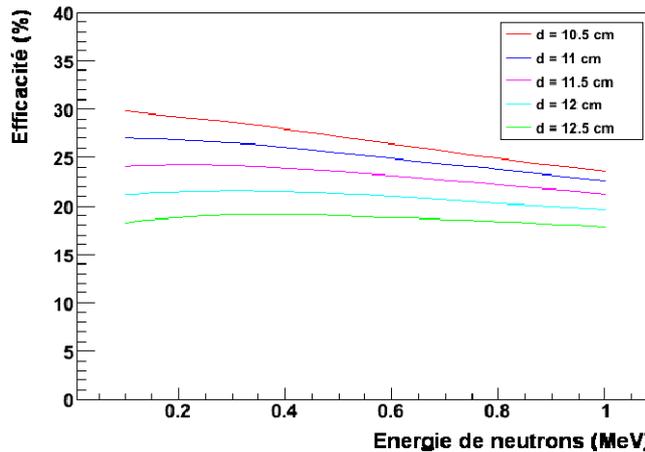


Figure 3.6 – Efficacité calculée du détecteur hélium-3 en fonction de l'énergie des neutrons retardés et pour différentes distances cible-compteur. Le rayon extérieur du détecteur est fixé à 16 cm.

La distance cible-compteur étant fixée, l'efficacité de détection est maintenant évaluée en variant le rayon extérieur du détecteur. Cette étude est faite afin de confirmer notre choix de rayon extérieur de 16 cm utilisé lors de l'étape précédente d'optimisation. La figure 3.7 présente cette efficacité en fonction de l'énergie du neutron et pour différentes valeurs du rayon extérieur.

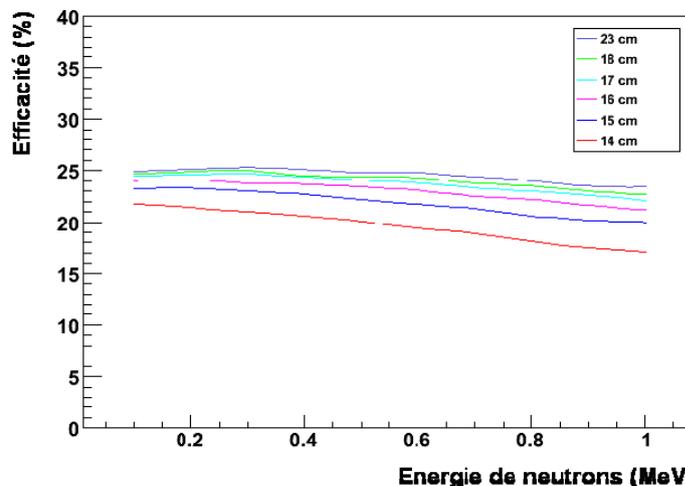


Figure 3.7 – Efficacité calculée du détecteur hélium-3 en fonction de l'énergie des neutrons retardés et pour différentes valeurs du rayon extérieur. La distance cible-compteur est fixée à 11,5 cm.

Les simulations montrent que l'efficacité de détection varie fortement en fonction de l'énergie du neutron pour les rayons extérieurs de 14 et 15 cm. Cette variation diminue pour un rayon de 16 cm et elle commence à se stabiliser à partir d'un rayon extérieur de 17 cm qui est l'équivalent de 5,5 cm d'épaisseur de polyéthylène. Le gain en efficacité entre une épaisseur de 4,5 cm (rayon extérieur de 16 cm) et une autre de 5,5 cm n'étant que 0,08 %, nous utiliserons donc une épaisseur de 4,5 cm pour le réflecteur. Alors, nous conservons une épaisseur totale de polyéthylène de 10 cm.

3.4.4 Détecteur optimisé

Le détecteur optimisé est un anneau de polyéthylène contenant 12 compteurs ^3He placés à 11,5 cm de son centre, de rayon intérieur de 6 cm et d'une épaisseur de polyéthylène de 10 cm. Il est entouré par une couche de 1 mm de cadmium. Son efficacité est de 23,0 % soit environ 36 fois plus grande que l'efficacité du détecteur utilisé pour l'expérience sur l' ^{238}U .

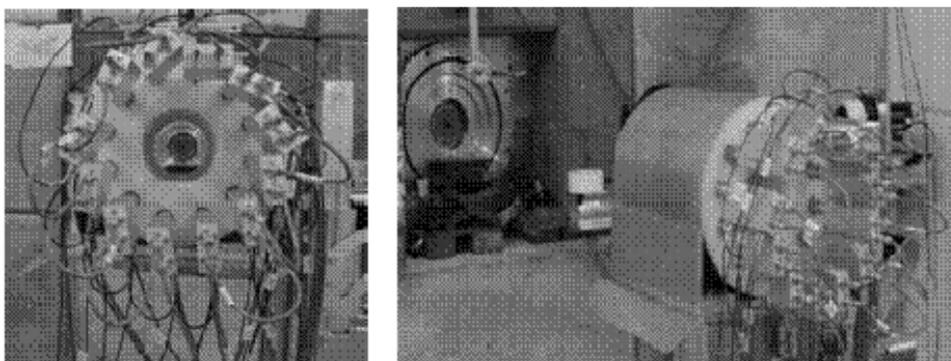


Figure 3.8 – Photographie du détecteur optimisé. A gauche une vue de l'arrière du détecteur. A droite une vue latérale où on voit la sortie du collimateur et le détecteur.

3.4.5 Calcul de l'efficacité de détection pour les différentes cibles

Pour nos expériences, la source de neutrons retardés n'est pas ponctuelle. Elle a la forme de la cible d'actinide irradié parce que les neutrons sont produits dans celle-ci. De plus, ces neutrons peuvent interagir avec les noyaux de l'actinide avant qu'ils ne soient détectés dans les compteurs ^3He . En conséquence, l'efficacité de détection n'est pas égale à celle calculée lors de l'optimisation du détecteur, mais doit prendre en compte l'absorption qui changera d'un actinide à l'autre. Pour cela, un calcul d'efficacité du détecteur selon la cible irradiée est effectué à l'aide de MCNPX. La géométrie complète d'ELSA et celle du détecteur sont évidemment prises en compte pour l'évaluation de l'efficacité. La source de neutrons est répartie dans la cible d'actinides en question. Son énergie varie de 0,1 MeV à 1 MeV. L'efficacité de détection est donc déterminée par la valeur moyenne sur l'intervalle en énergie et l'incertitude associée au domaine qui englobe toutes les valeurs d'efficacité calculées. Un exemple est présenté sur la figure 3.9. C'est celui réalisé pour la cible d' ^{235}U . La valeur d'efficacité pour cette cible est de $(0,212 \pm 0,008)$.

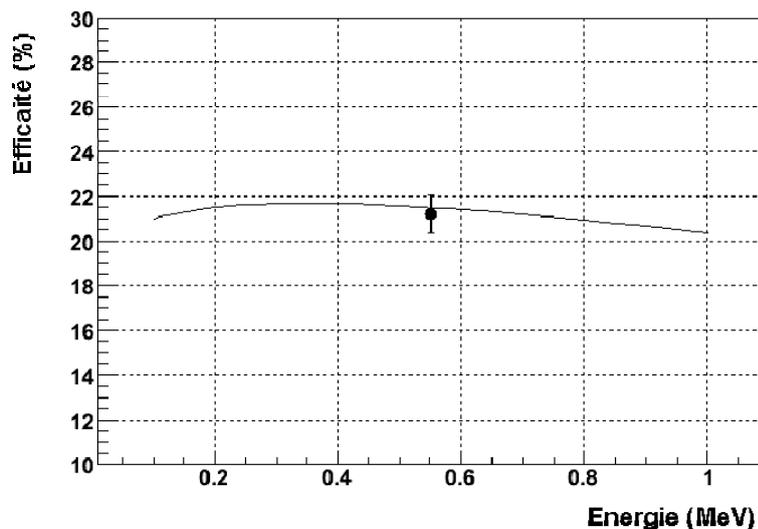


Figure 3.9 – Efficacité de détection mesurée avec une source de neutrons répartie dans la cible d' ^{235}U en fonction de l'énergie de neutrons retardés. La valeur moyenne retenue et l'incertitude sont aussi indiquées.

Le même calcul a été effectué pour toutes les cibles d'actinides utilisées pendant nos expériences. Le tableau 3.4 regroupe les efficacités de détection calculées avec ces cibles. Dans un premier temps seul l'effet dû à la taille de l'échantillon a été pris en compte (effet dû à la géométrie). Ensuite, les effets dus à l'absorption ont été inclus. Nous remarquons que la géométrie de la cible n'a aucun impact sur l'efficacité. Ceci est expliqué par la petite taille des échantillons par rapport au CH_2 . En ce qui concerne l'absorption, elle n'est significative que pour l' ^{235}U . Cet actinide a une section efficace d'absorption importante dans le régime thermique ce qui explique ce comportement. Les neutrons ralentis dans le détecteur ont une probabilité non négligeable de revenir vers la cible. Ils seront en partie absorbés par l' ^{235}U .

Certaines mesures ont été réalisées avec 11 compteurs faute de pouvoir régler le seuil d'un des préamplificateurs. Le fait d'enlever un compteur a diminué l'efficacité relative de 7,5 %. Cette variation d'efficacité a été prise en compte pendant l'analyse.

Cible d'actinide	Efficacité avec 12 compteurs (géométrie)	Efficacité avec 12 compteurs (géométrie + absorption)
^{235}U	$0,231 \pm 0,004$	$0,212 \pm 0,008$
^{237}Np	$0,231 \pm 0,004$	$0,225 \pm 0,013$
^{232}Th	$0,231 \pm 0,004$	$0,232 \pm 0,017$
^{238}U (401,85 g)	$0,231 \pm 0,004$	$0,230 \pm 0,017$
^{238}U (29,8 g)	$0,232 \pm 0,004$	$0,230 \pm 0,004$
^{238}U (~5,95 g)	$0,231 \pm 0,004$	$0,229 \pm 0,004$

Tableau 3.4 – Les efficacités de détection calculées avec les cibles d'actinides.

Par ailleurs, une source de Californium, ^{252}Cf , nous a servi à étalonner le détecteur lors de toutes les expériences présentées dans ce rapport. Le californium-252 fissionne spontanément avec un taux d'embranchement de 3,09%. Le nombre de neutrons émis

en moyenne est de 3,78 par fission. Ces neutrons ont une énergie moyenne de 2,1 MeV. Le spectre en énergie est présenté sur la figure 3.10.

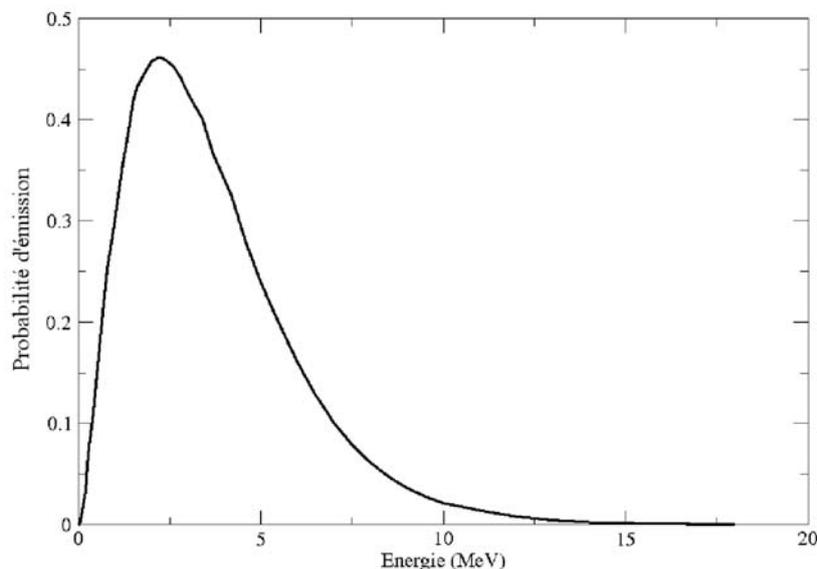


Figure 3.10 – Spectre en énergie de la source de Californium-252 disponible dans MCNPX.

L'efficacité de détection calculée à l'aide de MCNPX pour une source de Cf est de 17,57 %. Elle sera comparée à l'efficacité mesurée tout le long de nos expériences.

3.5 Acquisition et Electronique

La même chaîne électronique a été utilisée pendant les trois expériences de photofission présentées dans ce document. Dans ce qui suit, nous présentons d'abord la logique utilisée pour synchroniser le faisceau et l'acquisition. Le schéma électronique général sera ensuite détaillé.

3.5.1 Synchronisation faisceau-acquisition

Le module électronique DG535 qui est un générateur d'impulsions et de retard contrôle les différents temps (T_{irr} , T_{dec}) de la mesure. Il est déclenché par un signal provenant de la machine. L'ajustement des paramètres du DG535 est représenté sur la figure 3.11. Les sorties en temps A, B et D sont ajustées pour construire l'impulsion de faisceau. La durée AB correspond à la durée pendant laquelle la tension est appliquée au photo-injecteur. AD forme un cycle de mesure. La sortie T0 du DG535, marquant le début de chaque cycle est utilisée pour remettre à zéro l'échelle de comptage permettant de déterminer le temps.

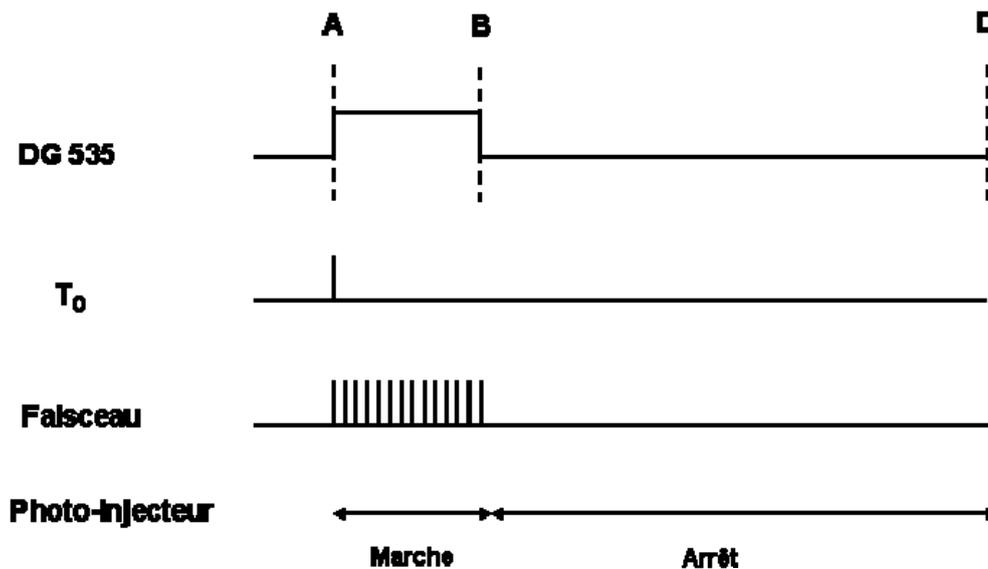


Figure 3.11 - Ajustement des paramètres du générateur.

3.5.2 Acquisition et électronique

Le schéma électronique simplifié est présenté sur la figure 3.12. Chacun des douze compteurs ^3He est connecté à un préamplificateur de charge (DEXTRAY ACHNP97) qui amplifie et met en forme les signaux de sortie de ces compteurs. Ce préamplificateur est à la fois un préamplificateur de charge, un amplificateur, un discriminateur et un filtre. Il a une sortie analogique et une sortie logique. Les douze sorties logiques sont chaînées de manière à avoir un seul signal qui servira de « déclencheur » de l'acquisition. Nous construisons un signal « déclencheur inhibé » à partir du signal déclencheur en mettant en veto les temps d'occupation dus au codage et à l'acquisition données respectivement par la « Gate Generator » et par le C236 respectivement. Le ENDM 'END Marker' marque la fin de la « gate ». C'est à partir du rapport déclencheur inhibé/déclencheur, mesuré en fonction du temps, que nous allons corriger les spectres temporels pour tenir compte du temps mort de l'acquisition. Sur la figure 3.13, le chronogramme des signaux est présenté. Trois standards électroniques sont utilisés : NIM, VME et CAMAC. Le logiciel d'acquisition utilisé est « OASIS » développé à l'IPN d'Orsay. Il communique avec le châssis VME qui est aussi relié au châssis CAMAC.

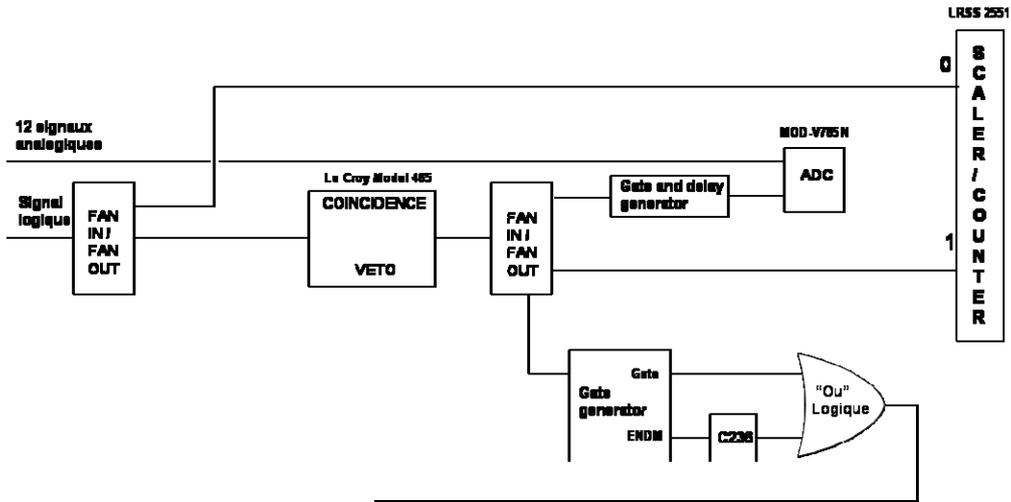


Figure 3.12 – Schéma de l'électronique.

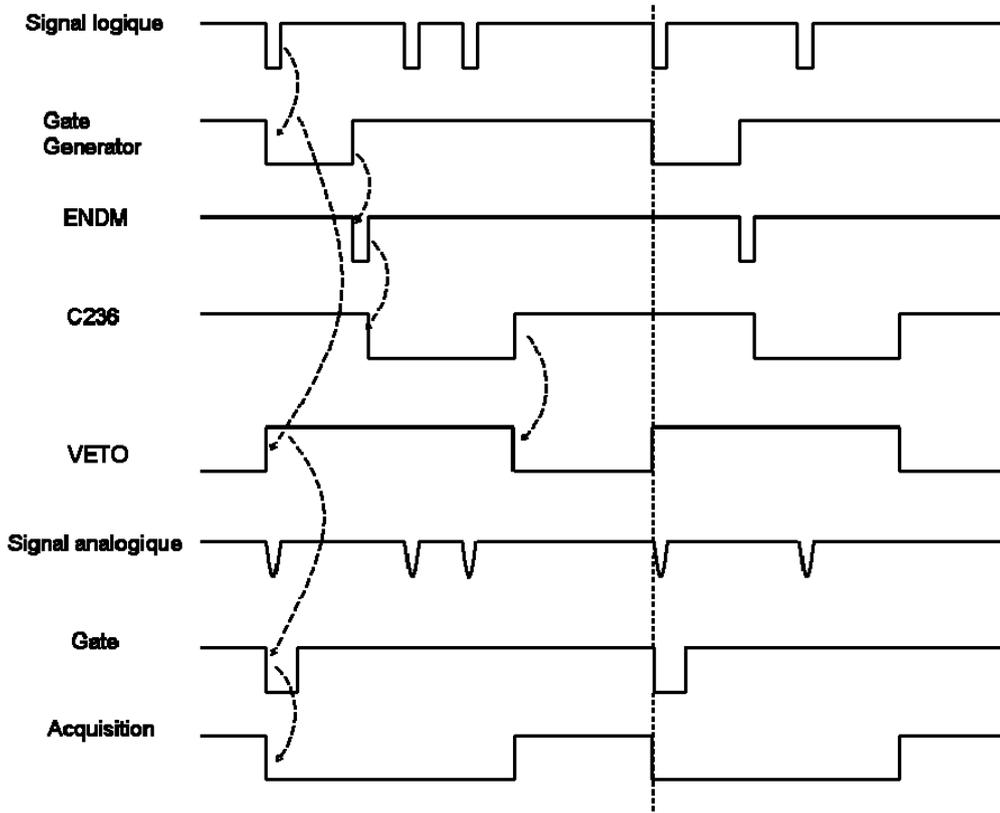


Figure 3.13 – Chronogramme de l'acquisition. Les flèches indiquent la dépendance des signaux.

Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons présenté tous les outils expérimentaux utilisés pendant la thèse en décrivant l'accélérateur d'électrons ELSA, l'électronique et l'acquisition en passant par les cibles d'actinides et le détecteur de neutrons retardés. Ce dernier a été optimisé spécialement pour les expériences sur l' ^{235}U et le ^{237}Np pour lesquelles de faibles quantités d'actinides ont pu être utilisées. Le détecteur optimisé est un anneau de polyéthylène contenant 12 compteurs ^3He , de rayon intérieur de 6 cm et extérieur de 16 cm. Suite à cette optimisation, l'efficacité de détection est maintenant 23,0% à comparer au 0,6% du détecteur utilisé lors des expériences précédentes. Nous allons utiliser ce détecteur pour la suite de notre campagne expérimentale.

Chapitre 4 Mesures des rendements absolus de neutrons retardés en fonction de l'énergie électron pour le ^{232}Th , l' $^{235,238}\text{U}$ et le ^{237}Np

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, les mesures des paramètres de neutrons retardés issus de la photofission des actinides sont peu nombreuses. Ce constat est valable pour le rendement absolu ainsi que pour les contributions relatives et les périodes des six groupes de neutrons retardés. En ce qui concerne les rendements absolus, aucune dépendance en énergie n'a été clairement observée lors des expériences réalisées dans les années 60-70 contrairement à ce qui a été vu en fission neutronique. Une expérience en novembre 2006 a donc été dédiée spécialement à l'étude de l'évolution des rendements absolus en fonction de l'énergie électron. Pour ce faire, des échantillons de thorium-232 (^{232}Th), d'uranium-235 (^{235}U) et d'uranium-238 (^{238}U), décrits au chapitre précédent, ont été irradiés par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale comprise entre 12,0 et 18,5 MeV. D'autres mesures de rendements absolus ont aussi été effectuées lors des mesures des spectres d'émission de neutrons retardés de l' ^{238}U [Gia05], du ^{232}Th [Van06], de l' ^{235}U et du neptunium-237 (^{237}Np). Ces résultats seront aussi présentés.

Après avoir rappelé la stratégie des mesures et détaillé la méthode de calcul du rendement absolu, les résultats seront discutés et comparés aux mesures antérieures et aux résultats de la modélisation.

4.1 Stratégie de mesures de rendements absolus de neutrons retardés

Nous avons vu à la section 1.3 que deux méthodes de mesures peuvent être appliquées pour évaluer le rendement absolu de neutrons retardés : après une irradiation longue (temps d'irradiations supérieur au temps de demi-vie des précurseurs), ou à la suite d'une irradiation courte (temps d'irradiations inférieur au temps de demi-vie des précurseurs). Nous avons retenu la deuxième méthode parce qu'elle est plus précise. Par ailleurs, cette méthode demande un temps de mesure plus petit que celle de l'irradiation longue. Elle est formée d'une série de cycles de 140 μs d'irradiations et 40 s de décroissance.

Dans le cas de l'irradiation courte, le rendement absolu de neutrons retardés est égal à l'intégrale du nombre de neutrons retardés émis divisé par le temps d'irradiation. Nous rappelons ici la formule qui permet de le calculer :

$$\nu_d = \frac{1}{T_{irr}} \int_0^{\infty} Y_{dn}(t) dt$$

T_{irr} temps d'irradiation en seconde,

$Y_{dn}(t)$ nombre de neutrons retardés par canal et par fission.

Dans le cadre de nos expériences, cette formule s'écrit sous la forme suivante :

$$v_d = \frac{1}{N_{fiss}} \left\{ \frac{1}{\varepsilon \times Chtot} \left[\sum_{spectre} N_{He-3}(t) - B(t) \right] - \sum_{i=1}^n v_{di} N_{fiss_i} \right\} \quad (4.1)$$

$N_{He-3}(t)$	nombre de neutrons détectés à un instant t dans le détecteur
$B(t)$	bruit de fond (coups) à un instant t dans le détecteur
ε	efficacité du détecteur
$Chtot$	le nombre total d'électrons pendant les irradiations
N_{fiss}	nombre de fissions induites par électron
v_{di}	nombre total de neutrons retardés par fission pour la réaction i produite éventuellement dans la cible d'actinide, n étant le nombre de réactions de fission induite dans la cible d'actinide autre que la photofission de l'actinide étudié
N_{fissi}	nombre de fissions produites par la réaction i dans la cible par électron

Dans ce qui suit, nous allons décrire la démarche suivie pour l'analyse des données de cette expérience. Les différents termes (4.1) seront détaillés.

4.2 Spectre temporel

Dans ce paragraphe, les mesures de rendements absolus de neutrons retardés effectuées lors de l'expérience de novembre 2006 sont présentées puis le traitement de ces données est détaillé.

4.2.1 Mesures

Les cibles irradiées sont placées au centre du détecteur de neutrons c'est-à-dire à 234 cm du collimateur. Une série d'irradiation avec une macro impulsion de 140 μ s et une décroissance de 40 s est effectuée pour chaque énergie. Le tableau 4.1 regroupe toute l'information sur l'expérience de 2006 : les cibles, les énergies des électrons et le nombre de cycles effectués. Nous avons pu effectuer les mesures pour le ^{232}Th et l' ^{238}U pour douze énergies différentes. En revanche, la masse disponible d' ^{235}U et la faible émission de neutrons retardés nous ont contraints à ne réaliser les mesures que pour cinq énergies différentes.

Energie (MeV)	Nombre de cycles		
	²³² Th	²³⁵ U	²³⁸ U
12	86	75	8
13	37	-	17
13,5	-	123	-
14	29	-	17
15	21	28	74
15,5	12	-	26
16	14	-	9
16,5	14	58	17
17	17	-	9
17,5	16	-	7
18	16	-	6
18,5	17	99	18

Tableau 4.1 – Nombre de cycles effectués pour les mesures de rendements absolus de neutrons retardés du ²³²Th, de l'²³⁵U et de l'²³⁸U en fonction de l'énergie électron.

Par ailleurs, seule la cible d'²³⁵U a été placée dans une boîte de cadmium afin de réduire le bruit de fond provenant de la fission d'²³⁵U par les neutrons ralentis dans le polyéthylène. La figure 4.1 présente un exemple de spectre obtenu lors de cette expérience. Il s'agit du spectre brut de l'irradiation de l'²³⁸U à 15 MeV.

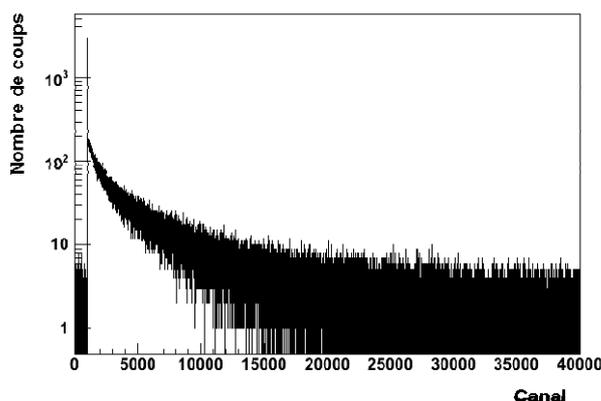


Figure 4.1 – Spectre brut pour l'²³⁸U pour une énergie électron de 15 MeV. Un canal vaut 1 ms.

L'acquisition des données a été faite aussi lors de la présence du faisceau comme nous pouvons le remarquer sur cette figure. La partie décroissante du spectre représente la décroissance des produits de fission de l'²³⁸U par émission de neutrons retardés. Evidemment, seule la partie décroissante sera utilisée pour déterminer le rendement absolu de neutrons retardés.

4.2.2 Traitement des données

L'intégrale de la partie décroissante des spectres temporels est un terme essentiel pour le calcul des rendements absolus de neutrons retardés. Elle contient l'information sur le nombre de neutrons retardés émis après la fission. Avant d'utiliser cette intégrale, les spectres temporels doivent subir un traitement spécifique. Ce

traitement est réalisé à l'aide du logiciel ROOT [Roo07]. Certains arrêts du faisceau pendant l'irradiation ou parfois même une absence complète de faisceau pendant un cycle ont été observés. Un tri de ces cycles a donc été fait pour garder uniquement les cycles complets. Un autre type de traitement a été effectué. Celui-ci concerne la coupure du bruit de fond provenant de l'électronique et des gammas. Ce bruit de fond est visible à basse énergie sur le spectre en amplitude des signaux du compteur He-3 présenté sur la figure 4.2. Il sera éliminé en imposant un seuil à l'endroit indiqué par la flèche.

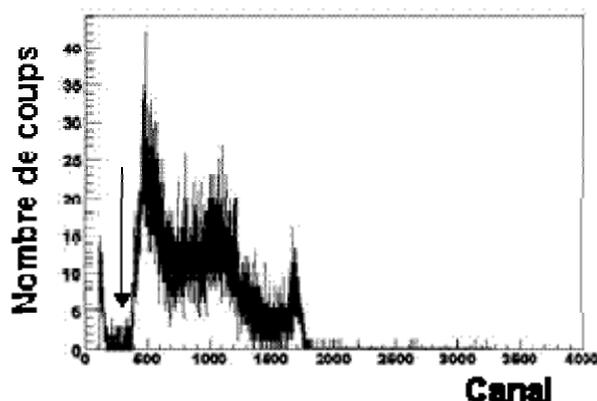


Figure 4.2 – Spectres en amplitude des signaux avant la coupure de bruit de fond. La flèche indique le seuil imposé lors de l'analyse.

L'allure du spectre ressemble à ce qu'on obtient avec des faisceaux monoénergétiques de neutrons rapides où un pic épithermique, un continuum et un pic de dépôt de l'énergie totale sont observés. Cependant, dans le cas présent les neutrons sont ralentis dans le CH₂ et les composantes du spectre ne peuvent être interprétées de la même manière. La section efficace ${}^3\text{He}(n, p)\text{T}$ étant cinq mille fois plus élevées pour les neutrons thermiques que pour les neutrons rapides, les proportions observées sur la figure 4.2 des différentes composantes ne semblent pas réalistes. Ce comportement est probablement dû aux caractéristiques du préamplificateur utilisé, ceci étant confirmé par l'observation d'un spectre différent lors de l'utilisation d'un autre type de préamplificateur. Cependant, ceci ne remet pas en cause les résultats présentés dans ce document. L'intégrale du nombre de coups détectés est validée par les simulations présentées au paragraphe 4.5.

Les spectres temporels tels que celui illustré à la figure 4.1 doivent aussi être corrigés pour tenir compte du temps mort provenant de l'acquisition qui dure en moyenne 150 μs par évènement. Ce phénomène empêche l'acquisition des autres évènements arrivants durant cette période. Cette correction a été effectuée en multipliant le spectre par le rapport du nombre de coups total dans le détecteur sur le nombre de coups qui a pu être acquis à cet instant. Cette correction est réalisée canal par canal. La figure 4.3 présente le spectre de ${}^{238}\text{U}$ à 15 MeV avant (courbe noire) et après (courbe grise) cette phase du traitement. Cette correction, pour une cible telle que ${}^{238}\text{U}$ (400 g) et une intensité de faisceau de 1,6 μA est de l'ordre de 60% juste après la coupure du faisceau et descend rapidement puisqu'elle n'est plus que de 10% à 3 s et 1% à 20 s.

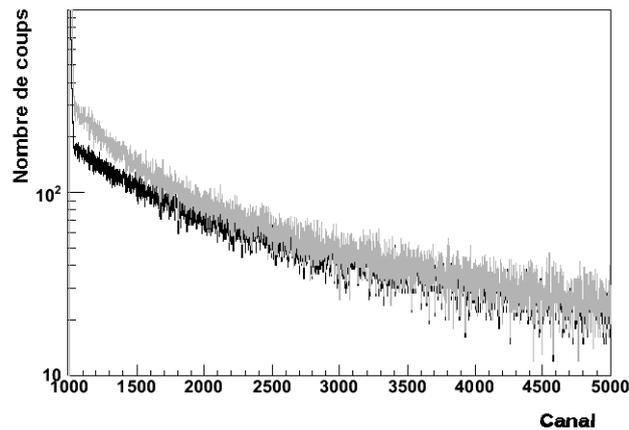


Figure 4.3 – Spectre temporel pour l' ^{238}U à 15 MeV avant (courbe noire) et après (grise) correction de temps mort.

Un autre traitement s'est avéré nécessaire pour les spectres obtenus lors de l'expérience de juillet 2007 uniquement : le recalage des cycles par rapport au début du faisceau. Le décalage provient de la désynchronisation du faisceau d'électrons. Ce traitement est fait en recalant tous les cycles par rapport à l'instant initial du début du faisceau d'électrons. Une intégrale de la partie décroissante sans recalage des cycles utilisée pour déterminer un rendement absolu aurait certainement fourni une valeur fautive parce que la partie décroissante qui permet de calculer le v_d aurait été sous-estimée ou surestimée selon le sens du décalage. Ce traitement nous permet donc de corriger l'intégrale de la partie décroissante et de fournir une bonne valeur de v_d .

4.3 Mesure de bruit de fond

Pendant notre expérience de neutrons retardés issus de la photofission des actinides il existe, comme dans toutes les mesures, un signal parasite qui vient s'ajouter à celui qui nous intéresse. Ce signal est appelé bruit de fond. Il est nécessaire de connaître sa valeur afin de corriger nos données de ce signal parasite. Nous avons trois types de bruit de fond neutronique. Le premier est le bruit de fond passif c'est-à-dire mesuré en l'absence du faisceau d'électrons et de la cible. Il provient de l'environnement de la salle d'expériences. Un second bruit de fond passif est celui engendré par la cible. En effet certains actinides sont émetteurs de gammas intenses ce qui peut engendrer des signaux dans les compteurs hélium-3. Le troisième type de bruit est le bruit actif c'est-à-dire en présence du faisceau d'électrons, mais sans la cible. Il est issu de l'interaction des photons de Bremsstrahlung avec les éléments de la salle d'expériences comme la cible de conversion en tantale et le collimateur en plomb. Ce signal a comme source par exemple la réaction (γ, n) sur ces éléments. Les produits de ces réactions seront essentiellement détectés pendant le faisceau et ne devraient donc pas être importants dans notre cas où le signal intéressant est enregistré après le faisceau. Le bruit peut aussi provenir de l'air pour des électrons d'énergie supérieure à 16,0 MeV via la réaction $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$. L'azote-17 est un émetteur ($\beta^- - n$) ayant une période de 4 s. Cependant, cette contribution n'a pas été vue dans nos mesures antérieures de bruit de fond à 18 MeV.

Lors de nos expériences, la mesure du bruit de fond passif est réalisée sans faisceau et sans échantillon d'actinides (sauf dans le cas où la cible doit être prise en

compte). Celle du bruit de fond actif est faite en effectuant une série d'irradiations et de décroissance sans échantillon d'actinide. La durée de l'irradiation et de la décroissance est équivalente à celle utilisée pour la mesure de neutrons retardés. La figure 4.4 représente un exemple de spectre de bruit de fond actif pour une énergie de 15 MeV.

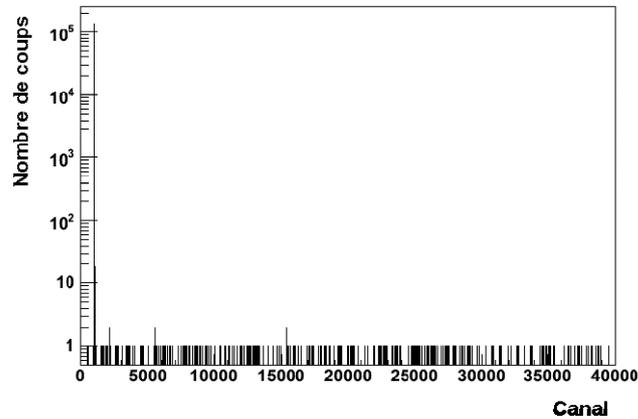


Figure 4.4 – Spectre de bruit de fond actif à 15 MeV.

Plusieurs mesures de bruit ont été effectuées pendant l'expérience. Leurs variations sont illustrées sur la figure 4.5.

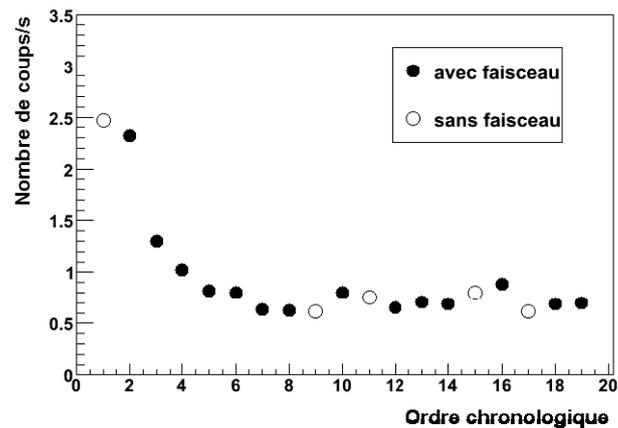


Figure 4.5 – Variation du bruit de fond passif (cercles ouverts) de l'environnement et actif (cercles fermés) pendant l'expérience. Les cinq premières mesures de bruit correspondent à celles effectuées durant les deux premiers jours de l'expérience. Le reste des mesures a été réalisé pendant la deuxième semaine de l'expérience.

Cette figure présente le nombre de coups par seconde dans le détecteur pour les deux bruits de fond par ordre chronologique. Nous remarquons tout d'abord qu'au début de l'expérience le bruit était important puis il a diminué pour garder une valeur moyenne avec quelques petites fluctuations. Par ailleurs aucun écart remarquable n'est observé entre les deux types de bruit de fond. Ceci peut s'expliquer par le fait que tous les neutrons prompts produits par les réactions photonucléaires suite à l'irradiation de la salle auront réagi dans les premières millisecondes suivant l'irradiation. En conséquence, ils n'influencent donc pas nos mesures de neutrons retardés. En tenant compte de ces deux constats, le bruit de fond le plus proche de la mesure physique qu'il soit passif ou actif est donc utilisé pour le calcul des rendements absolus.

Le bruit de fond provenant de la cible elle-même a été pris en compte pour les mesures sur le ^{237}Np . Contrairement aux autres cibles utilisées ici, la cible de neptunium se présente sous la forme d'un oxyde ce qui peut avoir un impact sur le bruit de fond. En effet, la radioactivité alpha de notre cible de ^{237}Np est de 1,3 GBq. Ces alphas, d'énergie moyenne de 4,72 MeV, vont induire des réactions $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$ sur l'oxygène-18 contenu dans la cible, le seuil de cette réaction étant de 0,86 MeV. Les neutrons émis par cette réaction vont être détectés dans les compteurs. La mesure du bruit a fourni une valeur de $(3,1 \pm 0,2)$ coups/s. Cette valeur est un facteur 10 en dessous de la valeur estimée grossièrement pour le nombre de neutrons détectés issus de la réaction $^{18}\text{O}(\alpha, n)$ en utilisant l'énergie moyenne d'alpha. Il faudrait procéder à un calcul exact avec le spectre en énergie des alphas et donc des sections efficaces différentes et des parcours différents.

4.4 Contribution d'autres fissions à l'émission de neutrons retardés

Outre la photofission de l'actinide en question, d'autres réactions de fission ont lieu dans la cible. Alors, elles participent à leur tour à l'émission de neutrons retardés. Nos données doivent donc être corrigées des contributions de ces fissions. Ces contributions sont différentes d'une cible à l'autre. Par exemple, pour les échantillons du ^{232}Th , du ^{237}Np et de ^{238}U , la fission induite par neutrons est la seule autre contribution à l'émission de neutrons retardés. Les neutrons induisant la fission proviennent des réactions photonucléaires produites dans l'échantillon d'actinide, mais surtout de celles produites dans la cible de conversion et le collimateur. La contribution de toutes ces réactions est évaluée à l'aide de MCNPX à 7,43 % du nombre total de fissions induites dans la cible d' ^{238}U pour une énergie électron de 15 MeV (1,70 % pour le ^{232}Th , 3,36 % pour le ^{237}Np) et donc à 11,52 % du nombre total de neutrons retardés émis (2,96 % pour le ^{232}Th , environ 7,51 % pour le ^{237}Np). Le nombre de total de neutrons retardés est calculé en multipliant le nombre de fissions par le rendement de neutrons retardés.

En ce qui concerne la cible d' ^{235}U enrichie à 93 %, la fission induite par neutrons de ^{235}U évaluée à 3,04 % du nombre total de fissions pour une énergie électron de 15 MeV n'est pas la seule réaction contribuant à la production de neutrons retardés. Deux autres réactions de fission participent aussi à l'émission de neutrons retardés : la fission de ^{238}U induite par les photons du Bremsstrahlung et celle induite par les neutrons. En effet, la cible d' ^{235}U contient 7 % de ^{238}U . Le calcul MCNPX évalue la contribution de la réaction $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ à 3,51 % du nombre total de fission et donc à 9,12 % du nombre total de neutrons retardés émis. Quant à la deuxième réaction ($^{238}\text{U}(n, f)$), elle contribue pour 0,02 % au nombre de fission et pour 0,1 % pour le nombre de neutrons retardés. Cette contribution étant négligeable, elle ne sera pas incluse dans l'analyse. Les autres contributions seront prises en compte lors de la détermination du nombre total de neutrons retardés émis par ces actinides.

4.5 Efficacité de détection

L'efficacité du détecteur, comme on l'a décrit à la section 3.4, est calculée à l'aide du code MCNPX pour les différentes cibles ainsi que pour une source de

californium. En effet, nous utilisons une source de californium pour étalonner notre détecteur lors des expériences. La valeur d'efficacité mesurée expérimentalement pour cette source est ensuite utilisée afin de normaliser le calcul MCNPX effectué pour les différentes cibles. L'activité neutron de la source de ^{252}Cf utilisée était de 1891 n/s pendant cette expérience. Cette source a été placée au centre du détecteur à 234 cm du collimateur au même emplacement que les cibles d'actinides. La figure 4.6 montre la variation de l'efficacité du détecteur mesurée avec cette source de californium en fonction des jours de l'expérience.

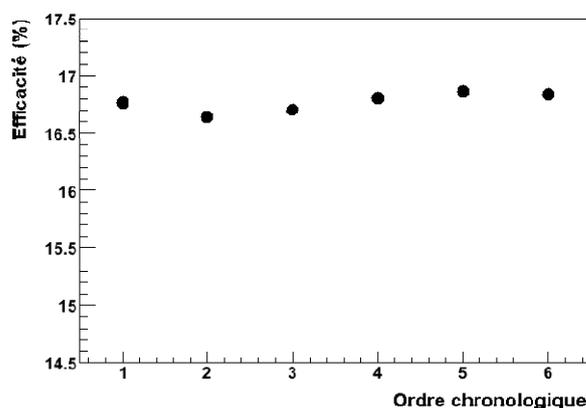


Figure 4.6 – Efficacité du détecteur lors de l'expérience.

Nous constatons que l'efficacité du détecteur varie de 1 % ($\sigma = 1\%$). Sa valeur moyenne est de $(16,77 \pm 0,13) \%$. Cette efficacité est comparable à celle calculée avec MCNPX qui est de 17,57 %. L'écart entre les efficacités mesurée et calculée est de 4,55 %. Il peut être expliqué soit par l'incertitude sur l'activité de la source soit par la méconnaissance de l'emplacement de la source de Cf dans son tube cylindrique. D'autres incertitudes concernant la densité du polyéthylène, la pression des compteurs, le positionnement, etc. peuvent aussi expliquer l'écart entre efficacités calculée et mesurée. Cet écart sera reporté sur l'efficacité calculée avec MCNPX pour les différentes cibles présentées dans le chapitre 3. Le même traitement pour l'efficacité a été effectué pour les autres expériences. Le tableau 4.2 regroupe les valeurs corrigées de l'efficacité qui seront utilisées pour l'évaluation des rendements absolus.

Expérience	Efficacité corrigée de détection			
	^{232}Th	^{235}U	^{237}Np	^{238}U
juillet 2006	$0,220 \pm 0,016$	$0,201 \pm 0,008$	-	$0,218 \pm 0,016$
novembre 2006	$0,218 \pm 0,016$	$0,199 \pm 0,008$	-	$0,216 \pm 0,015$
juillet 2007	$0,203 \pm 0,015$	$0,184 \pm 0,007$	$0,197 \pm 0,012$	$0,201 \pm 0,014$

Tableau 4.2 – Efficacités de détection des neutrons retardés corrigées de l'écart trouvé entre le calcul et la mesure de l'efficacité du détecteur pour une source de californium-252.

4.6 Calcul du nombre de fissions

Le nombre total de photofissions produites durant l'irradiation est obtenu en multipliant le nombre de photofission par électron évalué avec MCNPX par l'intensité d'électrons mesurée. Afin de valider MCNPX en ce qui concerne l'intensité du flux

et la distribution en énergie des photons, nous avons effectué des irradiations d'échantillons de cuivre et comparé les résultats des spectroscopies gamma et les mesures bêta+ à ceux obtenus avec le code de calcul. Des cibles de cuivre naturel de 3 mm et de 5 mm d'épaisseur ont été irradiées pendant 2 minutes et 20 minutes par un faisceau de Bremsstrahlung de 15 MeV d'énergie maximale. Ces rayonnements induisent des réactions (γ, n) sur le cuivre-63 et le cuivre-65, les deux isotopes du cuivre naturel. Les résultats des activités du cuivre-62 et du cuivre-64 sont comparés aux activités calculées par MCNPX dans les tableaux 4.3 et 4.4.

Isotope	Activité (Bq)			Comparaison	
	MCNPX	Mesure β^+	Spectrométrie γ	β^+/γ	MCNPX/ γ
Cu-62	$5,06 \cdot 10^4$	$3,84 \cdot 10^4$	$5,10 \cdot 10^4$	0,75	0,99
Cu-64	$3,28 \cdot 10^2$	$4,21 \cdot 10^2$	$6,00 \cdot 10^2$	0,70	0,55

Tableau 4.3 – Comparaison des mesures d'activités du cuivre-62 et cuivre-64 avec les simulations MCNPX pour les cibles de cuivre de 3 mm d'épaisseur irradiées pendant 2 minutes.

Isotope	Activité (Bq)			Comparaison	
	MCNPX	Mesure β^+	Spectrométrie γ	β^+/γ	MCNPX/ γ
Cu-62	$4,63 \cdot 10^5$	$4,49 \cdot 10^5$	$4,60 \cdot 10^5$	0,98	1,00
Cu-64	$5,28 \cdot 10^3$	$9,18 \cdot 10^3$	$9,00 \cdot 10^3$	1,02	0,59

Tableau 4.4 – Comparaison des mesures d'activités du cuivre-62 et cuivre-64 avec les simulations MCNPX pour les cibles de cuivre de 5 mm d'épaisseur irradiées pendant 20 minutes.

Nous remarquons tout d'abord que les mesures bêta+ et gamma sont cohérentes pour l'irradiation de 20 minutes. Par contre, elles s'écartent d'environ 30% pour l'irradiation de 2 minutes. La méthode d'analyse des mesures bêta+ est basée sur un ajustement numérique du spectre temporel de décroissance. Cet ajustement inclut une somme de deux exponentielles. Or, pour l'irradiation de 2 minutes, l'ajustement n'a pas permis d'extraire la période du ^{62}Cu qui est de 9,67 min. Le taux de comptage élevé a mené à une correction de temps mort inadéquate ce qui explique la difficulté d'extraire la durée de vie du ^{62}Cu . En ce qui concerne le ^{64}Cu , les temps d'irradiation et de comptage faibles n'étaient pas suffisants pour extraire son activité.

En ce qui concerne les mesures de spectroscopie gamma, nous observons un bon accord avec la simulation pour le ^{62}Cu et les deux durées d'irradiation. Par contre, cet accord n'est pas observé dans le cas du ^{64}Cu . Notons que d'autres groupes utilisent le cuivre pour effectuer leurs normalisations, mais à notre connaissance aucun n'utilise l'isotope 64. Nous réaliserons prochainement une mesure d'activation avec des neutrons de 15 MeV auprès du 4MV du CEA-DIF. Le faisceau étant monoénergétique et les sections efficaces de la réaction ($n,2n$) sur les deux isotopes de cuivre étant bien connues, cette expérience nous permettra de valider notre méthode expérimentale.

L'accord obtenu pour le cuivre-62 nous conforte dans l'utilisation de MCNPX pour le calcul du nombre de fissions. D'autre part la qualité des données concernant les distributions de sections efficaces de photofission en fonction de l'énergie ainsi que l'accord des évaluations avec ces données viennent aussi renforcer notre confiance

dans MCNPX. En effet les bibliothèques que l'on utilise dans le code pour les sections efficaces de fission ont été construites à partir d'évaluations reconnues. Nous utiliserons donc le nombre de fissions calculé avec MCNPX, N_{fiss} , qui sera normalisé à l'intensité du faisceau mesurée pendant l'irradiation afin d'obtenir le nombre total de fissions. La simulation MCNPX intègre évidemment toute la géométrie d'ELSA et des cibles. L'évolution du nombre total de fissions de la cible de 400 g d' ^{238}U en fonction de l'énergie électron est illustrée à titre d'exemple sur la figure 4.7.

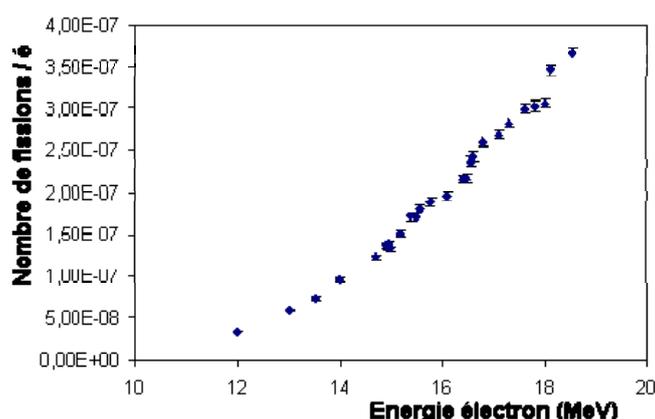


Figure 4.7 – Nombre de fissions par électron incident en fonction de l'énergie électron.

4.7 Rendement absolu : Discussion des résultats et comparaison avec le modèle

Une fois tous les termes de l'équation 4.1 définis, le rendement absolu de neutrons retardés est estimé pour toutes les mesures effectuées. Les valeurs de tous les termes de l'équation 4.1 et du rendement absolu associé sont regroupées dans quatre tableaux en Annexe C, un tableau par actinide. Les paragraphes ci-dessous sont consacrés à la discussion des résultats. Les barres d'erreurs sur nos mesures tiennent compte des erreurs statistiques sur le contenu des spectres et sur les nombres de fissions et des erreurs systématiques sur la mesure de l'efficacité et de l'intensité du faisceau d'électrons. Ayant une bonne statistique pendant l'expérience et à la suite des calculs MCNPX, la partie de l'incertitude correspondant aux mesures et aux simulations est négligeable devant l'incertitude systématique. Cette dernière est évaluée à 10% pour la mesure de l'intensité et à environ 7 % pour la détermination de la valeur de l'efficacité. Nos résultats seront aussi comparés aux mesures antérieures présentées dans le chapitre 2 et à la modélisation.

4.7.1 Thorium-232

Nous commençons notre discussion avec les résultats du ^{232}Th présentés sur la figure 4.8 en fonction de l'énergie électron. Les résultats trouvés dans la littérature sont aussi présentés.

sommer les signaux logiques des compteurs ^3He . Aucune correction des données ne peut donc être faite pour prendre en compte tous ces effets. Ceci explique probablement les écarts entre les mesures de 2005 et novembre 2006. De ce fait, nous ne retenons pas ces valeurs pour la comparaison des résultats expérimentaux à ceux de la modélisation.

Les mesures de juillet 2006 (carrés gris) ont été réalisées pour une énergie électron de 15 et 18 MeV. Le rendement absolu à 15 MeV est en accord avec celui déterminé en novembre 2006 tandis que celui à 18 MeV ne l'est pas. L'écart observé est de 16%.

Enfin, en juillet 2007 (triangles gris), nous avons réalisé à nouveau les mesures à 16,5 et à 18 MeV. La mesure à 18,5 MeV n'a pas pu être réalisée faute de temps de mesure disponible. Nous avons effectué ces mesures avec une intensité de faisceau d'électrons inférieure à celle des expériences précédentes afin de confirmer la cause de l'écart observé en 2006. Les résultats ne sont pas concluants. La valeur à 16,5 MeV est élevée mais reste cohérente avec la mesure de novembre 2006 à l'intérieur des barres d'erreur. La mesure à 18 MeV est en accord avec celle de juillet 2006 et donc en désaccord avec celle de novembre 2006. Cependant, en plus des neutrons retardés, les gammas retardés étaient aussi mesurés par le même système d'acquisition. Il est possible que le taux de comptage global ait été trop élevé et donc le temps mort mal corrigé. Celui-ci peut expliquer les valeurs obtenues pour ces deux rendements.

En conclusion de cette discussion sur les résultats du ^{232}Th , nous retenons les mesures de v_d de juillet 2006 et toutes les mesures de novembre 2006 sauf celles à 16,5 MeV et les mesures de 2007 pour les comparer à la modélisation. La même sélection de mesure sera faite pour les autres actinides étudiés. En effet, lors de chaque expérience, une fois que le faisceau est réglé à une énergie donnée, les mesures de v_d pour les actinides étudiés sont effectuées l'une à la suite de l'autre. En conséquence, les conditions expérimentales des mesures ne changent pas pour les différents actinides.

La deuxième partie de cette discussion porte sur la comparaison de nos résultats à ceux des années 60-70. Les valeurs de v_d mesurées par Moscati (carrés vides) et Caldwell (triangles vides) à 12 MeV sont en accord avec notre valeur de novembre 2006. L'incertitude sur notre valeur est inférieure à celle de Moscati. Par contre, la valeur de Nikotin à 15 MeV présente un écart d'environ 38 % par rapport à la nôtre. Nikotin n'a pas mentionné s'il a corrigé ces données de la fission induite par neutrons du ^{232}Th , mais de toute manière, cette contribution ne participerait qu'à 4% de l'écart. Remarquons finalement que notre valeur à 15 MeV est semblable à celles de Caldwell à plus basse énergie et qu'en plus il n'y a aucune raison physique pour une augmentation telle qu'elle est vue dans la mesure de Nikotin.

Nous nous intéressons maintenant à la comparaison de nos résultats retenus lors de la discussion précédente à ceux de la modélisation. Celle-ci a été effectuée en tenant en compte de toutes les étapes menant à l'émission de neutrons retardés comme nous l'avons déjà mentionné au chapitre 2. Les résultats de la modélisation pour le rendement absolu du ^{232}Th sont comparés sur la figure 4.9 à nos résultats moyennés sur nos différentes mesures jugées fiables.

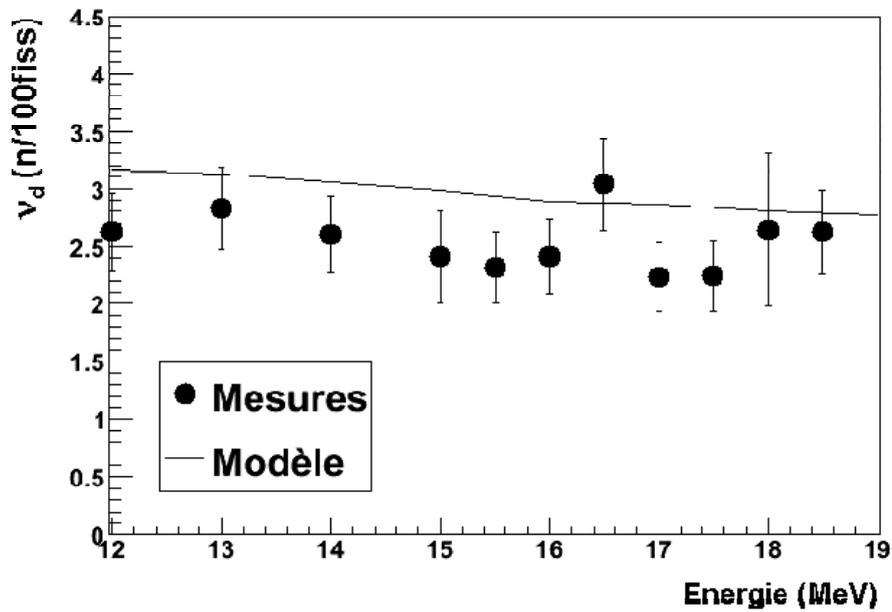


Figure 4.9 – Comparaison des rendements absolus mesurés pour le ^{232}Th à ceux obtenus à l'aide de la modélisation.

La courbe noire représentant le résultat de la modélisation montre une légère diminution en fonction de l'énergie électronique. Elle suit plus ou moins l'allure de l'évolution en énergie des valeurs de v_d mesurées mais en s'écartant de l'ensemble des mesures de 15 %. Cet écart peut provenir de la difficulté d'ABLA à reproduire les distributions de masse des produits de fission. Les distributions isotopiques, dans le cas du ^{232}Th ne peuvent être validées car aucune distribution expérimentale n'existe, à notre connaissance. Remarquons tout de même qu'il est encourageant de voir que sans ajustement de la modélisation, la tendance et les valeurs de rendements absolus en fonction de l'énergie sont plutôt proches des résultats expérimentaux compte tenu de la complexité d'une telle modélisation.

4.7.2 Uranium-238

Le deuxième actinide dont nous discuterons les résultats est l' ^{238}U . Toutes nos mesures ainsi que celles trouvées dans la littérature sont montrées sur la figure 4.10. En ce qui concerne les mesures de novembre 2006 (points noirs), le rendement absolu présente une diminution d'environ 25 % entre 13 et 15 MeV.

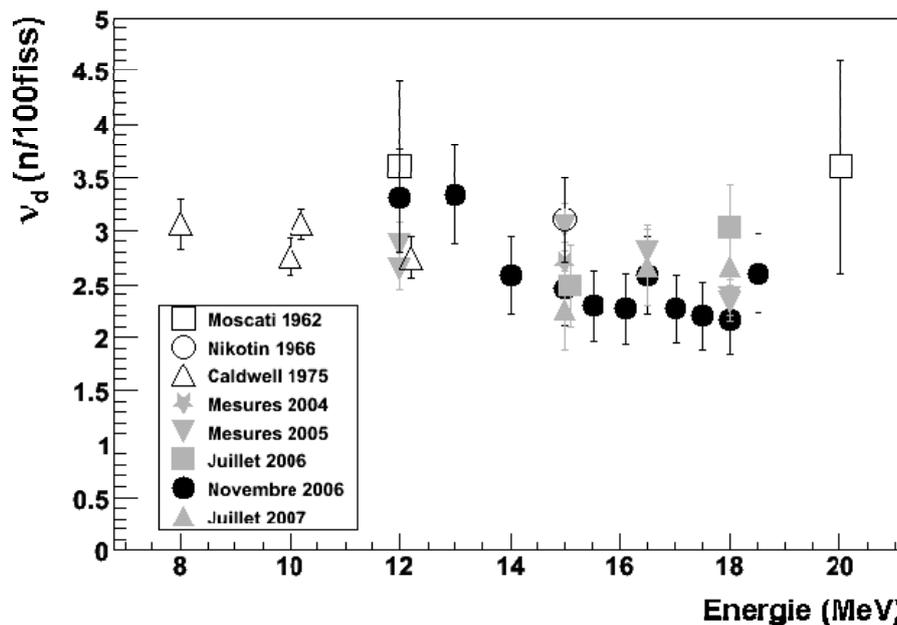


Figure 4.10 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électronique pour l' ^{238}U .

Des rendements absolus de ^{238}U ont aussi été déterminés pendant les expériences de 2004, 2005, juillet 2006 et 2007. La mesure de 2004 qui était notre première mesure de rendement en photofission a été effectuée à 15 MeV. Après soustraction de la contribution de la réaction $^{238}\text{U}(n, f)$, cette mesure s'approche de la valeur de novembre 2006.

Pour les mêmes raisons que celles citées dans la section précédente sur le ^{232}Th , les mesures à 15 MeV de 2004 et toutes les mesures de juillet 2006, de juillet 2007 et novembre 2006 (exceptée celle à 16,5 MeV) seront retenues pour la comparaison avec la modélisation.

Comparons maintenant nos mesures à celles effectuées dans les années 60-70. A 12 MeV, la mesure de Moscati est en accord avec la nôtre et celle de Caldwell est en désaccord. Notons aussi que les mesures de Caldwell présentent une dispersion. A 15 MeV, la mesure de Nikotin est supérieure à la nôtre de 20 %. Cet écart est expliqué en grande partie par la méthode de Nikotin pour déterminer le ν_d , la participation de la fission induite par neutrons (14 %) pourrait ne pas être prise en compte pendant son analyse.

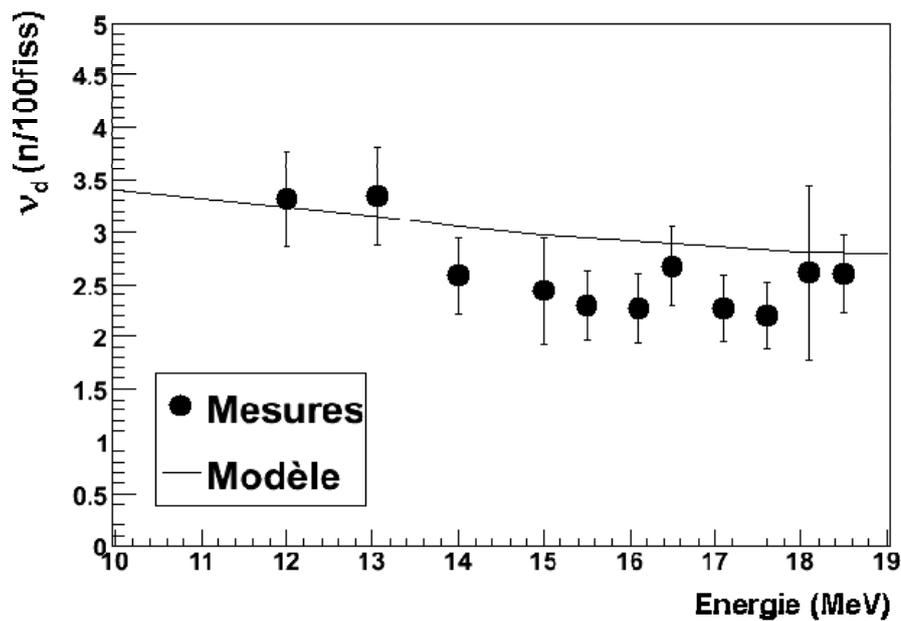


Figure 4.11 – Comparaison des rendements relatifs mesurés pour le ^{238}U à ceux obtenus à l'aide de la modélisation.

Sur la figure 4.11, les résultats expérimentaux (moyennés) et ceux de la modélisation sont présentés. L'allure de l'évolution du rendement absolu de la modélisation (courbe noire) en fonction de l'énergie électronique ressemble à celle du ^{232}Th . Cette fois-ci, le modèle reproduit les mesures à 12 et 13 MeV et le même écart d'environ de 15% est observé entre le modèle et l'expérience à partir de 14 MeV. Contrairement au thorium, des distributions de masse et isotopique des fragments de fission de ^{238}U sont disponibles dans la littérature. Ces mesures ont été comparées aux résultats d'ABLA et montrent un accord raisonnable [Van06]. Cependant, le rapport des sections efficaces de première et seconde chance de fission n'est pas bien reproduit par ABLA. Ce désaccord engendre forcément des conséquences plus importantes pour les rendements absolus que pour les distributions de masse. La poursuite des travaux de modélisation devrait permettre d'améliorer les résultats d'ABLA en ce qui concerne les rendements absolus.

4.7.3 Uranium-235

La figure 4.12 présente l'ensemble de nos résultats et des mesures antérieures pour ^{235}U . Les rendements absolus déterminés pour ^{238}U et présentés ci-dessus sont utilisés pour corriger nos données de ^{235}U , pour une énergie d'électron donnée, de la contribution de la photofission de ^{238}U .

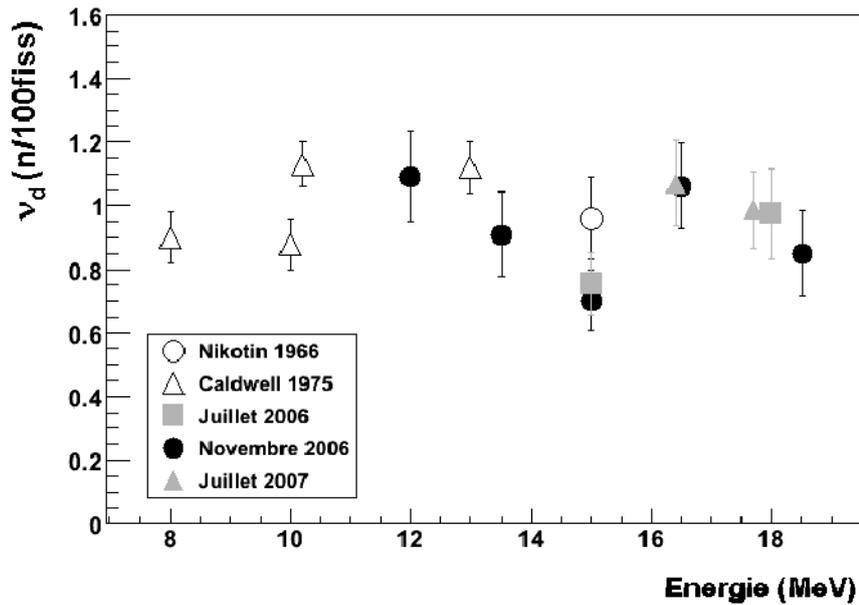


Figure 4.12 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électronique pour l' ^{235}U .

Les mêmes observations que celles faites pour le ^{232}Th et l' ^{238}U s'appliquent ici. Les résultats retenus pour la comparaison avec le modèle sont ceux de juillet 2006 et 2007 et ceux de novembre sans les mesures à 16,5 MeV.

La plupart des rendements absolus mesurés antérieurement à nos mesures ont été obtenus pour énergies différentes des nôtres comme on peut le voir sur la figure 4.12. La seule mesure qui peut-être comparée à nos résultats est celle de Nikotin faite à 15 MeV et la même conclusion que pour le ^{232}Th et l' ^{238}U à 15 MeV est tirée concernant l'écart.

Sur la figure 4.13, nous comparons les mesures de rendements absolus retenues et moyennées à la modélisation. L'écart entre modèle et expérience diminue avec l'énergie électronique. Comme dans le cas de l' ^{238}U , les distributions de masse et isotopiques du modèle ont été comparées aux mesures disponibles dans la littérature et l'accord observé est bon. Nous concluons ici aussi qu'un travail approfondi sur ce modèle doit être envisagé.

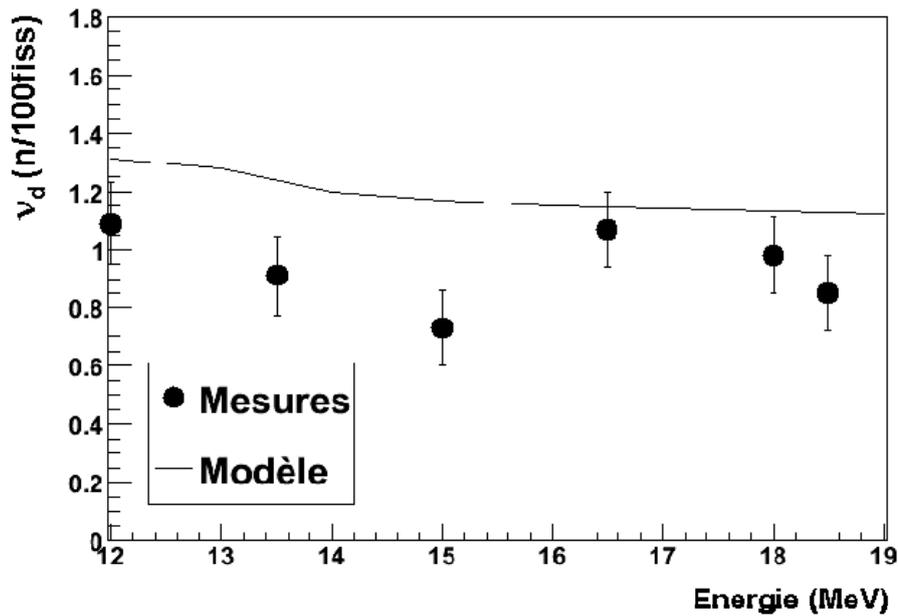


Figure 4.13 – Comparaison des rendements relatifs mesurés pour le ^{235}U à ceux obtenus à l'aide de la modélisation

4.7.4 Neptunium-237

Le dernier actinide récemment étudié par notre groupe est le ^{237}Np . Trois mesures de rendements absolus de neutrons retardés ont été effectuées en juillet 2007, à 15, 16,5 et 18 MeV. A ces énergies, aucun autre résultat n'a été trouvé dans la littérature. La figure 4.14 montre le même comportement observé pour le ^{232}Th , l' ^{238}U et l' ^{235}U lors de cette même expérience de juillet 2007. On retrouve des valeurs élevées de rendements à 16,5 et 18 MeV. Ici encore c'est le taux de comptage cumulé des neutrons et des gammas qui est mis en cause, mais il nous est impossible de le corriger a posteriori (phénomène déjà mentionné pour le ^{232}Th , voir paragraphe 4.7.1).

Les valeurs de Caldwell, bien qu'à des énergies plus basses, sont du même ordre de grandeur que nos valeurs et présentent une certaine dispersion. Nous avons aussi tracé sur la figure 4.14, la courbe de la modélisation qui représente l'évolution du rendement absolu en fonction de l'énergie électron. Dans le cas du ^{237}Np , l'écart observé n'est pas surprenant. En effet, les distributions de masse fournies par ABLA ne sont pas du tout en accord avec les distributions expérimentales observées.

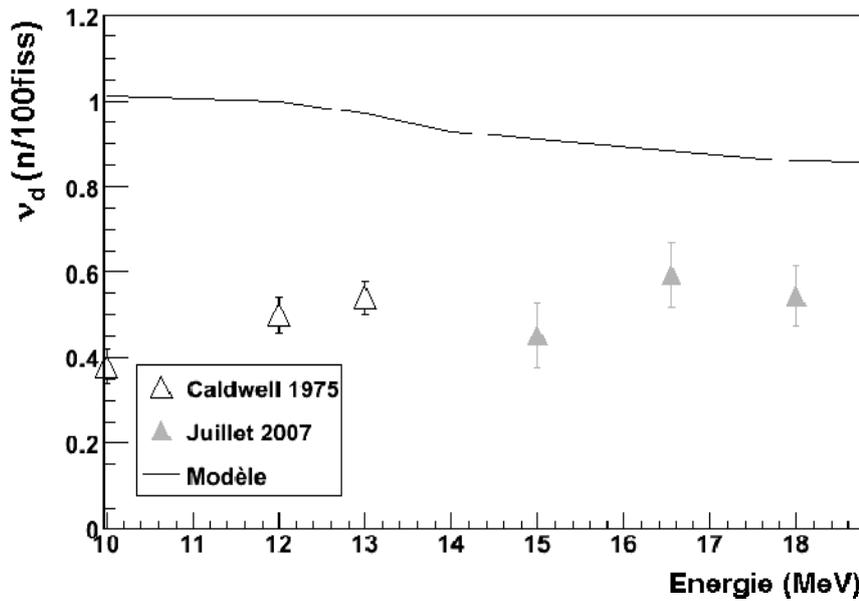


Figure 4.14 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électron pour le ^{237}Np . Les résultats de la modélisation sont aussi présentés.

Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons rappelé la méthode de mesure des rendements absolus de neutrons retardés adoptée lors de nos expériences de photofission. Les différentes étapes de la détermination du rendement ont été détaillées. Une fois, ces étapes accomplies, nous avons déterminé le rendement absolu. Nous avons pu apporter grâce à nos expériences un nombre considérable de nouveaux résultats sur les rendements absolus de différents actinides et ce sur une large gamme en énergie électron. Il s'agit d'ailleurs de la première étude de l'évolution de ces rendements en fonction de l'énergie électron qui s'étend au-delà de 15 MeV.

Une descente du rendement en fonction de l'énergie électron a été observée autour de 12-13 MeV suivie par un plateau. Cette descente a déjà été vue pour la fission induite par neutron et a été attribuée à l'ouverture de la voie de seconde chance de fission. Certaines de nos mesures présentent des écarts importants, soit par rapport aux données des années 70 soit entre elles. Deux pistes sont envisagées pour expliquer ces écarts : des problèmes de mesure de flux ou des taux de comptage élevés entraînant une mauvaise correction du temps mort. Il semble donc nécessaire d'utiliser, lors d'expériences ultérieures, un moniteur relatif de flux de photons afin de s'assurer de la qualité de la mesure de l'intensité faisceau. Il semble aussi important d'utiliser un système d'acquisition supportant les hauts taux de comptage. D'ailleurs des mesures pour le ^{232}Th et l' ^{238}U pour des énergies électron de 16,0 à 18,5 MeV ont été réalisées à nouveau en janvier 2008 et les deux points mentionnés plus haut ont été pris en compte. Ces nouveaux résultats devraient nous permettre de mieux comprendre la provenance des écarts observés lors des expériences antérieures.

Une modélisation complète du processus a été développée en parallèle à cette campagne expérimentale. La comparaison de nos résultats avec ceux de la modélisation est encourageante. La modélisation reproduit l'allure de l'évolution du

rendement absolu en fonction de l'énergie avec un écart qui varie d'un actinide à l'autre. Cet écart est en partie lié au modèle utilisé par le code ABLA pour calculer les distributions en masse et isotopiques. Une étude poussée de ce code est à nouveau prévue, la dernière version utilisée ayant améliorée l'accord entre données expérimentales pour certaines observables et l'ayant détériorée pour d'autres. Les rares données existantes dans la littérature serviront à améliorer les résultats du modèle.

Chapitre 5 Mesures des paramètres de neutrons retardés issus de la photofission de l'uranium-235 et du neptunium-237

Après nous être intéressés aux mesures de rendements absolus de neutrons retardés, nous allons étudier dans ce chapitre les deux autres observables : les contributions relatives et les demi-vies des six groupes de neutrons retardés. La campagne de mesures de notre groupe concernant ces observables a débuté en 2004. Les premiers actinides qui ont été étudiés sont l'uranium-238 (^{238}U) et le thorium-232 (^{232}Th) [Gia05, Van06]. Comme nous l'avons vu au chapitre 2, les résultats sont concluants. Il a été montré que les mesures disponibles dans la littérature doivent être corrigées pour les autres actinides. Cette campagne s'est donc poursuivie par les mesures des paramètres pour l'uranium-235 (^{235}U) et le neptunium-237 (^{237}Np), mesures qui font l'objet de ce chapitre. Pour l' ^{235}U , les spectres temporels ont été mesurés pour des énergies électron de 15 MeV et 18 MeV, cette dernière mesure étant la seule existante à notre connaissance. Les paramètres du ^{237}Np ont, eux, été extraits pour une énergie de 15 MeV. Le ^{237}Np est l'un des actinides pour lequel aucune publication n'a été répertoriée bien que certaines valeurs de paramètres apparaissent dans la base de données EXFOR. Ces résultats sont incomplets et difficiles à interpréter. La première partie de ce chapitre est consacrée à l'expérience sur l' ^{235}U et la deuxième aux mesures sur le ^{237}Np .

5.1 Expérience de l' ^{235}U à 15 MeV et à 18 MeV

Pour la mesure sur l' ^{235}U , la même cible que celle utilisée pour les mesures de rendements absolus de neutrons retardés est placée à 234 cm de la cible de conversion et au centre du détecteur annulaire de neutrons retardés. La méthodologie expérimentale développée pour les mesures auprès d'ELSA et détaillée dans la section 2.4 est la même pour les deux cibles étudiées ici. Trois combinaisons de temps d'irradiation (T_{irr}) et de décroissance ($T_{\text{déc}}$) sont utilisées afin de pouvoir extraire tous les paramètres. Pour la cible d' ^{235}U , les temps choisis à 15 MeV sont : 300s d'irradiations et 300s de décroissance pour l'irradiation longue, 10 s – 100 s pour l'intermédiaire et 100 μs – 40 s pour la courte. A 18 MeV, nous avons gardé les mêmes temps pour les irradiations longue et courte mais nous étions contraints de réduire les temps pour l'irradiation intermédiaire à 2 s ($T_{\text{déc}}=18$ s) faute de temps disponible. Dans ce qui suit, nous présentons les spectres mesurés à 15 et 18 MeV, puis nous allons détailler la méthode d'analyse. Enfin, nous présenterons et discuterons les résultats obtenus.

5.1.1 Spectres temporels

Pour les mesures sur l' ^{235}U à 15 MeV et à 18 MeV, nous avons obtenus six spectres d'émission de neutrons retardés. La figure 5.1 présente un exemple de spectre brut obtenu après 42 cycles de 300 s d'irradiation et 300 s de décroissance. La première partie du spectre est celle des 300 s d'irradiation, tandis que la deuxième

représente la décroissance exponentielle des précurseurs par émission de neutrons retardés. Pendant l'analyse, nous n'utiliserons que la deuxième partie du spectre. Nous regroupons dans le tableau 5.1 les caractéristiques des irradiations effectuées pour les deux énergies.

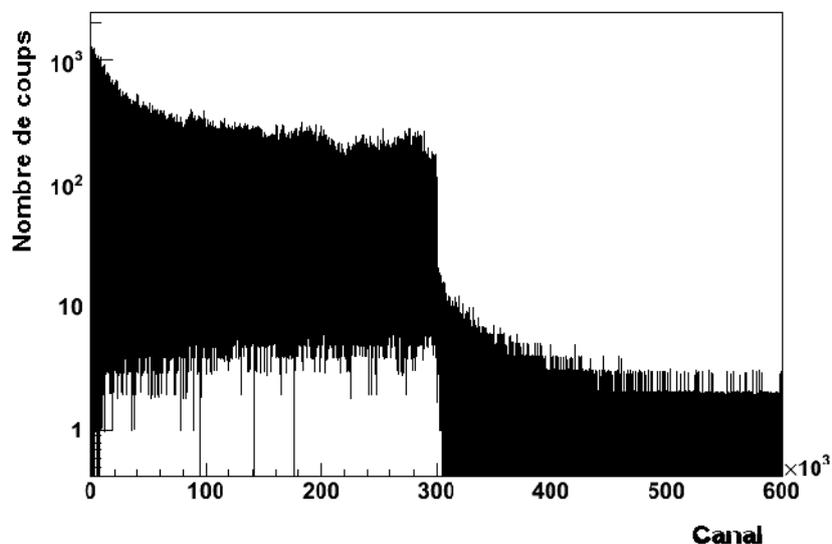


Figure 5.1 – Spectre brut d'émission de neutrons retardés pour une énergie électron de 15 MeV. Un canal vaut 1ms.

Type d'irradiations	15 MeV		18 MeV	
	Durée du cycle	Nombre de cycles	Durée du cycle	Nombre de cycles
longue	300 s – 300 s	42	300 s – 300 s	22
intermédiaire	10 s – 100 s	238	2 s – 18 s	231
courte	100 μ s – 40 s	311	100 μ s – 40 s	165

Tableau 5.1 – Résumé des irradiations à 15 MeV et à 18 MeV.

5.1.2 Mesure du bruit de fond

Deux types de mesures de bruit ont été réalisés pendant l'expérience. Le premier est la mesure de bruit de fond actif pour chaque type d'irradiation et le deuxième est celle réalisée sans le faisceau d'électrons et sans cible (bruit de fond passif). La figure 5.2 représente un exemple de spectre pour le premier type de bruit de fond. Il s'agit d'un bruit de fond mesuré pour une irradiation de 300 s à 15 MeV. Précisons que quel que soit le type d'irradiation, le bruit de fond est constant pendant le temps de mesure après l'arrêt du faisceau.

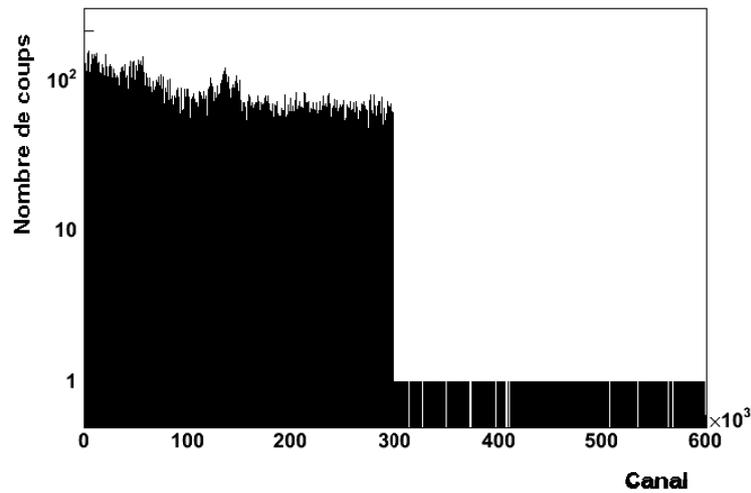


Figure 5.2 – Rendement temporel du bruit de fond pour une irradiation de 300 s et un temps de comptage de 300 s. Le spectre a été obtenu pour une énergie électron de 15 MeV et 3 cycles (1 canal = 1 ms).

Concernant les mesures à 15 MeV, nous avons remarqué que le bruit de fond variait en fonction des jours de l'expérience. Ceci est illustré sur la figure 5.3 où le nombre de neutrons détectés par seconde et par cycle après coupure du faisceau est présenté pour les différentes mesures de bruit de fond et temps d'irradiation. Cette variation de bruit de fond est prise en compte lors de l'analyse en utilisant la mesure de bruit la plus rapprochée de la mesure physique. A 18 MeV, les différentes mesures de bruit sont en accord (voir figure 5.3).

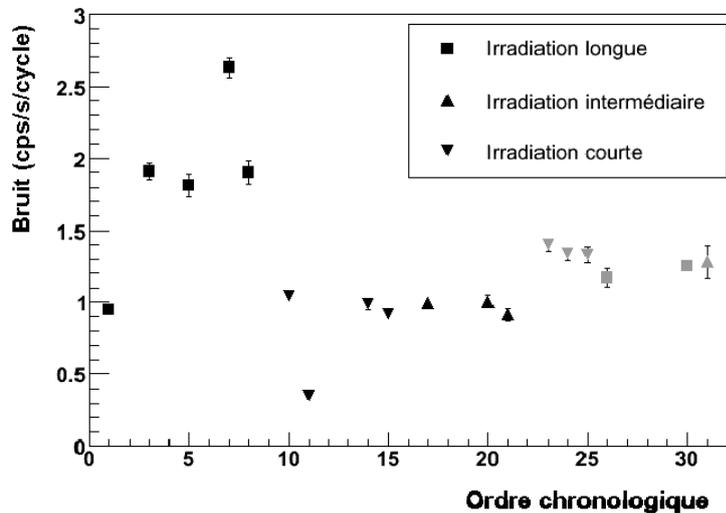


Figure 5.3 – Bruit mesuré pour les trois types d'irradiation pour une énergie électron de 15 MeV (motifs noirs) et de 18 MeV (motifs gris). L'abscisse représente l'ordre chronologique.

Concernant le second type de bruit de fond effectué sans le faisceau d'électrons et sans la cible, sa variation en fonction des jours de l'expérience est illustrée sur la figure 5.4. On remarque que les variations de ce type de bruit sont semblables à celles observées sur la figure 5.3 ce qui est en accord avec nos observations précédentes du chapitre 4 mentionnant que le bruit de fond actif influençait peu nos mesures. Pour l'analyse, nous n'utilisons que le premier type de mesure.

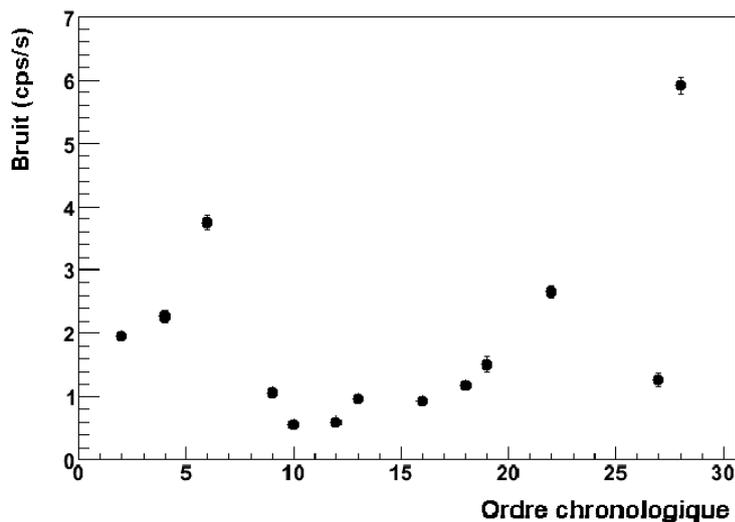


Figure 5.4 – Le bruit mesuré sans faisceau pendant l’expérience. L’abscisse représente l’ordre chronologique.

5.1.3 Analyse des données

5.1.3.1. Traitement des données

Le traitement des données est effectué avec le logiciel d’analyse ROOT. Avant de passer à l’extraction des paramètres des groupes, deux étapes sont nécessaires pour préparer les spectres. La première étape est la même que pour le traitement des spectres permettant de déterminer le rendement absolu de neutrons retardés (cf. 4.2.2). Elle commence par le tri des cycles complets pour chaque série d’irradiations et l’élimination du bruit de fond électronique en appliquant un seuil aux douze signaux analogiques. Cette étape est aussi effectuée sur les spectres de bruit de fond. Puis cycle par cycle les spectres sont corrigés pour prendre en compte le temps mort. La deuxième étape est le regroupement des canaux. En effet, en fin de spectre le nombre de coups est faible, les barres d’erreurs sont donc grandes. On procède à un regroupement des canaux afin de réduire l’incertitude sans trop diminuer le nombre de points. Une valeur maximale de la barre d’erreurs doit être déterminée de manière que le nombre de points à la fin du spectre suite à l’irradiation longue permette l’extraction des paramètres du groupe 1, le groupe prédominant dans cette zone. La valeur choisie pour l’incertitude est de 5%. Cette même incertitude statistique maximale sera imposée pour le regroupement des spectres suite à l’irradiation intermédiaire et à l’irradiation courte. La figure 5.5 montre la partie décroissante du spectre obtenu après une irradiation courte après regroupement des canaux.

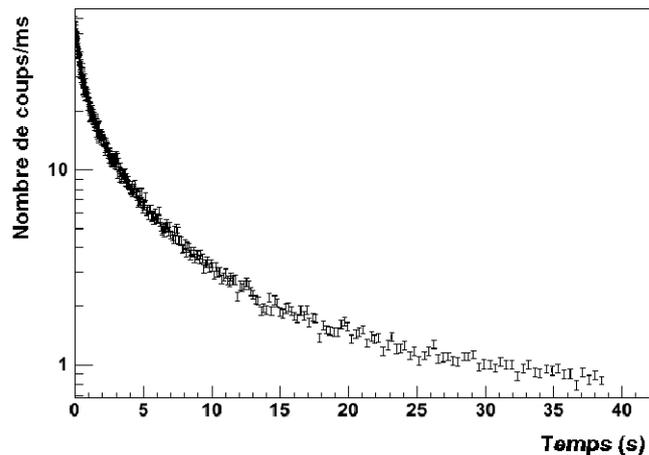


Figure 5.5 – Rendement temporel de neutrons retardés suite à l’irradiation courte (100 μ s) pour une énergie électron de 15 MeV. Les canaux ont été regroupés afin d’obtenir une incertitude statistique de 5 %.

5.1.3.2. Comparaison avec les données de Nikotin

Une mesure des spectres d’émission de neutrons retardés issus de la photofission de ^{235}U pour une énergie électron de 15 MeV a été réalisée par Nikotin [Nik66]. A partir des paramètres des six groupes publiés par Nikotin, et en ajoutant une composante indépendante du temps pour « simuler » notre bruit de fond, nous construisons une courbe que nous ajustons ensuite sur nos données en utilisant une constante globale.

Nous commençons notre comparaison par l’irradiation longue présentée à la figure 5.6 sur la quelle notre courbe expérimentale (points noirs) est comparée à la paramétrisation de Nikotin (courbe rouge). Les contributions des différents groupes (courbes de couleur) sont aussi présentées. L’écart en début de spectre entre nos données et la courbe de Nikotin semble indiquer que les contributions des groupes 5 et 6 sont surestimées. D’ailleurs, la valeur du χ^2/ndf (nombre de degrés de liberté) est grande. Le reste du spectre est assez bien reproduit par la paramétrisation de Nikotin. Nous constatons la même surestimation des contributions des groupes 5 et 6 pour l’irradiation intermédiaire présentée sur la figure 5.7 (la légende des courbes est la même que pour la figure 5.6). Les groupes 1 et 2 semblent bien reproduire la fin du spectre. Par contre, dans la zone du spectre où les groupes 3 et 4 sont dominants (5 - 10 s), nous observons que la courbe expérimentale est sous-estimée par la paramétrisation de Nikotin. Cet écart peut être expliqué par la sous-estimation par Nikotin des contributions du groupe 3 et 4 ou de l’une des deux. Enfin, la figure 5.8 illustrant la dépendance temporelle des neutrons retardés après l’irradiation courte montre une surestimation de nos données par les paramètres de Nikotin pour la zone où les groupes 5 et 6 sont dominants et une sous-estimation de nos données pour le reste du spectre.

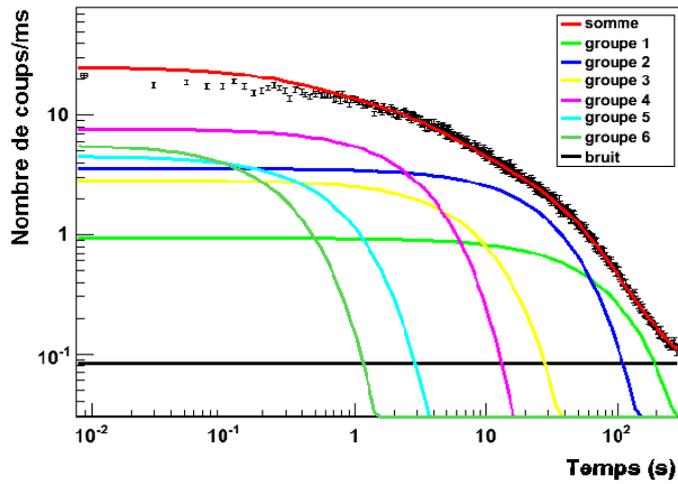


Figure 5.6 – Comparaison du spectre expérimental après l’irradiation de 300 s avec les paramètres de Nikotin ($\chi^2/ndf = 1,86$).

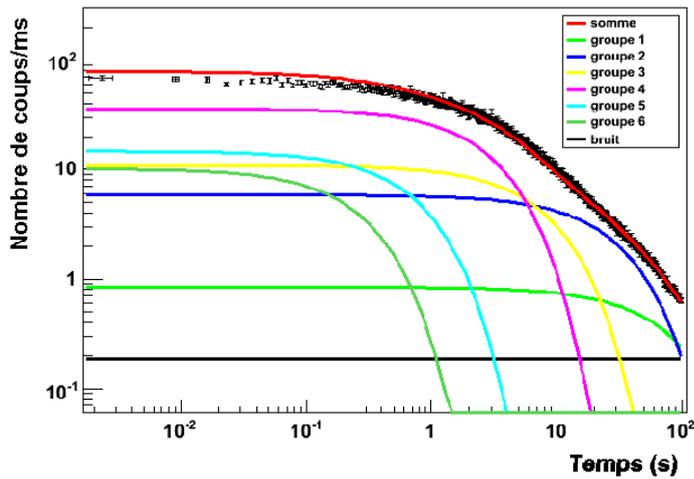


Figure 5.7 – Comparaison du spectre expérimental après l’irradiation de 10 s avec les paramètres de Nikotin ($\chi^2/ndf = 2,23$).

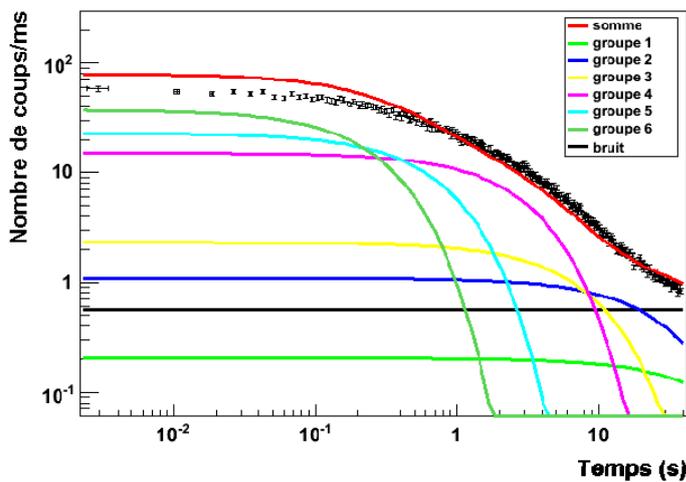


Figure 5.8 – Comparaison du spectre expérimental après l’irradiation de 100 μ s avec les paramètres de Nikotin ($\chi^2/ndf = 10,99$).

De cette comparaison de nos spectres temporels avec les courbes paramétrées de Nikotin, nous déduisons que les contributions des groupes 5 et 6 de Nikotin sont surestimées et celles du groupe 3 et/ou 4 sont sous-estimées.

5.1.3.3. Méthode d'analyse

Nous avons vu au chapitre 1 (cf. 1.2.5) que les spectres d'émission de neutrons retardés peuvent être représentés par une somme de six exponentielles. Pour chaque exponentielle, nous avons deux paramètres à déterminer : a_i - la contribution relative de neutrons retardés de chaque groupe et T_i - la période moyenne de ce groupe. L'analyse consiste à ajuster numériquement les paramètres afin de reproduire nos spectres expérimentaux. L'ajustement est effectué avec la méthode des moindres carrés implantée dans le logiciel ROOT. Lors de l'analyse, la contribution de chaque groupe est corrigée pour obtenir la valeur dans le cas d'une irradiation infinie même si les distributions cumulatives ne sont pas atteintes. Ces corrections sont expliquées au chapitre 2 (cf. 2.4.2). Concernant le bruit, nous avons remarqué qu'il n'était pas constant en fonction des jours de l'expérience pour chaque type d'irradiation. Nous ajusterons donc ce paramètre en même temps que les 12 autres paramètres.

La méthode d'analyse utilisée tient compte de la stratégie de mesures adoptée pendant l'expérience. En effet, chacun des trois spectres expérimentaux sert à extraire les paramètres des groupes dont la contribution relative est la plus grande. De plus, nous savons que le groupe 1 est formé d'un seul précurseur qui est le Brome-87. Ce dernier a une période de 55,6 s. Ce groupe sera donc omniprésent en fin de la décroissance du spectre expérimental de l'irradiation de 300 s. Nous commençons donc notre analyse par la détermination de la contribution du groupe 1 de l'irradiation longue en fixant sa période à 55,6 s. Puis nous passons à l'extraction des paramètres des autres groupes pour cette irradiation. Notre analyse continue avec la détermination des paramètres des autres groupes pour l'irradiation intermédiaire puis pour l'irradiation courte. Une fois que les paramètres d'un groupe sont extraits, ils vont varier dans leurs barres d'erreurs, si possible, pour extraire les paramètres des autres groupes sinon ils seront fixés. Pour parvenir à extraire les paramètres d'un groupe, plusieurs ajustements numériques de ces paramètres sont effectués dans la zone de dominance du groupe en variant la borne inférieure en temps de cette dernière. La valeur de la période de ce groupe est contrainte dans son intervalle en temps présenté dans le tableau 1.4 au chapitre 1. Par contre, la valeur de la contribution relative reste libre. Le choix des paramètres est contraint par la stabilité des valeurs de ces paramètres en fonction du temps. Sur la figure 5.9 on peut voir la variation des valeurs de paramètres du groupe 2 en fonction de la limite inférieure utilisée pour l'ajustement numérique. Une zone de stabilité est recherchée. Dans le cas présenté, les valeurs retenues pour la contribution et la période sont de 3,5 cps/ms et 21,12 s, valeurs extraites à $t=40$ s. En général cette stabilité est atteinte avant qu'un autre groupe commence à contribuer. Parfois, la valeur du paramètre ne se stabilise pas et dans ce cas, il faut faire l'ajustement avec deux ou plusieurs groupes jusqu'à l'obtention de cette stabilisation.

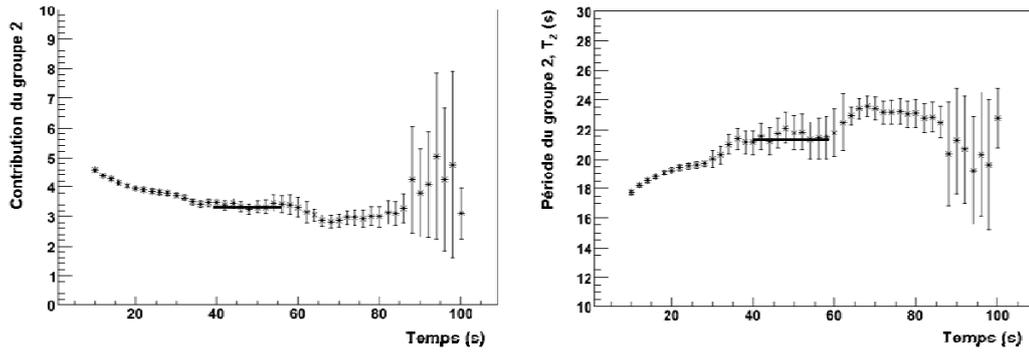


Figure 5.9 – Evolution des paramètres du groupe 2 en fonction de l'intervalle en temps utilisé pour l'ajustement numérique.

L'ajustement du bruit est fait en même temps que celui pour le groupe 1. Il est ensuite contraint à l'intérieur de l'incertitude pour l'ajustement des autres groupes. Nous vérifions à chaque étape de l'analyse qu'il est cohérent avec le bruit mesuré.

Pour les analyses des spectres de l' ^{235}U , l'analyse est d'abord faite sans tenir compte ni de la contribution de neutrons retardés issus de la fission par neutron de l' ^{235}U ni de celle de la fission induite par photons des 7 % d' ^{238}U contenus dans la cible. L'impact de ces corrections sera évalué ensuite. Dans ce qui suit, l'analyse des données de 15 MeV est présentée puis celle de 18 MeV suivra.

5.1.4 Analyse des résultats à 15 MeV

5.1.4.1 Irradiation 300s – décroissance 300s

A la fin de la décroissance de 300 s, le seul groupe qui contribue à l'émission des neutrons retardés est le groupe 1. Les autres groupes ont décrépué totalement puisque le temps écoulé représente plus de dix fois leur demi-vie. Le bruit de fond est important dans cette zone de la décroissance comme nous l'avons observé sur la figure 5.7. Pour l'ajustement, la période du groupe 1 (55,6 s) est fixée et le bruit de fond et a_1 sont ajustés. De cette irradiation, nous déterminons aussi les paramètres du groupe 2, 3 et 4 (voir Figure 5.10). Les groupes 5 et 6 ne peuvent cependant être extraits séparément. Un groupe représentant la somme de ces deux groupes est donc déterminé. Le tableau 5.2 récapitule les paramètres extraits de cette irradiation. Nous remarquons que le groupe 3 a une contribution plus grande que la valeur trouvée par Nikotin ce qui est en accord avec les observations faites à la section 5.1.3.2. Les incertitudes des paramètres des groupes 3 et 4 sont grandes, mais seront améliorées en utilisant les autres types d'irradiation.

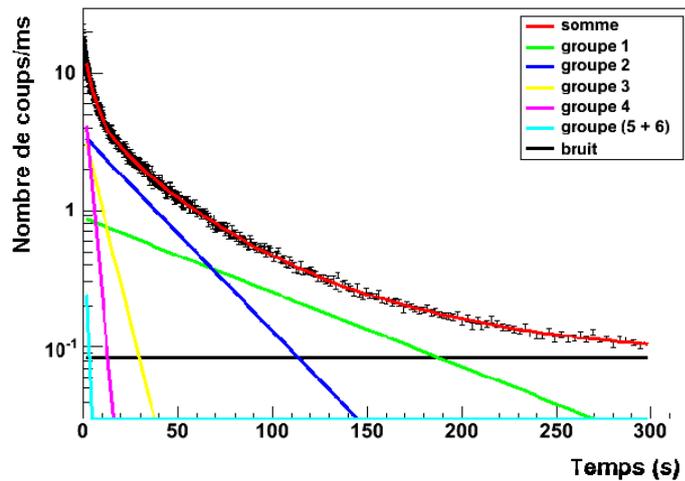


Figure 5.10 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation longue (300 s). La courbe expérimentale (noire) est comparée au résultat de l’ajustement (rouge). Les contributions de quatre groupes sont aussi représentées.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$5,59 \pm 0,28$	$55,6$
2	$21,62 \pm 0,84$	$21,12 \pm 0,82$
3	$22,2 \pm 9,0$	$5,38 \pm 0,79$
4	$36,4 \pm 5,0$	$2,08 \pm 0,45$
5+6	$14,2 \pm 1,1$	$0,370 \pm 0,046$

Tableau 5.2 – Paramètres des groupes 1 à 6 extraits de l’irradiation 300 s – 300 s.

5.1.4.2. Irradiation 10s – décroissance 100s

Dans le cas de cette irradiation, nous ne pouvons pas déterminer les groupes 1 et 2 parce que leur temps de vie est plus grand que le temps d’irradiations. Alors, les paramètres de ces deux groupes seront fixés aux valeurs trouvées lors de l’analyse de l’irradiation longue. Par contre les groupes 3 et 4 sont dominants pour cette irradiation intermédiaire. Nous allons déterminer les paramètres des ces deux groupes et tenter une évaluation des groupes 5 et 6. Pendant cette irradiation, le groupe 4 est dominant ce qui nous a empêchés d’extraire les paramètres du groupe 3 de façon indépendante. Nous ajustons donc les 4 paramètres en même temps. De ce fait, l’incertitude sur la contribution du groupe 3 reste grande mais elle est plus petite que celle provenant de l’irradiation longue. Nous envisageons pour les prochaines expériences d’adapter le temps d’irradiation afin que nous puissions extraire le groupe 3 seul. Le tableau 5.3 regroupe tous les paramètres déterminés par l’analyse de cette irradiation et la figure 5.11 montre le résultat de l’ajustement de nos paramètres sur la courbe expérimentale.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
3	$23,0 \pm 4,2$	$5,16 \pm 0,46$
4	$36,1 \pm 3,2$	$2,12 \pm 0,26$
5	$9,7 \pm 5,54$	$0,61 \pm 0,18$
6	$6,72 \pm 0,80$	$0,175 \pm 0,032$

Tableau 5.3 – Valeurs des paramètres des groupes 3 à 6 extraits de l’irradiation 10 s – 100 s.

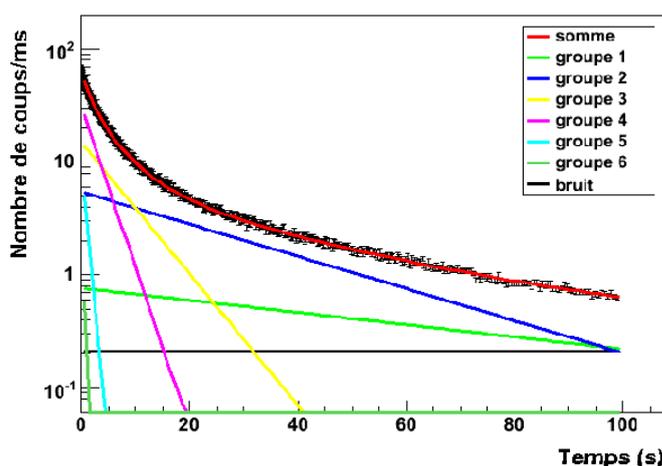


Figure 5.11 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation de 10 s. La courbe expérimentale (noire) est comparée au résultat de l’ajustement (rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.

Avec cette analyse, nous avons pu réduire les incertitudes des paramètres des groupes 3 et 4. Les paramètres des groupes 5 et 6 sont extraits aussi de cette irradiation mais avec de grandes incertitudes. Nous allons mieux les déterminer en utilisant l’irradiation courte.

5.1.4.3. Irradiation 100 μ s – 40 s

Nous continuons l’analyse par l’extraction des deux derniers groupes, les groupes 5 et 6, en utilisant le spectre obtenu à la suite de l’irradiation courte de 100 μ s. La contribution des deux premiers groupes est quasiment équivalente à une constante pour cette irradiation et le groupe 3 n’est pas dominant. Les résultats de l’analyse de ce spectre sont présentés dans le tableau 5.4 et sur la figure 5.12. Les incertitudes des groupes 5 et 6 sont nettement améliorées par rapport à celles déterminées avec l’irradiation intermédiaire. Celle du groupe 5 reste cependant relativement grande.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
5	$9,8 \pm 2,5$	$0,529 \pm 0,089$
6	$3,92 \pm 0,20$	$0,191 \pm 0,012$

Tableau 5.4 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 extraits de l’irradiation 100 μ s – 40 s.

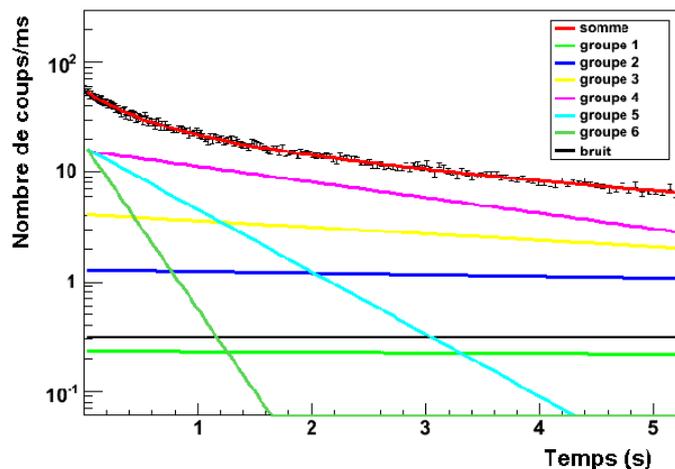


Figure 5.12 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation courte (100 μ s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.

5.1.4.4. Résultat global

Plusieurs paramètres ont pu être extraits en utilisant deux types d’irradiations. Nous retenons de cette analyse pour un paramètre donné la valeur extraite dont l’incertitude est la plus petite. En résumé, les paramètres du groupe 1 et 2 sont déterminés de l’irradiation de 300s, ceux du groupe 3 et 4 de l’irradiation de 10s et ceux du groupe 5 et 6 de l’irradiation 100 μ s. Le tableau 5.5 regroupe les paramètres extraits de cette analyse.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$5,59 \pm 0,28$	55,6
2	$21,62 \pm 0,84$	$21,12 \pm 0,82$
3	$23,0 \pm 4,2$	$5,16 \pm 0,46$
4	$36,1 \pm 3,2$	$2,12 \pm 0,26$
5	$9,8 \pm 2,5$	$0,529 \pm 0,0892$
6	$3,92 \pm 0,20$	$0,191 \pm 0,012$

Tableau 5.5 – Valeurs des paramètres des six groupes de neutrons retardés de l’ ^{235}U irradié pour une énergie de Bremsstrahlung maximale de 15 MeV.

Afin de vérifier que les paramètres extraits d’une irradiation donnée reproduisent les courbes expérimentales des deux autres irradiations, nous avons tracé chacune de nos trois courbes paramétrées et le spectre expérimental associé sur la même figure (voir figures 5.13, 5.14 et 5.15).

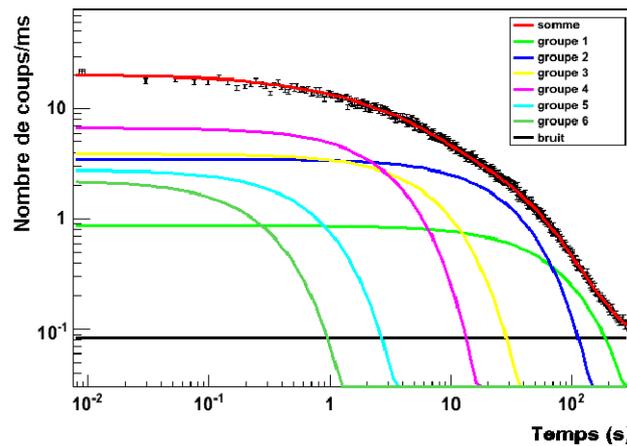


Figure 5.13 – Comparaison de la courbe expérimentale (noire) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 300 s ($\chi^2/\text{ndf} = 1.004$).

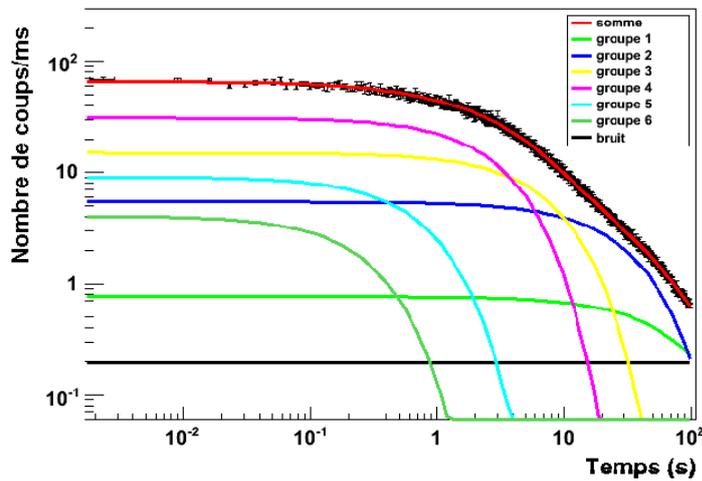


Figure 5.14 – Comparaison de la courbe expérimentale (noire) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 10 s ($\chi^2/\text{ndf} = 0,99$).

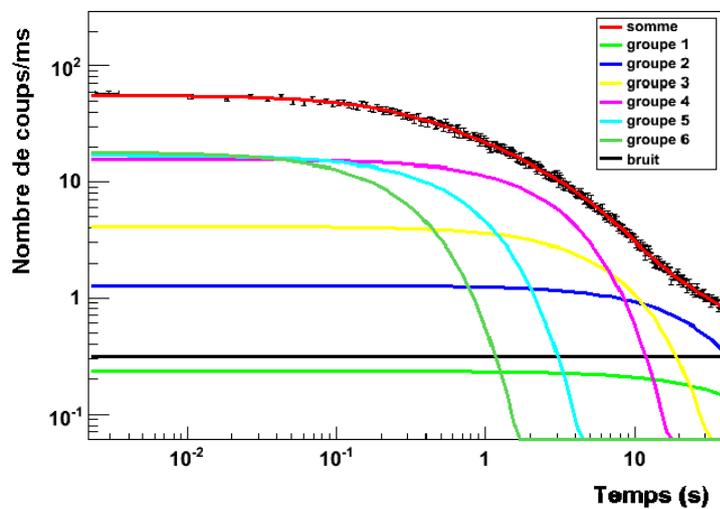


Figure 5.15 – Comparaison de la courbe expérimentale (noire) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 100 μs ($\chi^2/\text{ndf} = 1,03$).

Nous déduisons de ces trois figures que les paramètres obtenus avec notre analyse reproduisent très bien les trois spectres expérimentaux.

5.1.4.5. Contributions des réactions $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ et $^{235}\text{U}(n, f)$ aux spectres de neutrons retardés.

Deux autres réactions de fissions contribuent à l'émission de neutrons retardés. La première est la fission par neutron de ^{235}U et la seconde est celle de ^{238}U induite par photons. Rappelons qu'il y a environ 6% d' ^{238}U dans la cible d' ^{235}U .

Le nombre de réactions $^{235}\text{U}(n, f)$ est évaluée par MCNPX à environ 3,01 % du nombre total de fissions produites dans la cible alors que pour la réaction $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ le résultat est de 3,5 %. Afin de déterminer l'impact de ces contributions sur les paramètres extraits à la section précédente, nous analysons les spectres expérimentaux avec la même méthode d'analyse, mais en ajoutant ces contributions. Nous utilisons pour la photofission d' ^{238}U les paramètres des six groupes extraits lors de notre expérience sur ^{238}U [Gia05] et présentés dans le tableau 5.6. Pour la fission induite par neutrons de ^{235}U les paramètres obtenus par Keepin [Kee57] dans un spectre rapide seront utilisés (tableau 5.7).

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$1,7 \pm 0,2$	55,6
2	$16,5 \pm 0,5$	$21,88 \pm 0,66$
3	$18,3 \pm 0,7$	$5,01 \pm 0,49$
4	$37,3 \pm 0,8$	$2,07 \pm 0,14$
5	$18,0 \pm 0,4$	$0,584 \pm 0,051$
6	$8,5 \pm 0,8$	$0,174 \pm 0,019$

Tableau 5.6 – Valeurs des paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission de ^{238}U [Gia05].

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$3,8 \pm 0,3$	$54,51 \pm 0,94$
2	$21,3 \pm 0,5$	$21,84 \pm 0,54$
3	$18,8 \pm 1,6$	$6,0 \pm 0,17$
4	$40,7 \pm 0,7$	$2,23 \pm 0,06$
5	$12,8 \pm 0,8$	$0,496 \pm 0,029$
6	$2,6 \pm 0,3$	$0,179 \pm 0,017$

Tableau 5.7 – Valeurs des paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de la fission de ^{235}U induite dans un spectre de neutrons rapides [Kee57].

Ces deux ensembles de paramètres seront fixés pendant l'analyse. Nous appliquons aussi à ces paramètres les corrections dues à la durée d'irradiation, au type de faisceau (pulsé ou continu) et à la répétition des mesures. Le tableau 5.8 regroupe les paramètres trouvés pour la photofission de ^{235}U en tenant compte des autres contributions.

Groupe	a_i (%)	Ti(s)
1	$6,23 \pm 0,34$	55,6
2	$22,2 \pm 1,0$	$21,05 \pm 0,96$
3	$23,7 \pm 5,34$	$5,16 \pm 0,56$
4	$35,6 \pm 4,0$	$2,13 \pm 0,33$
5	$8,4 \pm 2,7$	$0,54 \pm 0,12$
6	$3,74 \pm 0,27$	$0,207 \pm 0,017$

Tableau 5.8 – Valeurs des paramètres des six groupes de l' ^{235}U extraits des trois spectres expérimentaux à 15 MeV et corrigés de la contribution de neutrons retardés provenant des réactions $^{235}\text{U}(n,f)$ et $^{238}\text{U}(\gamma,f)$.

Sur les figures 5.16, 5.17 et 5.18, les spectres temporels des deux contributions sont présentés. Les points expérimentaux (en noir) sont bien reproduits par l'ajustement (rouge) incluant toutes les contributions. Pour les trois spectres, nous remarquons que les deux contributions sont plus significatives dans la zone où les groupes 4, 5 et 6 sont dominants. Sur la figure 5.19, nous comparons les jeux de paramètres obtenus sans et avec corrections pour les autres contributeurs.

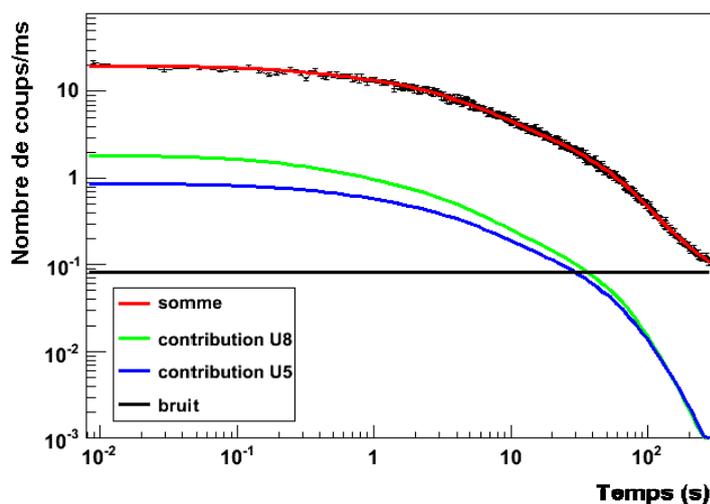


Figure 5.16 – Comparaison des données expérimentales (points en noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 300 s. La contribution de l' ^{238}U (courbe verte) et celle de l' ^{235}U (courbe bleue) sont aussi présentées.

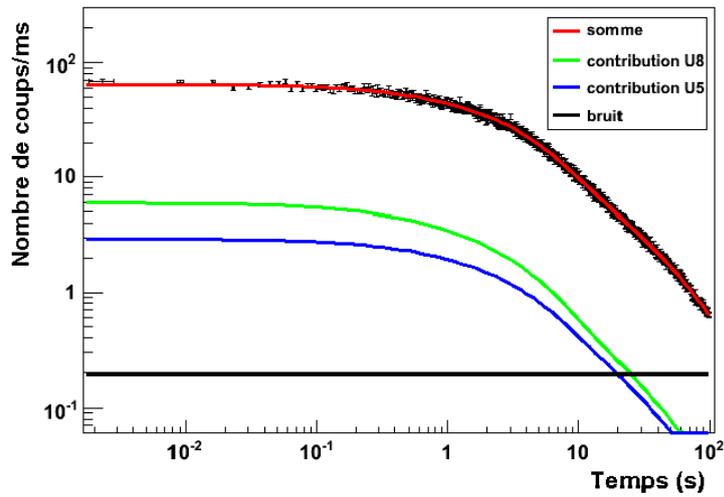


Figure 5.17 – Comparaison des données expérimentales (points en noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 10 s. La contribution de l’ ^{238}U est présentée en courbe verte et celle de l’ ^{235}U en courbe bleue.

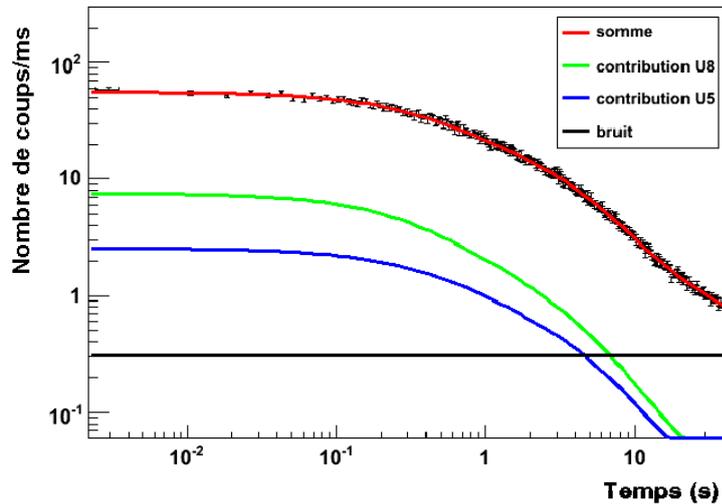


Figure 5.18 – Comparaison des données expérimentales (points en noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 100 μs . La contribution de l’ ^{238}U est présentée en courbe verte et celle de l’ ^{235}U en courbe bleue.

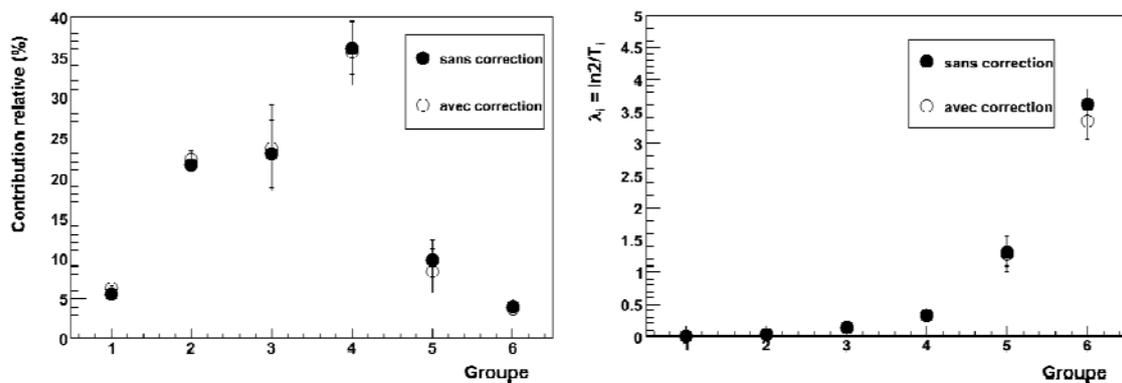


Figure 5.19 – Comparaison entre les paramètres de six groupes issus de deux analyses à 15 MeV.

Nous constatons que la prise en compte des réactions ^{235}U (n, f) et ^{238}U (γ , f) augmente les rendements relatifs des groupes 1 à 3 et en compensation elle diminue ceux des groupes 4 à 6. Les écarts sont petits (comparé aux incertitudes). Nous remarquons sur la figure 5.19 que les onze paramètres extraits en tenant compte des deux contributions appartiennent au domaine de variation du premier jeu de paramètres. Nous utiliserons donc le jeu de paramètres qui est présenté au tableau 5.5 (sans correction pour les autres contributions aux neutrons retardés) pour la comparaison de nos résultats à ceux de Nikotin (section 5.1.6.1) puisque nous doutons qu'il ait corrigé ses données pour tenir compte des autres contributions.

5.1.5 Analyse des résultats à 18 MeV

Dans cette section, les analyses des spectres expérimentaux issus de la photofission de ^{235}U par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 18 MeV effectuées sans et avec les contributions des autres types de fission dans la cible de ^{235}U seront présentées successivement. Rappelons que pour la mesure à 18 MeV, pour des raisons de disponibilité de faisceau, la durée de l'irradiation intermédiaire a été réduite à 2 secondes.

5.1.5.1. Analyse des données pour les trois types d'irradiations

La même méthode d'analyse est utilisée pour les spectres expérimentaux issus de la photofission de ^{235}U à 18 MeV. Nous commençons par déterminer les quatre premiers groupes et le groupe représentant la somme des groupes 5 et 6 avec le spectre obtenu suite à l'irradiation longue. Le tableau 5.9 regroupe les paramètres extraits de ce spectre et la figure 5.20 compare l'ajustement numérique au spectre.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$5,82 \pm 0,19$	55,6
2	$20,97 \pm 0,82$	$20,88 \pm 0,64$
3	$23,7 \pm 5,6$	$5,28 \pm 0,44$
4	$36,2 \pm 4,3$	$2,11 \pm 0,13$
5+6	$13,33 \pm 0,65$	$0,407 \pm 0,035$

Tableau 5.9 – Valeurs des paramètres des groupes déterminés suite à l'irradiation longue (300 s - 300 s) pour ^{235}U à 18 MeV.

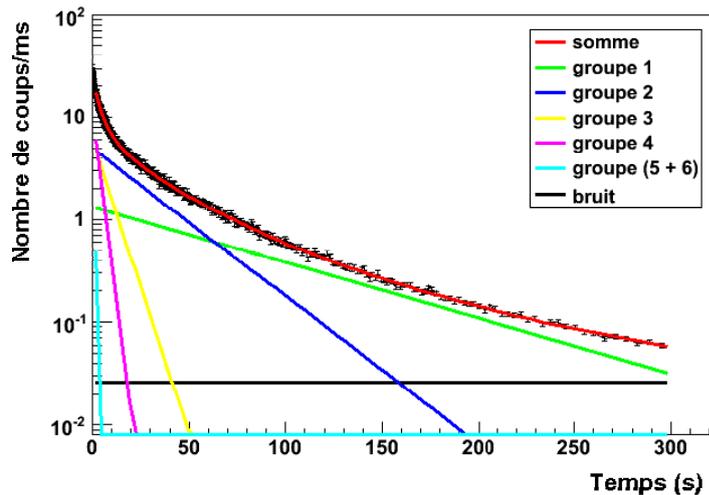


Figure 5.20 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation longue (300 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions de quatre groupes sont aussi représentées.

Puis nous passons à l’analyse du spectre de l’irradiation intermédiaire. Lors de cette étape, nous ne pouvons déterminer les paramètres du groupe 3 parce qu’une irradiation de 2 secondes ne permet pas de peupler suffisamment ce groupe. Le groupe 4, quant à lui, ne peut pas être déterminé car il est influencé par le bruit de fond. Nous avons donc conservé les paramètres déterminés à partir de l’irradiation longue 300 s pour les groupes 3 et 4. De l’irradiation intermédiaire, nous essayons d’extraire les groupes 5 et 6 en fixant les paramètres des groupes 1 à 4. Comme pour l’analyse à 15 MeV, ces paramètres ont de grandes incertitudes. Nous présentons dans le tableau 5.10 les paramètres du groupe 5 et 6 extraits de cette irradiation et sur la figure 5.21 la comparaison du spectre expérimental à l’ajustement numérique. En fait, cette irradiation n’a pas été utile dans le cas présent.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
5	$9,3 \pm 2,3$	$0,505 \pm 0,078$
6	$4,18 \pm 0,33$	$0,250 \pm 0,032$

Tableau 5.10 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 déterminés de l’irradiation intermédiaire (2 s-18 s) pour ^{235}U à 18 MeV.

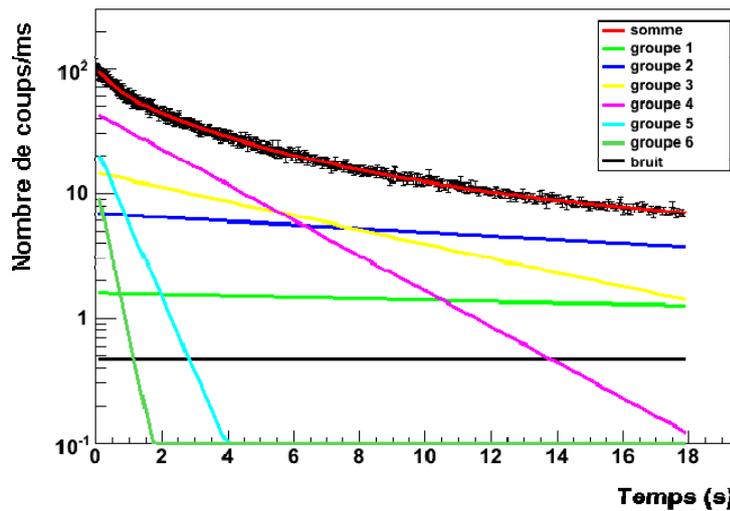


Figure 5.21 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation intermédiaire (2 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.

Enfin, nous déterminons les paramètres des groupes 5 et 6 avec le spectre obtenu suite à l’irradiation courte de 100 μ s. Le tableau 5.11 regroupe les paramètres extraits de ce spectre. La figure 5.22 compare l’ajustement numérique au spectre expérimental.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
5	$10,4 \pm 1,2$	$0,505 \pm 0,054$
6	$2,92 \pm 0,16$	$0,187 \pm 0,012$

Tableau 5.11 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 déterminés de l’irradiation courte (100 μ s – 40 s) pour l’ ^{235}U à 18 MeV.

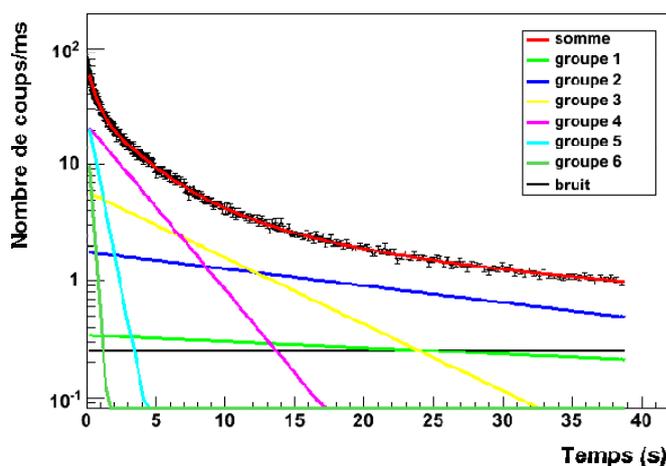


Figure 5.22 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation courte (100 μ s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.

En résumé, les paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de ^{235}U irradié par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 18 MeV sont présentés dans le tableau 5.12. Les figures 5.23 à 5.25 présentent la reproduction de nos trois spectres expérimentaux (courbe noire) par nos trois courbes paramétrées (en rouge). La contribution des six groupes est aussi présentée par les six courbes en couleur.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$5,82 \pm 0,19$	55,6
2	$20,97 \pm 0,82$	$20,88 \pm 0,64$
3	$23,7 \pm 5,6$	$5,28 \pm 0,44$
4	$36,2 \pm 4,3$	$2,11 \pm 0,13$
5	$10,4 \pm 1,2$	$0,505 \pm 0,054$
6	$2,92 \pm 0,16$	$0,187 \pm 0,012$

Tableau 5.12 – Les paramètres des six groupes de neutrons retardés de ^{235}U pour une énergie électron de 18MeV.

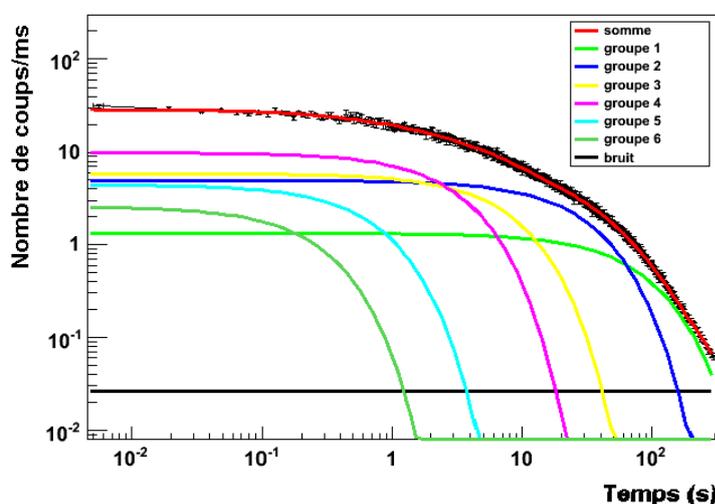


Figure 5.23 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 300 s ($\chi^2/\text{ndf} = 1,03$).

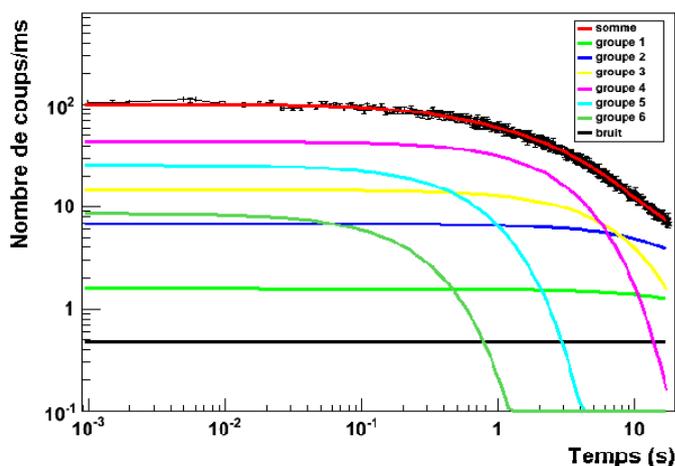


Figure 5.24 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 20 s ($\chi^2/\text{ndf} = 0,99$).

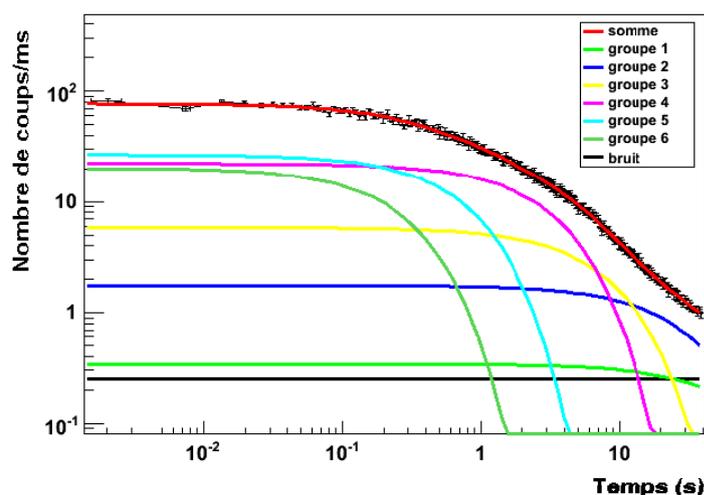


Figure 5.25 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 100 μ s ($\chi^2/\text{ndf} = 0,96$).

Ces trois figures montrent que les paramètres obtenus avec notre analyse reproduisent très bien les trois spectres expérimentaux.

5.1.5.2. Contributions des réactions $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ et $^{235}\text{U}(n, f)$ aux spectres de neutrons retardés

La même procédure que celle développée pour l’analyse à 15 MeV (section 5.1.4.5) est utilisée ici pour corriger les paramètres en tenant compte des réactions $^{235}\text{U}(n, f)$ et $^{238}\text{U}(\gamma, f)$. La contribution de la fission par neutrons de l’ ^{235}U est estimée à l’aide MCNPX à 3,36% du nombre total de fission produits dans la cible et celle de la fission induite par photons de l’ ^{238}U à 3,55%. Les paramètres obtenus de cette analyse sont regroupés dans le tableau 5.13.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$6,38 \pm 0,233$	55,6
2	$21,4 \pm 1,0$	$20,76 \pm 0,78$
3	$24,0 \pm 5,4$	$5,35 \pm 0,45$
4	$36,2 \pm 4,9$	$2,14 \pm 0,15$
5	$9,8 \pm 1,1$	$0,495 \pm 0,054$
6	$2,21 \pm 0,18$	$0,185 \pm 0,019$

Tableau 5.13 – Valeurs des paramètres des groupes 1 à 6 extraits des trois spectres expérimentaux de 18 MeV corrigés de la contribution des deux fissions.

La figure 5.26 présente les contributions des six groupes avec (carrés vides) et sans (carrés pleins) correction pour les autres réactions de fission. Les différences étant plus petites que les incertitudes, nous choisissons donc de ne pas utiliser les paramètres de cette analyse pour la discussion des résultats au 5.1.6.

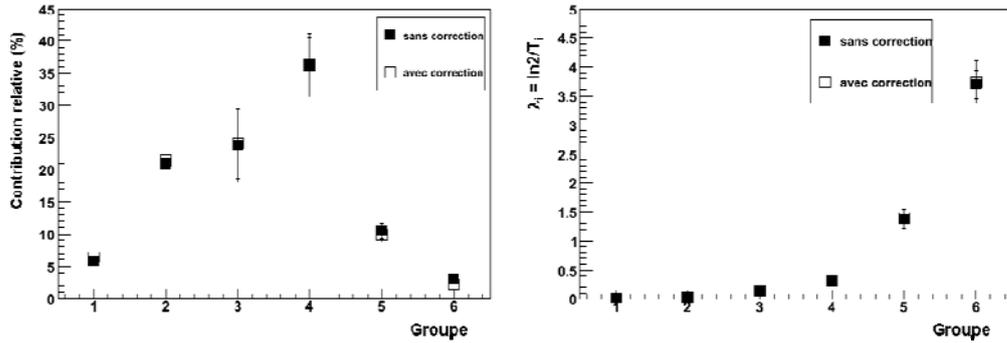


Figure 5.26 – Comparaison entre les paramètres de six groupes issus des deux analyses à 18 MeV.

5.1.6 Discussion des résultats

Dans ce qui suit, les paramètres de neutrons retardés déterminés à 15 MeV et à 18 MeV pour ^{235}U lors de cette expérience sont comparés à ceux de la littérature et ensuite à ceux de la modélisation.

5.1.6.1. Comparaison aux résultats antérieurs

Nous comparons dans le tableau 5.14 les paramètres de ^{235}U pour une énergie maximale de Bremsstrahlung de 15 MeV déterminés dans la section 5.1.4 avec ceux publiés par Nikotin [Nik66].

Groupe	a_i (%)	a_i (%) [Nikotin]	T_i (s)	T_i (s) [Nikotin]
1	$5,59 \pm 0,28$	$5,4 \pm 0,5$	55,6	$54,7 \pm 2,5$
2	$21,62 \pm 0,84$	20 ± 2	$21,12 \pm 0,82$	$20,3 \pm 1$
3	$23,0 \pm 4,2$	$15,2 \pm 2,0$	$5,16 \pm 0,46$	$5,45 \pm 0,6$
4	$36,1 \pm 3,2$	$36,9 \pm 4,0$	$2,12 \pm 0,26$	$2,01 \pm 0,25$
5	$9,8 \pm 2,5$	$13,9 \pm 2,0$	$0,529 \pm 0,0892$	$0,5 \pm 0,1$
6	$3,92 \pm 0,20$	$8,6 \begin{smallmatrix} +2 \\ -5 \end{smallmatrix}$	$0,191 \pm 0,012$	$0,19 \pm 0,04$

Tableau 5.14 – Comparaison des valeurs de ce travail à celles publiées par Nikotin et al.

En ce qui concerne les périodes, les écarts entre les deux séries de paramètres sont petits. Pour les rendements relatifs, nous remarquons des écarts importants pour les groupes 3, 5 et 6. La contribution du groupe 3 est plus grande que celle de Nikotin et celles des groupes 5 et 6 sont plus petites que celles de Nikotin, ce qui confirme notre conclusion lors de la comparaison de nos spectres avec les données de Nikotin (section 5.1.3.2). Ces écarts peuvent être expliqués par la stratégie de mesures adoptée par Nikotin. En effet, il n'a réalisé qu'une seule irradiation longue pour extraire les paramètres. De plus, sa mesure de neutrons retardés a commencé 0,1 s après l'arrêt du faisceau. Nous avons montré qu'il est difficile d'extraire les paramètres du groupe 5 et 6 de l'irradiation longue et en tenant compte de la mesure faite par Nikotin, nous pouvons déduire qu'il a pu surestimer les contributions du groupe 5 et 6 et en compensation il a sous-estimé celle du groupe 3.

Deux autres mesures ont été faites par Kull [Kul70] pour ^{235}U pour des énergies électron de 8 et 10 MeV. La stratégie de mesures de Kull est semblable à la nôtre. Pour l'analyse, il a fixé les périodes trouvées par Nikotin et il a extrait seulement les rendements relatifs des six groupes. Nous présentons sur le même graphique 5.27 les paramètres de ^{235}U trouvés par Nikotin à 15 MeV, Kull à 10 MeV et les nôtres pour les énergies électron de 15 MeV et 18 MeV.

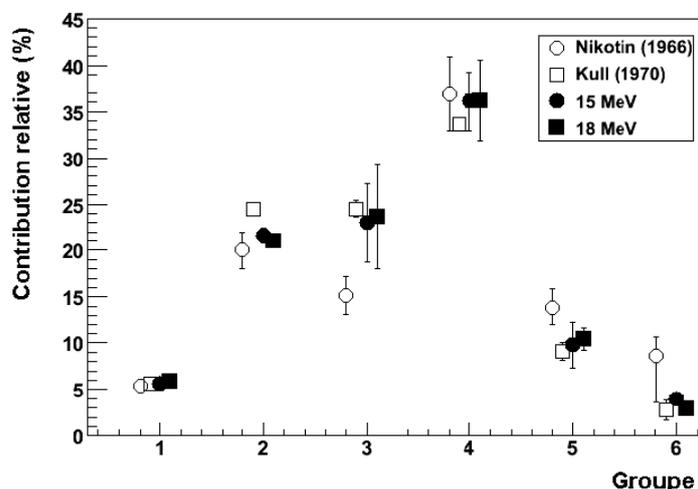


Figure 5.27 – Comparaison de nos paramètres temporels de ^{235}U à ceux de Nikotin et Kull.

De ces mesures, nous pouvons conclure que l'hypothèse de Kull selon laquelle l'ouverture de voie de la fission de seconde chance explique l'écart entre ses données et Nikotin est fautive. L'écart est dû à la stratégie de mesures utilisée par Nikotin.

D'autre part, nous avons pu dans certains cas diminuer les incertitudes sur les paramètres à 15 MeV par rapport à celles données par Nikotin. Ces dernières sont égales à l'écart obtenu entre les résultats de différentes prises de mesures [Nik66]. Il se peut que l'erreur statistique ne soit pas prise en compte. Les incertitudes données sur nos paramètres sont calculées par ROOT et prennent donc en compte l'erreur statistique. En outre, dans le cas de notre analyse, les incertitudes ont été calculées par ROOT pour quelques paramètres alors que d'autres paramètres étaient fixés. Les incertitudes ne tiennent donc pas compte de la variation des autres paramètres. Un tirage aléatoire des paramètres dans leurs barres d'erreurs a donc été réalisé afin de tester la validité de ces incertitudes. Les figures 5.28 à 5.30 représentent la courbe expérimentale avec les deux courbes paramétrées par les valeurs minimales et maximales des intervalles de variation des paramètres, pour respectivement la longue, l'intermédiaire et l'irradiation courte. Avant de discuter ces résultats, nous rappelons que l'incertitude évaluée par ROOT est l'écart type σ qui caractérise la dispersion d'un paramètre p autour de sa valeur moyenne. Elle signifie qu'il y a une probabilité d'environ 68,3 % que la valeur de ce paramètre soit à l'intérieur de l'intervalle $[p - \sigma, p + \sigma]$.

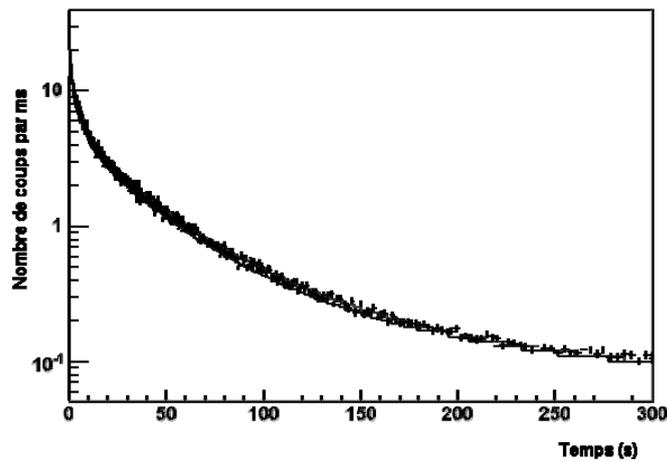


Figure 5.28 – Spectre temporel expérimental (points noirs) suite à l’irradiation longue pour ^{235}U . Les courbes paramétrées pour les valeurs minimales et maximales de la plage de variation des paramètres sont représentées par les courbes continues.

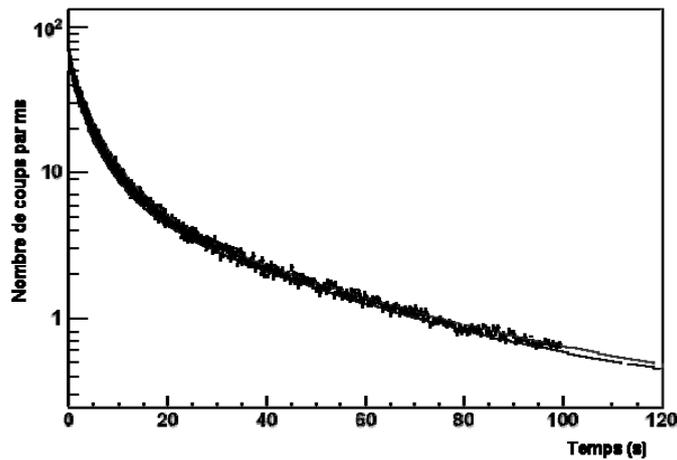


Figure 5.29 – Spectre temporel expérimental (points noirs) suite à l’irradiation intermédiaire pour ^{235}U . Les courbes paramétrées pour les valeurs minimales et maximales de la plage de variation des paramètres sont représentées par les courbes continues.

Pour l’irradiation longue, plus de 75% des points expérimentaux sont à l’intérieur des deux courbes. Ceci signifie que la définition de l’écart type est remplie par les données de cette irradiation. Concernant l’irradiation intermédiaire, les deux courbes paramétrées associées aux limites inférieures et supérieures des paramètres encadrent largement la totalité des points expérimentaux appartenant à la zone de la courbe allant de 0 à 30 s où les groupes 3 et 5 sont deux des six groupes qui contribuent essentiellement à l’émission de neutrons retardés. Ceci prouve que les incertitudes calculées pour le rendement relatif du groupe 3 et pour les paramètres du groupe 5 sont exactes, et confirme qu’elles sont importantes. Pour le reste de la courbe, les points expérimentaux sont en grande partie à l’intérieur de la zone limitée par les deux courbes paramétrées.

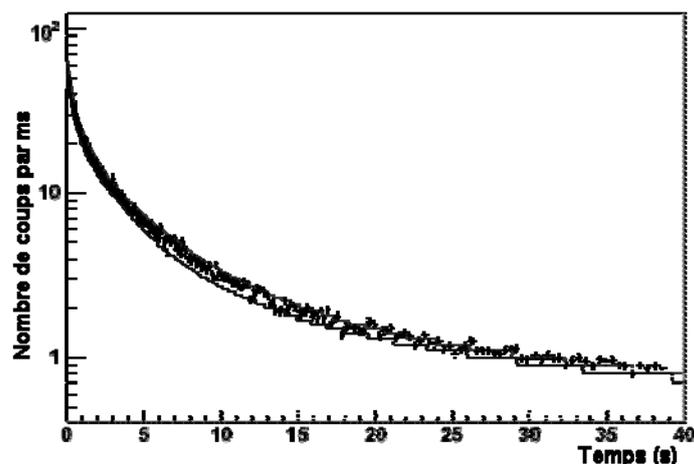


Figure 5.30 – Spectre temporel expérimental (points noirs) suite à l’irradiation courte pour ^{235}U . Les courbes paramétrées pour les valeurs minimales et maximales de la plage de variation des paramètres sont représentées par les courbes continues.

Enfin, pour l’irradiation courte nous constatons aussi que les points expérimentaux allant de 0 s à 20 s sont bien à l’intérieur des deux courbes. Ce qui prouve une fois de plus que les incertitudes du rendement relatif du groupe 3 et des paramètres du groupe 5 sont assez importantes. Pour les autres points de la courbe, plus de 2/3 d’entre eux sont à l’intérieur de la zone définie par les deux courbes paramétrées. Nous concluons donc que les incertitudes déterminées pour les onze paramètres sont légèrement surestimées car elles permettent de reproduire les trois courbes expérimentales avec une probabilité plus grande que 70 %. La même étude a été faite pour les incertitudes sur les paramètres de 18 MeV, nous concluons aussi que les incertitudes calculées sur ces paramètres par ROOT reproduisent plus de 70 % les trois spectres expérimentaux.

5.1.6.2. Comparaison à la modélisation

Nous nous intéressons maintenant à la comparaison de nos résultats à 15 MeV et à 18 MeV à ceux de la modélisation. Celle-ci est décrite dans le chapitre 2 (cf. 2.5). Les résultats de la modélisation à 15 MeV et à 18 MeV sont comparés dans le tableau 5.15 et 5.16 aux résultats expérimentaux.

Groupe	a_i (%)	a_i (%) (modélisation)	T_i (s)	T_i (s) (modélisation)
1	$5,59 \pm 0,28$	5,2	55,6	55,6
2	$21,62 \pm 0,84$	26,3	$21,12 \pm 0,82$	20,75
3	$23,0 \pm 4,2$	21,7	$5,16 \pm 0,46$	5,04
4	$36,1 \pm 3,2$	37,5	$2,12 \pm 0,26$	2,04
5	$9,8 \pm 2,5$	7,8	$0,529 \pm 0,0892$	0,47
6	$3,92 \pm 0,20$	1,5	$0,191 \pm 0,012$	0,198

Tableau 5.15 – Comparaison des résultats expérimentaux de 15 MeV à la modélisation.

Groupe	a_i (%)	a_i (%) (modélisation)	T_i (s)	T_i (s) (modélisation)
1	$5,82 \pm 0,19$	5,5	55,6	55,6
2	$20,97 \pm 0,82$	27,0	$20,88 \pm 0,64$	20,7
3	$23,7 \pm 5,6$	21,9	$5,28 \pm 0,44$	5,04
4	$36,2 \pm 4,3$	36,8	$2,11 \pm 0,13$	2,0
5	$10,4 \pm 1,2$	7,4	$0,505 \pm 0,054$	0,47
6	$2,92 \pm 0,16$	1,4	$0,187 \pm 0,012$	0,199

Tableau 5.16 – Comparaison des résultats expérimentaux de 18 MeV à la modélisation.

Nous constatons tout d’abord que les temps de demi-vie des six groupes sont en accord avec ceux de la modélisation pour les deux énergies. Cette reproduction est aussi valable pour les rendements relatifs des groupes 1, 3 et 4. Par contre, un écart est observé pour les groupes 2, 5 et 6 pour les deux jeux de paramètres (voir figures 5.31, 5.32). Cet écart est probablement dû aux distributions de masse et isotopique des produits de fissions fournies par ABLA. En effet, une comparaison a été effectuée entre les rares données existantes en distributions de masse dans le cas de la photofission à 15 et 25 MeV pour ^{235}U et ^{238}U [Van06] et les résultats d’ABLA. Des différences ont été constatées pour le rapport pic/vallée. De plus, quelques distributions isotopiques de ^{238}U pour une énergie de 20 MeV d’électron ont été comparées à la modélisation. Celles-ci présentent aussi des écarts. Ces écarts influent sur les valeurs des paramètres de neutrons retardés y compris les rendements relatifs des groupes. Il est intéressant d’améliorer les résultats (ou d’ajuster les paramètres) du code afin d’obtenir une meilleure concordance entre l’expérience et la modélisation. Cependant ces efforts, hors du cadre de cette thèse, seront poursuivis indépendamment.

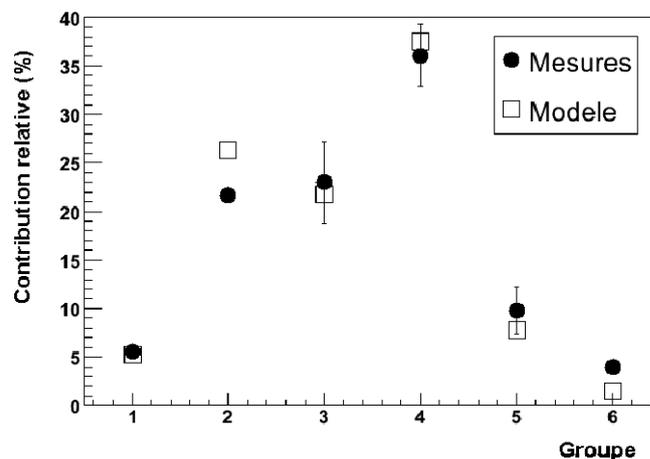


Figure 5.31 – Comparaison des rendements relatifs obtenus expérimentalement pour une énergie électron de 15 MeV à ceux de la modélisation.

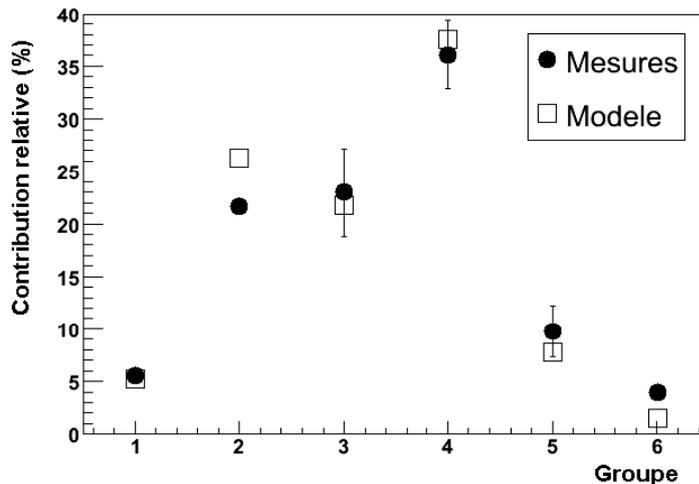


Figure 5.32 – Comparaison des rendements relatifs obtenus expérimentalement pour une énergie électron de 18 MeV à ceux de la modélisation.

5.2 Analyse de la mesure du ^{237}Np à 15 MeV

La mesure à 15 MeV des spectres d'émission de neutrons retardés pour le ^{237}Np est effectuée avec la même cible que celle utilisée lors des mesures des rendements absolus. Pendant cette expérience, une mesure de spectre d'émission de gammas retardés a été réalisée simultanément. Deux détecteurs BGO ont été utilisés afin de mesurer le rendement et l'énergie des gammas de décroissance. Afin de limiter le taux de comptage, l'intensité du faisceau d'électrons a été abaissée à 0,5 μA en moyenne. Nous présentons, dans ce qui suit, les mesures effectuées, l'analyse des données et les résultats obtenus pour les paramètres des six groupes de neutrons retardés.

5.2.1 Mesures

Nous utilisons la même stratégie de mesures que celle adoptée pour ^{235}U . Une irradiation longue sert à déterminer les paramètres du groupe 1 et du groupe 2, une intermédiaire pour les groupes 3 et 4 et une courte pour les groupes 5 et 6. Pour cette mesure, nous avons modifié seulement la durée de l'irradiation intermédiaire. Elle est passée de 10s à 20s. En effet, pendant l'analyse à 15 MeV, nous n'avons pas pu extraire les paramètres du groupe 3 séparément de ceux du groupe 4 parce que ce dernier était dominant (cf. 5.1.4.2). Pour cela, nous avons augmenté la durée d'irradiation afin d'augmenter la contribution de ce groupe et par conséquent créer une zone en temps où le groupe 3 soit plus dominant que le groupe 4. Le tableau 5.17 regroupe les cycles d'irradiations effectuées pour cette mesure.

Type d'irradiations	Nombre de cycles
300 s – 300 s	43
20 s – 100 s	161
140 μs – 40 s	470

Tableau 5.17 – Résumé des irradiations à 15 MeV.

La figure 5.33 montre le spectre brut de l'irradiation de 20s.

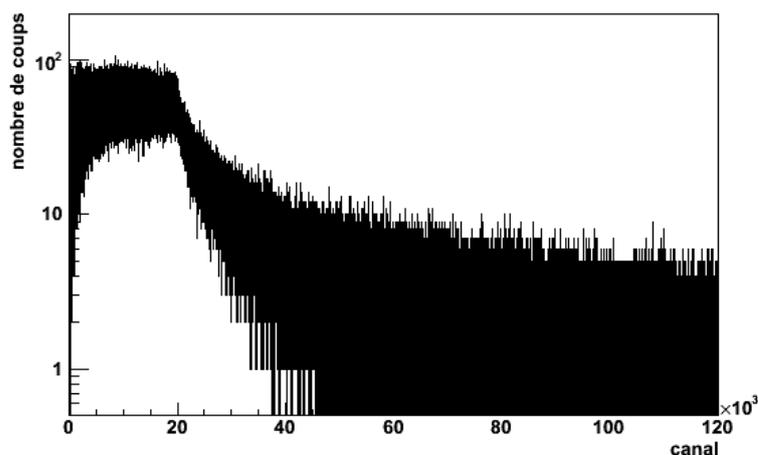


Figure 5.33 – Spectre d'émission brut de neutrons retardés pour l'irradiation de 20 s (1 canal=1ms)

Nous avons effectué trois types de mesures de bruit de fond. Le premier concerne le bruit produit par les irradiations. La figure 5.34 représente un spectre de mesure de bruit de fond pour une irradiation de 20 s. Ce bruit est resté constant pendant toute l'expérience. Il est évalué à $(0,53 \pm 0,04)$ cps/s. Il n'y a aucune dépendance entre ce bruit et la durée d'irradiation.

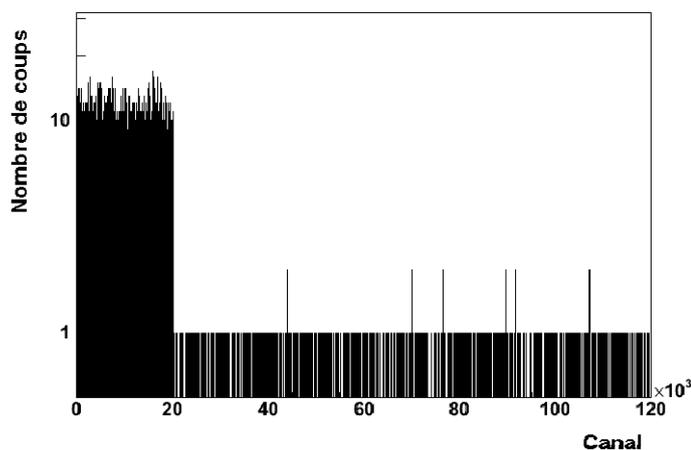


Figure 5.34 – Spectre de bruit de fond suite à l'irradiation de 20 s (1canal=1ms).

Le deuxième type de bruit de fond est mesuré sans la présence du faisceau et sans la cible. Aucune variation de ce bruit n'a été remarquée pendant l'expérience. En outre, il est équivalent au premier, ce qui montre que le fait d'irradier la salle n'augmente pas le bruit de fond. Pour les mesures de bruit de fond effectuées pour l' ^{235}U (cf. 5.1.2), la fluctuation de bruit de fond peut être expliquée par d'autres activités sur le centre pouvant générer des neutrons qui sont détectés dans nos compteurs ^3He . Il faut aussi prendre en compte les neutrons émis spontanément par la cible de ^{237}Np (voir paragraphe 4.3). Ce bruit a une valeur de $(3,1 \pm 0,2)$ cps/s. Aucun des trois types de bruit de fond discutés ici ne présente une dépendance en temps.

5.2.2 Traitement des spectres

Le même traitement utilisé pour les spectres d'émission de neutrons retardés de ^{235}U sera appliqué aux spectres du ^{237}Np (cf. 5.1.3.1). S'ajoute à ce traitement, le recalage des spectres par rapport à l'arrêt du faisceau. En effet, un décalage des cycles a été observé seulement pour les spectres de cette expérience (cf. 4.2.2). Le recalage est particulièrement important pour les irradiations courtes où nous cherchons à extraire les contributions relatives et les périodes des groupes 5 et 6. Ces deux groupes de courte durée de vie décroissent dans les premières secondes qui suivent l'irradiation. Alors, un décalage des cycles masquerait l'information sur leurs paramètres qui mène par la suite à des valeurs erronées de ceux-ci. Les canaux des spectres sont regroupés afin d'obtenir une erreur statistique de 4% pour le ^{237}Np (voir paragraphe 5.1.3.1), la statistique de l'irradiation 300s étant plus grande pour cette expérience. Nous avons un taux de comptage de 36 cps/s/cycle pour une charge moyenne d'électrons par macro-impulsion de 611 nC contre 20 cps/s/cycles pour ^{235}U (à 15 MeV) pour une charge moyenne d'électrons de 1500 nC. La figure 5.35 ci-dessus montre la partie décroissante du spectre expérimental de l'irradiation 20 s avec un regroupement des canaux à 4%.

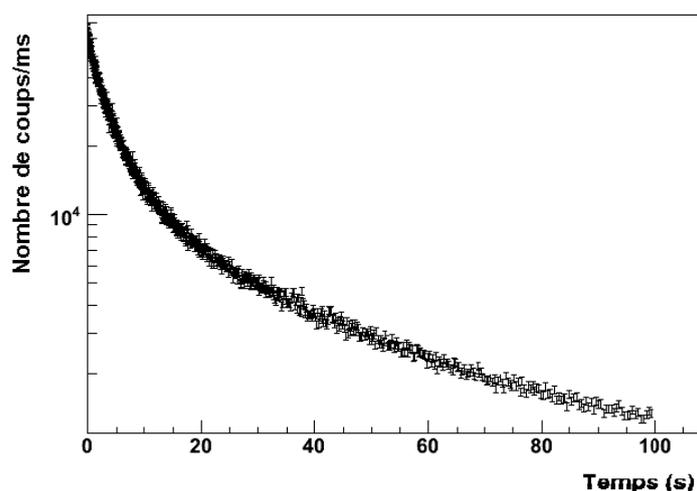


Figure 5.35 – Rendement temporel de neutrons retardés suite à l'irradiation intermédiaire (20 s). Les canaux ont été regroupés afin d'obtenir une incertitude statistique de 4 %.

5.2.3 Comparaison avec les paramètres de Ganich

Les paramètres de neutrons retardés issus de la fission du ^{237}Np induite par un faisceau de Bremsstrahlung d'énergie maximale de 15 MeV trouvés dans EXFOR sont attribués à P.P. Ganich. Il a seulement extrait 5 groupes. Les valeurs des paramètres seront présentées ultérieurement au tableau 5.22. Afin de tester si ces paramètres reproduisent nos spectres expérimentaux, nous allons appliquer la même méthode que celle utilisée pour la comparaison de nos spectres expérimentaux de ^{235}U pour une énergie électron de 15 MeV de Nikotin (cf. 5.1.3.2)

La partie des points expérimentaux s'étendant sur la première seconde du spectre de l'irradiation longue (points noirs) est surestimée par la paramétrisation de Ganich (courbe rouge) comme illustré sur la figure 5.36. Ceci indique une surestimation du groupe 5 déterminé par Ganich. Sur la même figure, les

contributions des cinq groupes trouvés par Ganich (courbe en couleur) sont aussi présentées. Pour la partie du spectre où le groupe 2 est dominant (20s – 85s), nous observons une sous-estimation des paramètres du groupe en question. Le groupe 1 semble bien reproduire la fin du spectre. Concernant l'irradiation intermédiaire présentée sur la figure 5.37, les observations pour les groupes 2 et 5 sont les mêmes que pour l'irradiation longue. De plus, la paramétrisation de Ganich surestime le spectre expérimental à l'endroit où les groupes 3 et 4 sont les plus présents. Nous en concluons que cette surestimation pourrait provenir du groupe 3 ou du groupe 4 ou des deux groupes ensemble. Enfin, l'irradiation courte (voir figure 5.38) confirme la sous-estimation du groupe 3 et/ou 4 et la surestimation du groupe 5.

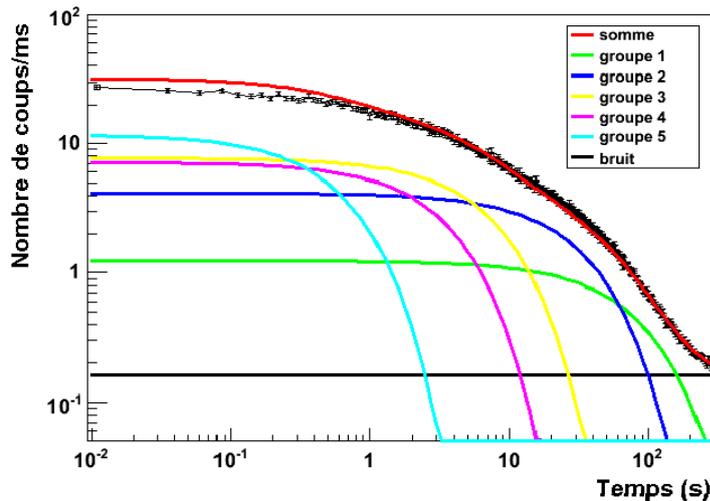


Figure 5.36 – Comparaison du spectre expérimental de l'irradiation 300 s avec la courbe paramétrée de Ganich ($\chi^2/ndf = 2,9$).

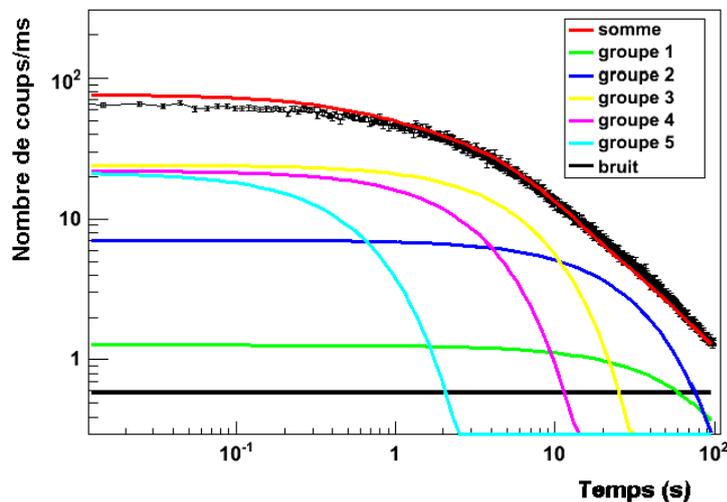


Figure 5.37 – Comparaison du spectre expérimental de l'irradiation 20 s avec la courbe paramétrée de Ganich ($\chi^2/ndf = 2,7$).

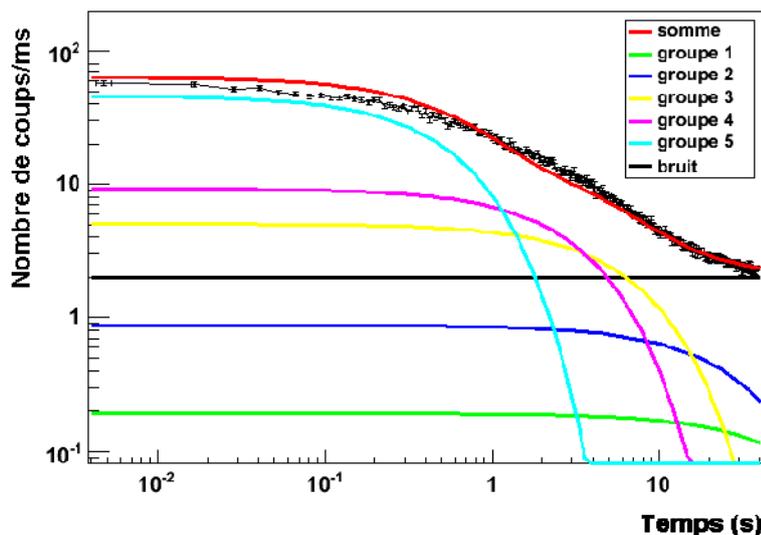


Figure 5.38 – Comparaison du spectre expérimental de l’irradiation 140 μ s avec la courbe paramétrée de Ganich ($\chi^2/ndf = 6,3$).

En conclusion de cette comparaison, les résultats de Ganich semblent sous-estimer la contribution du groupe 2. Celles des groupes 3 et 4 ou de l’un des deux sont surestimées. L’observation pour la contribution du groupe 5 est la même que pour les groupes 3 et/ou 4.

5.2.4 Analyse

La méthode d’analyse utilisée pour déterminer les paramètres des six groupes de neutrons retardés à partir des spectres expérimentaux du ^{237}Np pour une énergie électron de 15 MeV est la même que celle adoptée pour les mesures de l’ ^{235}U . Dans ce qui suit, l’extraction de ces paramètres des trois spectres expérimentaux sera présentée.

5.2.4.1. Irradiation 300 s – Décroissance 300 s

Nous avons pu déterminer les douze paramètres à partir de l’irradiation de 300 s. Les barres d’erreurs importantes sont pour les paramètres des groupes 3 à 6. Ce résultat est normal compte tenu du fait que cette irradiation sert à extraire les paramètres des groupes 1 et 2. Le tableau 5.18 regroupe les paramètres des six groupes déterminés par l’analyse et la figure 5.39 représente le résultat de l’ajustement numérique de nos paramètres sur la courbe expérimentale. Les contributions des six groupes sont aussi représentées. Ici aussi le bruit de fond a été ajusté et le résultat obtenu comparé aux mesures de bruit de fond. Aucun écart notable n’a été observé.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$5,63 \pm 0,27$	55,6
2	$22,46 \pm 0,84$	$21,12 \pm 0,76$
3	$15,19 \pm 7,7$	$5,85 \pm 0,91$
4	$41,4 \pm 5,6$	$2,52 \pm 0,48$
5	$10,9 \pm 5,24$	$0,50 \pm 0,17$
6	$4,21 \pm 0,64$	$0,275 \pm 0,063$

Tableau 5.18 – Valeurs des paramètres des groupes 1 à 6 déterminés de l’irradiation 300 s –300 s.

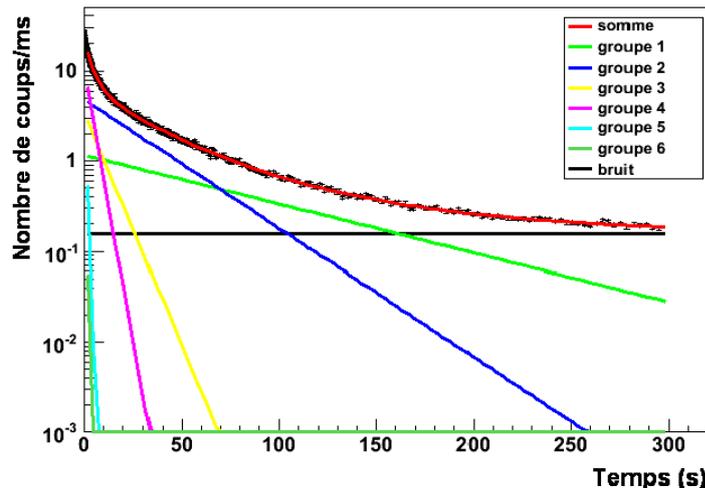


Figure 5.39 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation longue (300 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge).

5.2.4.2. Irradiation 20 s – Décroissance 100 s

L’irradiation 20s nous a permis d’extraire les paramètres des groupes 3 et 4. Cette fois-ci, nous avons pu extraire d’abord les paramètres du groupe 3 puis nous avons fixé ces paramètres pour déterminer ceux du groupe 4. Les barres d’erreurs des paramètres du groupe 3 n’ont pas pu être améliorées parce que l’ajustement numérique des paramètres se fait dans une zone plus étroite que pour les autres groupes. D’autre part, nous avons pu déterminer un autre groupe avec cette irradiation. Il s’agit de la somme des groupes 5 et 6. Il nous était difficile de déterminer séparément ces deux groupes. Le tableau 5.19 regroupe les paramètres extraits de cette irradiation et la figure 5.40 représente l’ajustement numérique (courbe rouge) du spectre expérimental (noir).

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
3	$25,0 \pm 6,74$	$5,05 \pm 0,60$
4	$34,2 \pm 2,3$	$2,06 \pm 0,083$
5+6	$11,54 \pm 0,67$	$0,456 \pm 0,045$

Tableau 5.19 – Valeurs des paramètres des groupes 3 à 6 déterminés suite à l’irradiation 20 s – 100 s.

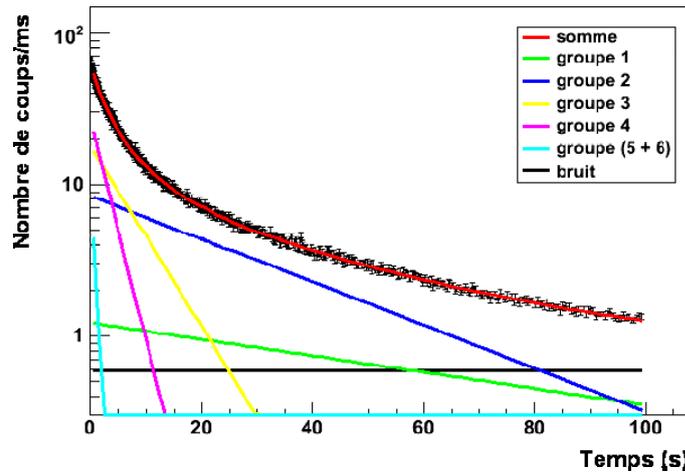


Figure 5.40 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation intermédiaire (20 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge).

5.2.4.3. Irradiation 140 μ s – 40 s

Enfin, nous déterminons les groupes 5 et 6 de l’irradiation courte. Le tableau 5.20 représente ces paramètres et la figure 5.41 montre l’extraction de ces paramètres.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
5	$9,56 \pm 0,99$	$0,50 \pm 0,06$
6	$3,22 \pm 0,21$	$0,196 \pm 0,016$

Tableau 5.20 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 déterminés de l’irradiation 140 μ s – 40s.

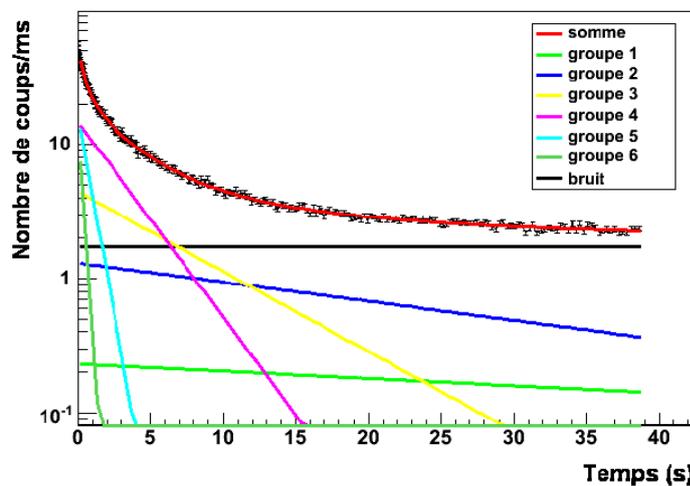


Figure 5.41 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation courte (140 μ s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge).

5.2.5 Résultat global

Les paramètres retenus de cette analyse sont regroupés dans le tableau 5.21. Les paramètres des groupes 1 et 2 sont déterminés une seule fois à partir de l'irradiation 300 s. Nous gardons les paramètres des groupes 3 et 4 extraits de l'irradiation intermédiaire et ceux du groupe 5 et 6 provenant de l'irradiation courte.

Groupe	a_i (%)	T_i (s)
1	$5,63 \pm 0,27$	55,6
2	$22,46 \pm 0,84$	21,12 \pm 0,76
3	$25,0 \pm 6,7$	5,05 \pm 0,60
4	$34,2 \pm 2,3$	2,06 \pm 0,08
5	$9,56 \pm 0,99$	0,50 \pm 0,06
6	$3,22 \pm 0,21$	0,196 \pm 0,016

Tableau 5.21 – Valeurs des paramètres temporels des six groupes des neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np ($E_e = 15$ MeV).

Nous vérifions que le jeu de paramètres des 6 groupes choisi reproduit bien les trois courbes expérimentales. Les figures 5.42, 5.43 et 5.44 montrent la reconstitution parfaite de ces courbes à l'aide des paramètres des 6 groupes de neutrons retardés issus de notre analyse des données.

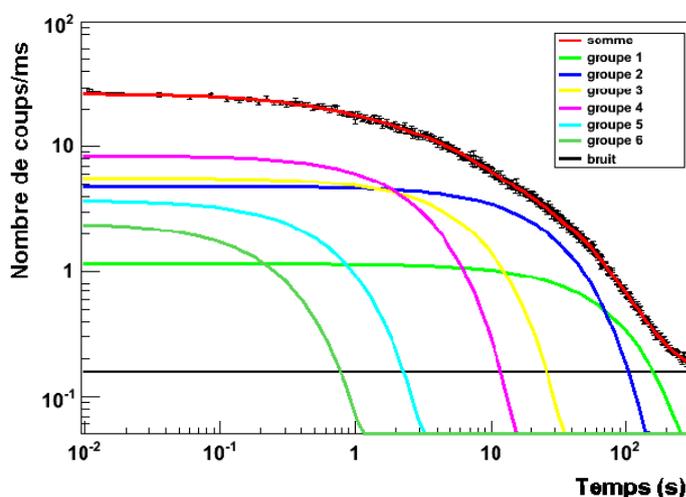


Figure 5.42 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 300 s ($\chi^2/\text{ndf} = 0,97$).

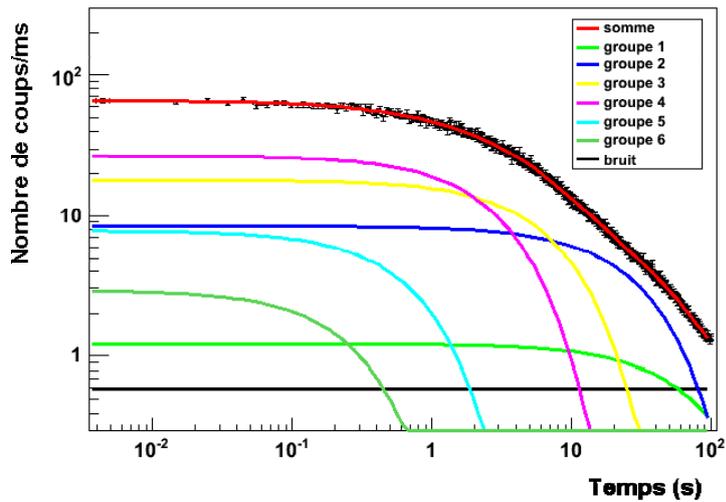


Figure 5.43 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 20 s ($\chi^2/\text{ndl} = 1,07$).

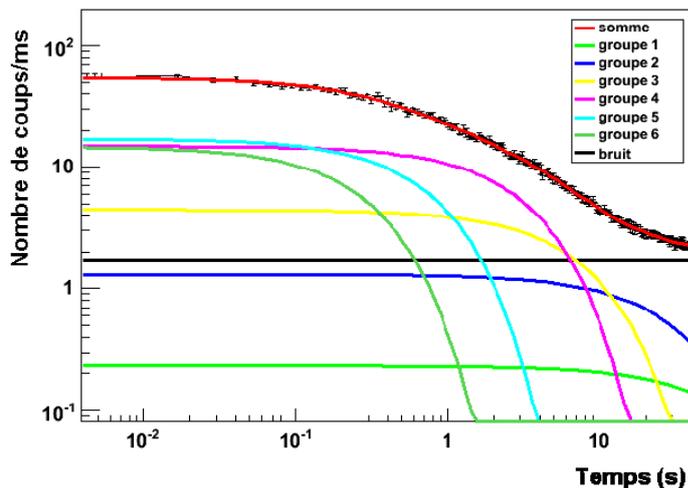


Figure 5.44 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 140 μs ($\chi^2/\text{ndl} = 1,15$).

5.2.6 Discussion des résultats

Dans ce qui suit, les paramètres de neutrons retardés déterminés à 15 MeV pour le ^{237}Np lors de cette expérience sont comparés à ceux trouvés dans EXFOR attribués à Ganich et ensuite à ceux de la modélisation.

5.2.6.1. Comparaison aux résultats de Ganich

Afin de comparer nos paramètres à ceux de Ganich représentés en 5 groupes, nous devons sommer les rendements des groupes 5 et 6. Les deux jeux de paramètres sont rappelés dans le tableau suivant (Tableau 5.22).

Groupe	a_i (%)	a_i (%) [Ganich]	T_i (s)	T_i [Ganich]
1	$5,63 \pm 0,27$	$5,16 \pm 0,59$	55,6	$54,4 \pm 1,0$
2	$22,46 \pm 0,84$	$16,88 \pm 2,22$	$21,12 \pm 0,76$	$21,2 \pm 1,4$
3	$25,0 \pm 6,7$	$29,63 \pm 3,7$	$5,05 \pm 0,60$	$4,74 \pm 0,3$
4	$34,2 \pm 2,3$	$25,33 \pm 2,96$	$2,06 \pm 0,08$	$2,2 \pm 0,25$
5	$9,56 \pm 0,99$	$22,96 \pm 4,44$	$0,50 \pm 0,06$	$0,4 \pm 0,2$
6	$3,22 \pm 0,21$		$0,196 \pm 0,016$	

Tableau 5.22 – Nos paramètres temporels des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np ($E_e = 15$ MeV) comparés à ceux de Ganich.

Concernant les constantes de décroissance, celles des groupes 1 à 4 sont en accord avec les nôtres. Par contre, un grand écart est observé pour celle du groupe 5. Celui-ci est expliqué par le fait que Ganich n'a extrait que 5 groupes de ces données, son groupe 5 englobe donc en réalité les groupes 5 et 6. Nous avons pu améliorer les incertitudes sur les temps de demi-vie des groupes 2, 4, 5 et 6.

Tout comme le tableau, la figure 5.45 compare les rendements relatifs correspondants aux deux jeux de paramètres.

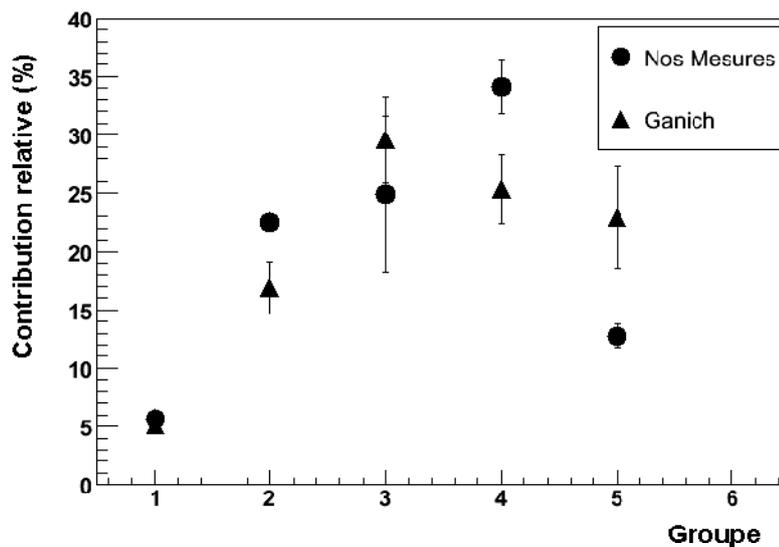


Figure 5.45 – Comparaison de nos paramètres de neutrons retardés du ^{237}Np à ceux de Ganich.

Sur la figure 5.45, nous constatons un grand écart entre les rendements des groupes 2 à 5. Cet écart est prévisible suite à la comparaison effectuée entre les paramètres de Ganich et nos spectres expérimentaux. En général, nous avons pu diminuer l'incertitude sur les rendements relatifs sauf celui du groupe 3. Nous n'avons aucune information concernant la méthode expérimentale. Il est donc difficile d'expliquer l'origine des écarts parce que seul un court article en russe résumant l'ensemble des mesures a été publié.

5.2.6.2. Comparaison à la modélisation

Les rendements relatifs et les temps de demi-vie des six groupes de neutrons retardés déterminés pour le ^{237}Np à 15 MeV sont comparés à ceux de la modélisation dans le tableau 5.23.

Groupe	a_i (%)	a_i (%) (modélisation)	T_i (s)	T_i (s) (modélisation)
1	$5,63 \pm 0,27$	5,5	55,6	55,6
2	$22,46 \pm 0,84$	26,2	$21,12 \pm 0,76$	20,6
3	$25,0 \pm 6,7$	22,1	$5,05 \pm 0,60$	5,0
4	$34,2 \pm 2,3$	36,7	$2,06 \pm 0,08$	2,1
5	$9,56 \pm 0,99$	7,9	$0,50 \pm 0,06$	0,47
6	$3,22 \pm 0,21$	1,5	$0,196 \pm 0,016$	0,20

Tableau 5.23 – Comparaison des résultats expérimentaux et de la modélisation.

Les temps de vie des deux jeux de paramètres sont plutôt en bon accord. Les rendements relatifs présentés sur la figure 5.46 montrent un écart pour les groupes 2, 5 et 6 comme dans le cas de l' ^{235}U .

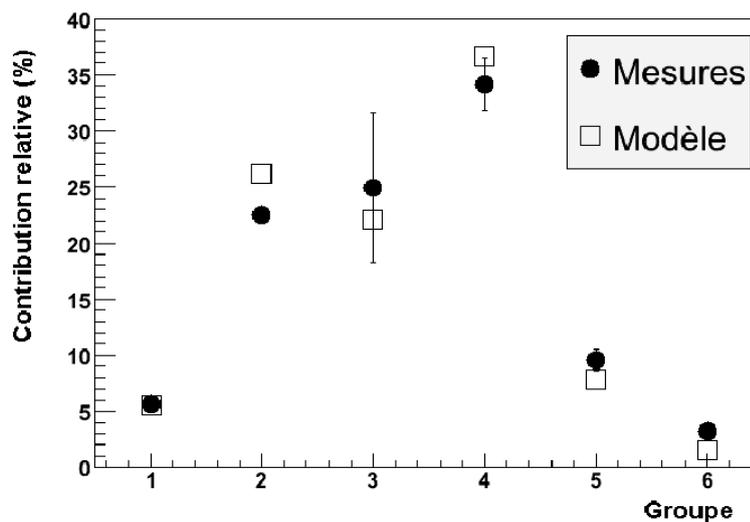


Figure 5.46 – Comparaison de nos rendements relatifs des six groupes de neutrons retardés du ^{237}Np à ceux de la modélisation.

La distribution en masse calculée par ABLA pour la photofission du ^{237}Np à 28 MeV [Dor07b] a été comparée aux valeurs expérimentales. La simulation reproduit mal les données expérimentales. Il est donc fort possible que ce désaccord soit vrai pour 15 MeV, mais il est impossible de le vérifier car aucune distribution de masse n'a été publiée pour cette énergie. Ceci explique l'écart observé entre les rendements relatifs des trois groupes cités ci-dessus. Un ajustement des paramètres du code ABLA est envisagé pour améliorer ces résultats.

Synthèse

Les mesures des paramètres de neutrons retardés issus de la photofission de ^{235}U ont été effectuées pour des énergies électron de 15 MeV et 18 MeV et celles pour le ^{237}Np ont été effectuées à 15 MeV. Le même traitement des spectres temporels et la même méthode d'analyse ont été adoptés pour ces mesures. Concernant ^{235}U , les rendements relatifs des groupes 3, 5 et 6 ont été corrigés à 15 MeV et les incertitudes ont été améliorées pour la plupart des paramètres. Pour la mesure à 18 MeV, elle est réalisée pour la première fois. Par ailleurs, nous avons conclu que la contribution de la fission induite par neutrons de ^{235}U et celle de la photofission de ^{238}U influencent peu les paramètres temporels des neutrons retardés trouvés pour ^{235}U à 15 et à 18 MeV. D'autre part, nous avons pu expliquer l'écart entre les paramètres de Kull et Nikotin en les comparant à nos paramètres obtenus à 15 MeV. Les nôtres sont en accord avec ceux de Kull. En conclusion, les paramètres mesurés à 10 MeV par Kull et nos paramètres à 15 MeV et 18 MeV sont en accord et aucune influence de la fission de seconde chance n'est observée.

Pour le ^{237}Np aucun résultat n'a été trouvé dans la littérature et la seule mesure répertoriée dans EXFOR est celle de Ganich. Il a déterminé les paramètres pour seulement cinq groupes. Seul le rendement relatif du groupe 1 de Ganich est en accord avec nos résultats. D'autre part, les périodes trouvées par Ganich sont cohérentes avec les nôtres sauf celle du groupe 5 qui regroupe en fait les groupes 5 et 6. Une amélioration de la plupart des incertitudes de ces paramètres a pu être réalisée.

Chapitre 6 Identification isotopique et quantification d'un mélange d'actinides

L'identification isotopique et la quantification d'un mélange d'actinides constituent ensemble l'une des applications importantes de la photofission [Kin05]. Sa mise en œuvre nécessite la connaissance précise aussi bien du rendement absolu de neutrons retardés que des paramètres des six groupes. L'identification est possible grâce aux paramètres de ces six groupes de neutrons retardés. En effet, chaque actinide est caractérisé par un spectre temporel bien défini comme nous l'avons vu tout au long de ce rapport. Par contre, la quantification de cette matière est possible grâce à la variation du rendement absolu de neutrons retardés selon l'actinide fissionnant. Dans le cas d'une application réelle, pour des raisons de temps, des irradiations courtes seront utilisées. Ceci implique que les paramètres des groupes 5 et 6, ayant de courtes demi-vies, joueront un rôle prépondérant et doivent être connus avec une bonne précision. Ces paramètres ont été déterminés et corrigés pour quelques actinides lors de notre campagne expérimentale. Dans l'objectif de tester la faisabilité de cette application, nous avons irradié des mélanges d'uranium-235 (^{235}U) et d'uranium-238 (^{238}U) de masses connues pendant l'expérience de novembre 2006.

Dans ce chapitre, nous verrons comment, en utilisant les résultats des chapitres 3 et 4, nous pouvons extraire les informations concernant les isotopes présents dans le mélange et leurs masses.

6.1 Démarche expérimentale

Trois mélanges constitués de cibles d' ^{235}U et d' ^{238}U placées dans une boîte de cadmium ont été irradiés par un faisceau de Bremsstrahlung de 15 MeV d'énergie maximale. Les cibles d' ^{235}U et d' ^{238}U utilisées sont celles présentées au chapitre 3 (voir section 3.3). Des cycles de 140 μs d'irradiation et de 40 s de décroissance ont été effectués pour chaque mélange. Les mélanges ont été irradiés deux fois : une fois avec l'échantillon d' ^{238}U devant l' ^{235}U (géométrie appelée « géométrie 1 » dans le tableau 6.1) et vice-versa (géométrie appelée « géométrie 2 ») afin de tester l'impact de l'atténuation des photons. Les nombres de cycles effectués pour les trois mélanges irradiés sont regroupés dans le tableau 6.1 :

Mélange	Nombre de cycles	
	Géométrie 1	Géométrie 2
(1) ^{238}U (~6 g) + ^{235}U (~11 g)	98	105
(2) ^{238}U (~12 g) + ^{235}U (~11 g)	90	100
(3) ^{238}U (~36 g) + ^{235}U (~11 g)	84	105

Tableau 6.1 – Nombre de cycles de 140 μs d'irradiation et de 40 s de décroissance effectué pour les trois mélanges et les deux géométries. Les numéros attribués aux mélanges seront utilisés pour les désigner ultérieurement dans ce chapitre.

Il est à noter que les 36 grammes d' ^{238}U n'ont pas été placés du même côté de la cible d' ^{235}U . Environ 30 g était d'un côté et 6 de l'autre.

Comme pour les autres expériences, des mesures de bruit de fond ont été réalisées. Ce bruit de fond est resté plutôt constant pendant ces mesures et était égal à $0,58 \pm 0,04$ cp/s.

6.2 Analyse des données

Le même traitement des données présenté aux chapitres 3 et 4 est appliqué ici. Les spectres sont corrigés des cycles incomplets, du bruit de fond provenant de l'électronique et des gammas, et du temps mort. Chacun de ces spectres est constitué des neutrons retardés provenant des réactions de photofission produites dans les deux cibles d' ^{235}U et d' ^{238}U . L'équation qu'il faut donc utiliser pour ajuster les spectres s'écrit ainsi :

$$Y_{dn}(t) = K^{235\text{U}} \sum_{i=1}^6 M_i^{pulse,finie} . M_i^{somme} . a_i^{235\text{U}} \exp(-\lambda_i^{235\text{U}} t) + K^{238\text{U}} \sum_{i=1}^6 M_i^{pulse,finie} . M_i^{somme} . a_i^{238\text{U}} \exp(-\lambda_i^{238\text{U}} t) \quad (6.1)$$

où $K^{235\text{U}}$, $K^{238\text{U}}$ sont des coefficients dépendants de l'intensité du faisceau d'électrons I , de l'efficacité du détecteur ε , du rendement absolu de neutrons retardés ν_d , du nombre de photofissions par gramme $N_{fiss/g}$ et de la masse m d'actinide.

$M_i^{pulse,finie}$, M_i^{somme} sont les facteurs correctifs déjà définis au chapitre 2.

$a_i^{235\text{U}}$, $a_i^{238\text{U}}$ sont les rendements relatifs des six groupes de neutrons retardés de l' ^{235}U et de l' ^{238}U respectivement.

$\lambda_i^{235\text{U}}$, $\lambda_i^{238\text{U}}$ sont les constantes de décroissance des six groupes de neutrons retardés de l' ^{235}U et de l' ^{238}U respectivement.

A l'aide du logiciel ROOT, un ajustement numérique de la courbe expérimentale est réalisé. Les coefficients $K^{235\text{U}}$ et $K^{238\text{U}}$ ainsi fournis par l'ajustement sont définis, tel que mentionné ci-dessus par les deux équations suivantes :

$$K^{235\text{U}} = I . \varepsilon . \nu_d^{235\text{U}} . N_{fiss/g}^{235\text{U}} . m_{235\text{U}} \quad (6.2)$$

$$K^{238\text{U}} = I . \varepsilon . \nu_d^{238\text{U}} . N_{fiss/g}^{238\text{U}} . m_{238\text{U}} \quad (6.3)$$

La masse de chaque actinide peut donc être déterminée de la façon suivante :

$$m_{235U} = \frac{K^{235U}}{I \cdot \mathcal{E} \cdot \nu_d \cdot N_{fiss/g}^{235U}} ; m_{238U} = \frac{K^{238U}}{I \cdot \mathcal{E} \cdot \nu_d \cdot N_{fiss/g}^{238U}} \quad (6.4)$$

Pour s'affranchir de la mesure de l'intensité et de l'efficacité, nous allons tout d'abord nous intéresser au rapport des masses d'actinides dans le mélange. Ce rapport s'écrit :

$$\frac{m_{238U}}{m_{235U}} = \frac{K^{238U} \cdot \nu_d^{235U} \cdot N_{fiss/g}^{235U}}{K^{235U} \cdot \nu_d^{238U} \cdot N_{fiss/g}^{238U}} \quad (6.5)$$

Ce rapport sera comparé aux rapports réels présentés dans le tableau 6.2 ci-dessous :

Mélange	Masse d' ²³⁸ U	Masse d' ²³⁵ U	Rapport des masses ²³⁸ U/ ²³⁵ U
(1)	6,23	11,64	0,54
(2)	12,14	11,685	1,04
(3)	37,63	11,702	3,22

Tableau 6.2 – Masses d'²³⁵U et d'²³⁸U contenues dans chaque mélange et leurs rapports.

Notons que la masse de chaque actinide listée dans ce tableau est celle de cet actinide présente dans le mélange c'est-à-dire que les impuretés de chaque cible sont prises en compte pour le calcul de la masse réelle.

6.3 Résultats

Dans ce qui suit, nous allons essayer, en premier lieu, d'identifier les isotopes contenus dans le mélange en utilisant les paramètres des six groupes à notre disposition. L'évolution du comptage en fonction de la masse d'actinide sera ensuite présentée. Le rapport des masses et les masses calculés à l'aide de l'équation (6.5) et (6.4) respectivement seront comparés à leurs valeurs réelles.

6.3.1 Identification isotopique

Nous avons essayé, tout d'abord, de reproduire les spectres temporels obtenus suite à l'irradiation des mélanges en utilisant les paramètres d'un seul actinide, ceux de ²³⁵U ou de ²³⁸U. Avec les paramètres d'un seul actinide, il était impossible de reproduire la courbe expérimentale.

Nous avons tenté ensuite de reproduire les spectres temporels obtenus avec les paramètres d'²³⁸U et d'²³⁵U déterminés par Nikotin pour une énergie électron de 15 MeV et par Kull pour une énergie électron de 10 MeV. L'ajustement du spectre avec les paramètres de Nikotin à l'aide de l'équation (6.1) a donné une valeur négative du coefficient K^{235U} , résultat non physique. Ce résultat n'est pas surprenant car, comme nous l'avons vu au chapitre 5, les paramètres de Nikotin pour les courtes durées de vie devaient être corrigés. De ce fait, ses paramètres ne permettent pas d'identifier les

isotopes contenus dans le mélange. Les paramètres de Kull permettent d'ajuster la courbe expérimentale (histogramme noir) comme on peut le voir sur la figure 6.1 où la contribution de ^{238}U est en gris clair et celle de ^{235}U en noir. La courbe en gris foncé représente la somme des deux contributions et du bruit de fond.

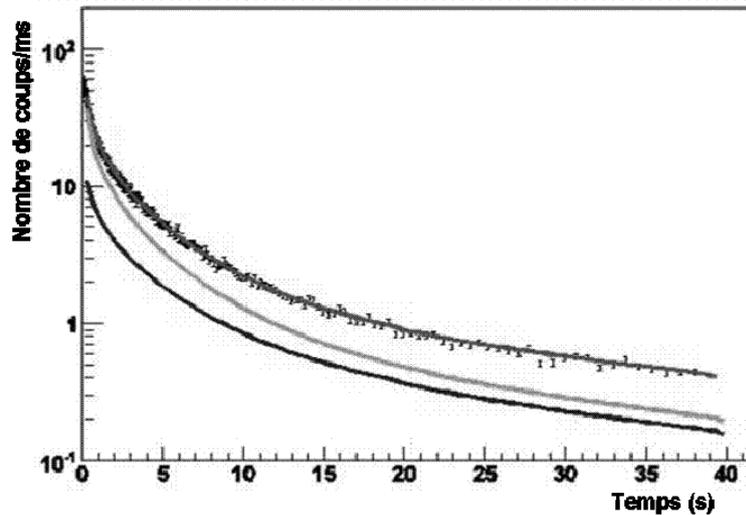


Figure 6.1 – Reproduction du spectre expérimental par une courbe paramétrée avec les paramètres de Kull pour ^{238}U et ^{235}U .

Sur la figure 6.2, l'ajustement réalisé en utilisant nos paramètres pour ^{235}U et ^{238}U est présenté. Le code de couleur pour les contributions est le même que pour la figure précédente. Nous remarquons un très bon accord entre la courbe rouge et notre mesure. Nos paramètres étant en accord avec ceux de Kull, il n'est pas surprenant que les deux jeux de paramètres ajustent bien la courbe expérimentale. Cependant le χ^2/ndf obtenu pour l'ajustement avec nos paramètres est meilleur que celui obtenu avec les paramètres de Kull.

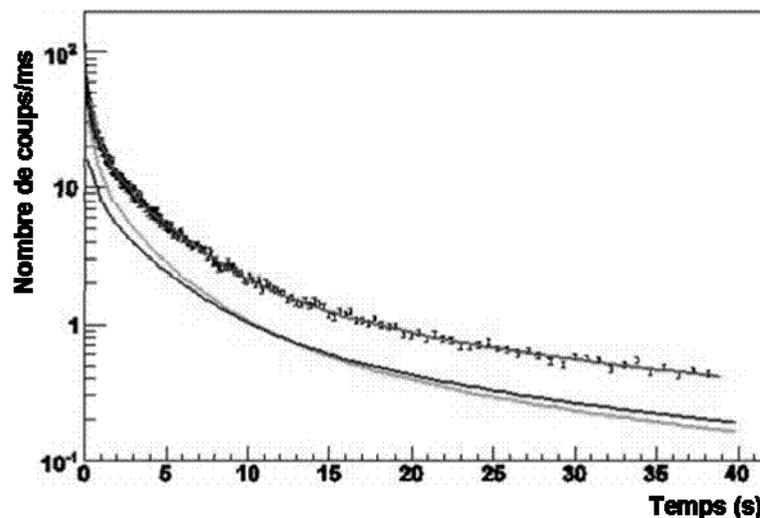


Figure 6.2 – Reproduction du spectre expérimental avec les paramètres des six groupes de neutrons retardés déterminés à 15 MeV d'énergie électron pour ^{235}U et ^{238}U .

Cette première étape montre ici encore qu'il est possible d'identifier isotopiquement un mélange de deux actinides. Cette méthode, en principe, serait adaptée afin de déterminer le taux d'enrichissement pour des échantillons de masses limitées.

6.3.2 Evolution du comptage avec la masse d' ^{235}U et d' ^{238}U

Un autre aspect étudié est celui de l'évolution du taux de comptage avec la masse d'actinide irradiée. La même cible d' ^{235}U est utilisée avec trois masses différentes d' ^{238}U (6,23 g, 12,14 g, 37,63g). Le comptage devrait donc augmenter proportionnellement avec la masse d' ^{238}U . Sur la figure 6.3, nous avons tracé le rapport des coefficients $K^{238\text{U}}$ et $K^{235\text{U}}$ et en fonction de la masse d' ^{238}U .

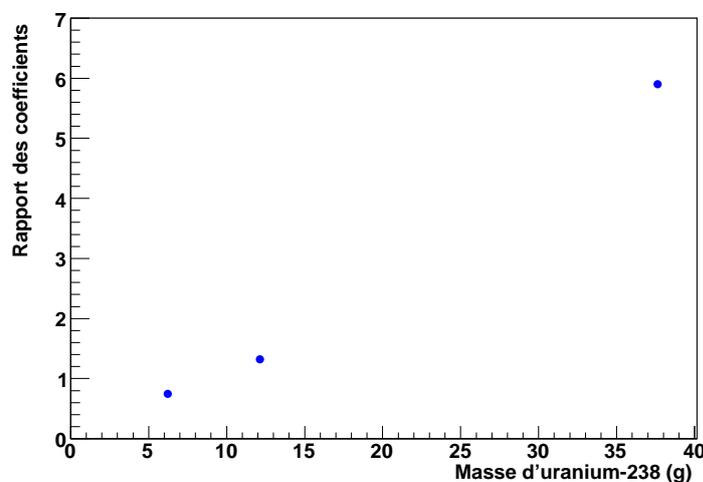


Figure 6.3 – Rapport des coefficients en fonction de la masse d'uranium-238 irradiée.

Nous pouvons constater sur la figure 6.3 une variation quasi linéaire de ce rapport suivant la masse d' ^{238}U irradiée. Cette évolution du rapport semble indiquer qu'une évaluation de la quantité de la masse irradiée est possible bien que cette observable soit de plus en plus perturbée par l'atténuation du flux incident de photons avec l'augmentation de la masse de l'échantillon.

6.3.3 Rapport des masses

Nous nous intéressons maintenant au rapport des masses. Celui-ci est calculé à l'aide de l'équation 6.5. Le nombre de fissions est calculé pour 10 g d' ^{238}U puis divisé par 10 pour obtenir le facteur $N_{\text{fiss/g}}$ de l'équation 6.5. En ce qui concerne l'autre paramètre important, le rendement absolu de neutrons retardés, nous utiliserons les valeurs déterminées au chapitre 4. Nous allons donc présenter sur la même figure les deux rapports : le réel (cercle) et celui extrait de nos mesures (carré). La figure 6.4 compare les deux rapports dans les cas où la cible d' ^{238}U est placée devant la cible d' ^{235}U et vice-versa.

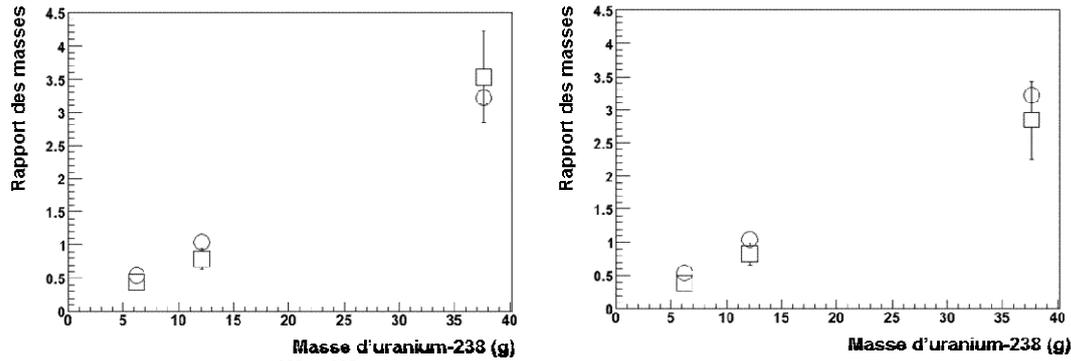


Figure 6.4 – Rapports ($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$) des masses réels (cercles) et calculés (carrés) tracés en fonction de la masse d' ^{238}U pour la Géométrie 1 (figure de gauche) et la Géométrie 2, (figure de droite).

A la vue de cette figure, nous constatons que le rapport calculé pour les deux géométries, augmente linéairement avec la masse de l' ^{238}U de la même façon que le rapport réel. L'écart observé entre les rapports réels et calculés, peut s'expliquer par l'atténuation des photons dans les cibles d' ^{235}U et d' ^{238}U . Pour confirmer cette explication, nous avons utilisé une autre approche pour calculer le nombre de fissions dans le mélange. Nous avons calculé le nombre de fissions par MCNPX pour les deux actinides et pour les géométries exactes et avons divisé ensuite par la masse totale de chaque actinide. Ce calcul permet d'avoir une valeur plus réaliste du nombre de fissions par gramme parce qu'il prend en compte toute la géométrie, l'atténuation du faisceau de photons dans les cibles et la distribution angulaire du flux de photons sur l'échantillon. Le rapport calculé avec cette approche (triangles) est comparé à celui obtenu précédemment sur la figure 6.5.

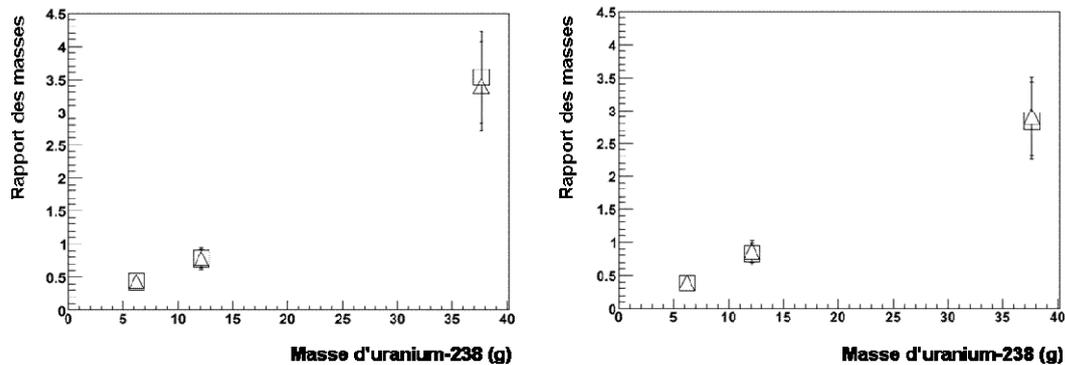


Figure 6.5 – Rapports des masses ($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$) calculés avec deux approches tracés en fonction de la masse d' ^{238}U dans le cas de la géométrie 1 (figure de gauche) et de la géométrie 2 (figure de droite).

Les deux rapports calculés sont en bon accord quelle que soit la masse d' ^{238}U . Ceci confirme notre explication de l'écart entre rapport réel et calculé.

6.3.4 Quantification des masses d'actinides

Nous abordons maintenant la comparaison de la masse réelle de chaque actinide dans le mélange à celle mesurée dans les deux configurations géométriques. Pour

cette évaluation, l'intensité du faisceau et l'efficacité de détection sont prises en compte. Les valeurs de masses obtenues sont regroupées dans le tableau 6.3.

Mélange d'actinides	Masse d' ²³⁵ U (g)			Masse d' ²³⁸ U (g)		
	réelle	Géométrie 1	Géométrie 2	réelle	Géométrie 1	Géométrie 2
(1)	11,64	13,30 ± 2,4	13,96 ± 2,5	6,23	5,93 ± 1,1	5,4 ± 1,0
(2)	11,685	16,70 ± 3,0	15,03 ± 2,7	12,14	13,20 ± 2,5	11,9 ± 2,2
(3)	11,702	9,95 ± 1,8	11,04 ± 2,1	37,63	35,10 ± 6,6	31,3 ± 6,0

Tableau 6.3 – Masses réelles et mesurées d'²³⁵U et d'²³⁸U contenues dans chaque mélange.

Tout d'abord, nous constatons que la masse mesurée de l'actinide est généralement plus près de la masse réelle si ce dernier est placé du côté du faisceau. Pour l'²³⁸U, toutes les masses mesurées sont plutôt en accord avec la masse réelle. Pour l'²³⁵U, dans le cas du mélange (1), nous surestimons la masse, mais la valeur réelle reste dans la plage de variation de celle mesurée. Par contre, pour le mélange (2), l'écart entre la masse réelle et la masse mesurée dépasse 20 %. Cet écart est dû en partie au fait que la cible d'²³⁸U de 10 g à une épaisseur de 0,2 cm c'est-à-dire 10 fois plus épaisse que celle de l'²³⁵U (épaisseur de 0,02 cm). Dans le cas du mélange (3), les masses mesurées d'²³⁵U sont très proches des masses réelles. L'écart entre les résultats des mélanges (1) et (3), mélanges pour lesquels l'absorption a un impact limité, provient de la différence du rapport du nombre total de neutrons émis par l'²³⁸U sur l'²³⁵U pour les deux mélanges. Pour le cas (1), le rapport est proche de 1 alors que pour le cas (3) il est d'environ 5. Cette observation est directement liée à la sensibilité de la méthode.

Synthèse

Dans ce chapitre, une des applications possibles de la photofission a été présentée. En effet, l'identification isotopique et la quantification d'un mélange d'actinides est un enjeu important en ce qui concerne l'évaluation de l'enrichissement de matières nucléaires (non-prolifération) et aussi la caractérisation des déchets nucléaires en vue de leur stockage. La faisabilité de cette application a été démontrée ici pour un cas simplifié. Nous avons montré que l'identification isotopique d'un mélange d'²³⁵U et d'²³⁸U est possible en utilisant nos paramètres des six groupes de neutrons retardés pour ces deux actinides. D'autre part, une variation proportionnelle du comptage par rapport à la masse irradiée a montré que l'évaluation de la quantité de masse irradiée est possible avec cette application. Le rapport des masses d'isotopes présente un accord satisfaisant avec les rapports réels. Les écarts observés sont en partie dus à l'atténuation des photons dans les cibles d'actinides et deviennent de plus en plus importants avec l'augmentation de l'épaisseur des cibles. Enfin, les masses déterminées expérimentalement sont plutôt en bon accord avec les valeurs réelles. Les écarts observés montrent la sensibilité de la méthode.

Cette étude montre qu'il sera possible de quantifier les masses d'isotopes pour des échantillons pour lesquels l'absorption ne sera pas trop importante. Des mesures avec d'autres mélanges d'actinides (²³⁹Pu) et ²³⁵U/²³⁸U/²³⁹Pu sont prévues en 2008.

Deuxième partie

En 2004, nous avons validé notre méthode expérimentale d'extraction des paramètres des groupes et des rendements absolus de neutrons retardés pour la fission induite par neutron de ^{238}U [Gia05]. Cette première expérience en fission induite par neutron a été concluante et nous a incités à poursuivre nos activités dans ce domaine parallèlement à nos expériences de photofission. Cet intérêt a aussi été motivé par les recommandations de l'OECD/NEA [Pro99] sur la nécessité des mesures de rendements absolus et de spectres temporels des neutrons retardés pour des isotopes du Pu et des noyaux contribuant au cycle de Th. Nous avons donc entrepris les mesures de rendements absolus du ^{232}Th sur une large gamme en énergie de neutron. Cette seconde partie de la thèse est donc dédiée à la présentation des résultats de ces mesures.

Chapitre 7 Mesure du rendement absolu de neutrons retardés du ^{232}Th

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à la mesure du nombre total de neutrons retardés (ν_d) issus de la fission induite par neutrons du ^{232}Th . La figure 7.1 montre l'évolution du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Outre la rareté des mesures [Mea78], nous constatons un écart entre les valeurs mesurées de ν_d pour des énergies de neutrons plus petites que 4 MeV. Cet écart devient plus important à plus haute énergie ($E_n \geq 14$ MeV). De ce fait, les données retenues pour les évaluations par Yoshida et al. [Yos04] (motifs pleins) sont peu nombreuses. Nous observons aussi une diminution de la valeur de ν_d en fonction de l'énergie des neutrons incidents pour la courbe évaluée. Celle-ci est généralement expliquée par l'ouverture de la voie de la fission de seconde chance. La diminution présentée par l'évaluation ne repose ici sur aucune donnée expérimentale. Nous constatons aussi l'absence des mesures de la valeur de ν_d entre 4 et 14 MeV. Entre 8 et 14 MeV, il est difficile voire impossible de produire des faisceaux de neutrons monocinétiques. Cependant entre 4 et 8 MeV, des faisceaux monocinétiques peuvent être produits mais, à notre connaissance, aucune mesure n'a été réalisée jusqu'à maintenant.

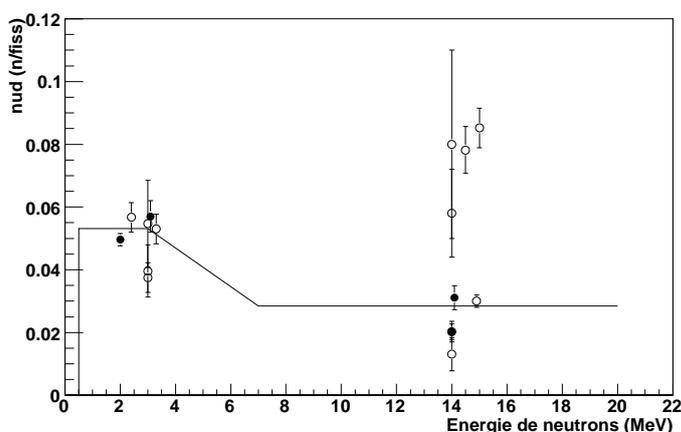


Figure 7.1 – Le rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie des neutrons incidents.

Dans l'objectif d'explorer le domaine en énergie entre 4 et 8 MeV, nous avons lancé une campagne expérimentale pour mesurer la valeur de ν_d pour la fission du ^{232}Th induite par neutrons. Deux expériences ont été effectuées, l'une auprès de l'accélérateur de 4 MV Van de Graaff et l'autre au tandem (7MV). Elles seront présentées successivement dans ce chapitre.

7.1 Expérience au 4 MV

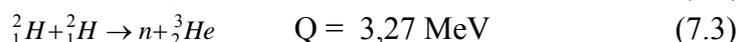
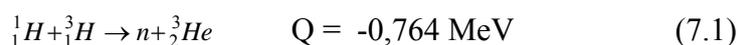
Notre campagne expérimentale a commencé en 2005 au 4 MV. Nous avons débuté les mesures des rendements absolus de neutrons retardés du ^{232}Th par une

mesure à 2 MeV. Cette mesure qui a été réalisée antérieurement par Keepin [Kee57] servait ici à valider notre stratégie de mesure et notre méthode d'analyse. Nous avons ensuite effectué des mesures pour des énergies de neutrons de 2,4, 3,5, 3,8, 5,0, 16,0 et 17,0 MeV.

Nous présenterons d'abord le dispositif expérimental utilisé pour réaliser ces expériences, puis la stratégie des mesures sera expliquée. Les mesures et l'analyse des données seront ensuite détaillées. Enfin, les résultats seront discutés et comparés aux mesures antérieures et aux évaluations.

7.1.1 Production du faisceau de neutrons au 4 MV

Cette expérience s'est déroulée auprès de l'accélérateur de 4 MV Van de Graaff situé au CEA/DIF/DPTA/SPN à Bruyères-le-Châtel. L'accélérateur fournit des faisceaux de protons et de deutons d'énergies allant de 500 keV à 4 MeV. Les réactions de ces particules avec des cibles de TiT (titane tritiée), Li ou deutérium permettent d'obtenir des faisceaux de neutrons mono énergétiques dans certaines conditions. Les sections efficaces différentielles de production de neutrons pour plusieurs réactions sont présentées sur la figure 7.2. Nous voulons utiliser des neutrons monocinétiques d'énergies comprises entre 2 et 17 MeV. Pour ce faire, nous avons choisi les trois réactions suivantes :



La réaction des protons sur la cible de titane tritiée nous a permis de produire des faisceaux de neutrons monocinétiques pour des énergies de 2,0 et de 2,4 MeV alors que les neutrons de 16,0 et 17,0 MeV ont été obtenus par la réaction des deutons sur le tritium. Les neutrons d'énergies 3,5, 3,8 et 5,0 MeV, quant à eux, ont été produits suite à l'interaction des deutons avec la cible de deutérium.

Au 4 MV du DPTA/SPN, le flux de neutrons est contrôlé par un détecteur BF₃ (fluorure de bore) ou un NE213 selon l'énergie des neutrons incidents. Les moniteurs (figure 7.3a) sont placés à 20° de l'axe du faisceau et à 3 m et 2 m de la cible de production pour le BF₃ et le NE213 respectivement. La cible de thorium est formée de deux cylindres superposés de 2,6 cm de diamètre et de 5 cm de longueur totale. Sa masse totale est de 303 g. Cette cible est placée à 9,5 cm de la cible de production de neutrons et à 20° de l'axe du faisceau primaire.

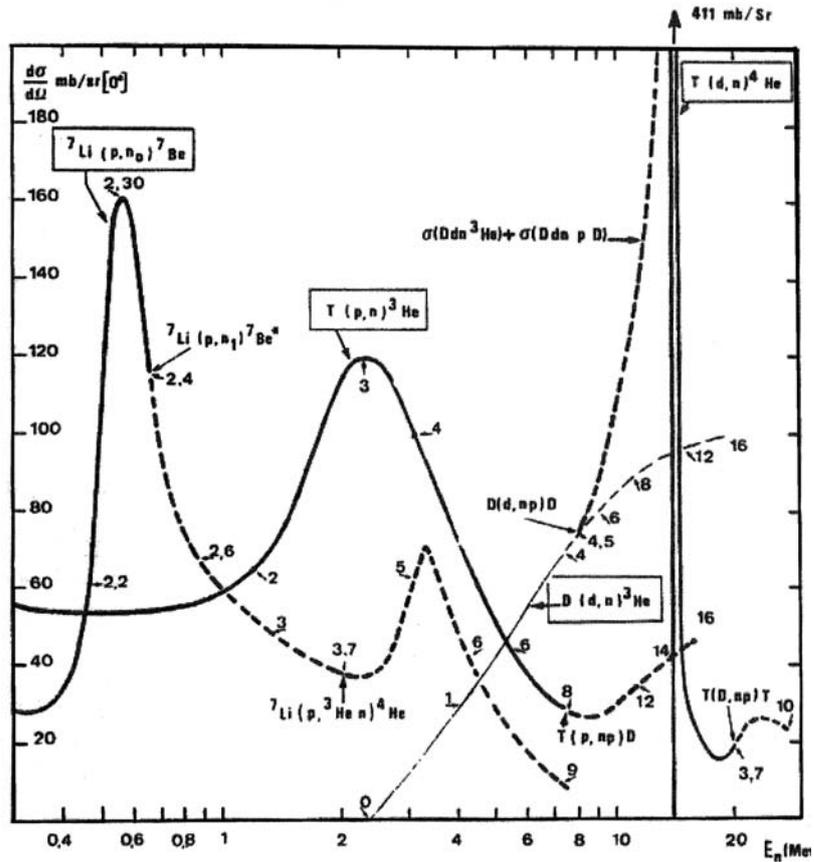


Figure 7.2 – La section efficace différentielle de la production de neutrons monocinétiques à 0°. Pour la partie des courbes en pointillé, les neutrons ne sont plus monocinétiques [Lan04].

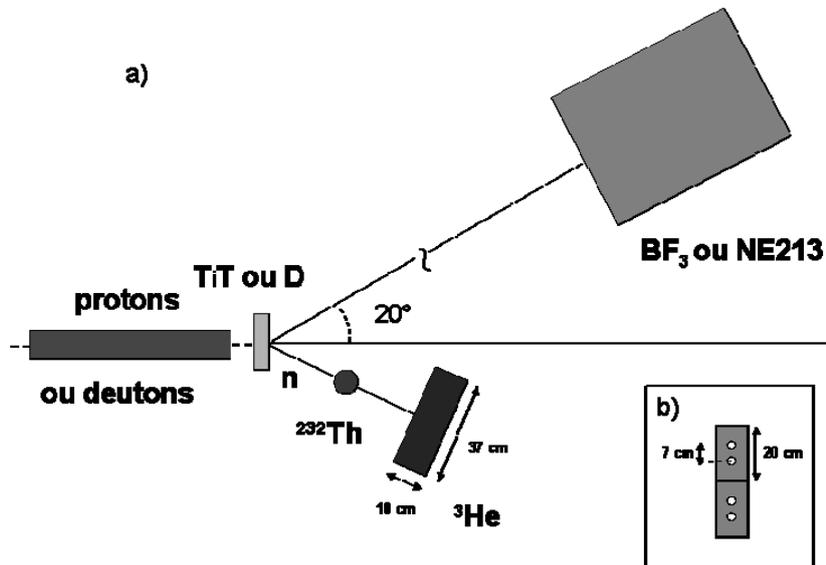


Figure 7.3 – a) Schéma du dispositif expérimental au 4MV ; b) Emplacement des compteurs dans les deux blocs de polyéthylène.

7.1.2 Système de détection

Le système de détection, utilisé pendant cette expérience est basé, comme pour les expériences de photofission, sur la modération des neutrons dans du polyéthylène suivi de leur détection dans des compteurs ^3He . Deux détecteurs formés chacun de deux compteurs ^3He placés dans un bloc de polyéthylène constituent le système de détection. Les compteurs ^3He ont les mêmes caractéristiques que ceux utilisés pour les expériences de photofission (4 bar, 2,5 cm de diamètre, 30 cm de longueur). L'emplacement des compteurs dans les blocs et l'épaisseur de polyéthylène ont été optimisés, à l'aide des calculs MCNPX, pour obtenir une grande efficacité qui soit constante en fonction de l'énergie des neutrons retardés qui est comprise entre 0,1 et 1,2 MeV. Chaque détecteur a les dimensions suivantes : une longueur de 37 cm, une largeur de 10 cm et une hauteur de 20 cm. Les compteurs sont disposés dans les blocs tels qu'illustré sur la figure 7.3b. L'ensemble de détection, enveloppé par une couche de cadmium (Cd) de 1 mm d'épaisseur pour réduire le bruit de fond dû aux neutrons thermiques, est placé à 10 cm de la cible de thorium.

L'efficacité du système de détection est mesurée par une source de californium (^{252}Cf) d'énergie moyenne de neutrons de 2,2 MeV et comparée au calcul MCNPX réalisée avec la géométrie complète de l'expérience. Les deux valeurs de l'efficacité, mesurée et calculée, sont présentées sur la figure 7.4. Un écart de 5,6% est observé. L'efficacité du système de détection a été aussi calculée pour des sources de neutrons dont les dimensions sont celles de la cible de ^{232}Th et dont les énergies sont celles des neutrons retardés. Ces calculs sont présentés sur la même figure 7.4 (motifs vides). Ils sont ensuite corrigés de l'écart entre l'efficacité mesurée et calculée pour le californium (motifs pleins). L'efficacité moyenne sur l'ensemble des points est de $(2,2 \pm 0,1) \%$. L'incertitude sur la valeur de l'efficacité moyenne est évaluée afin qu'elle encadre toutes les valeurs de l'efficacité calculées et corrigées (motifs pleins).

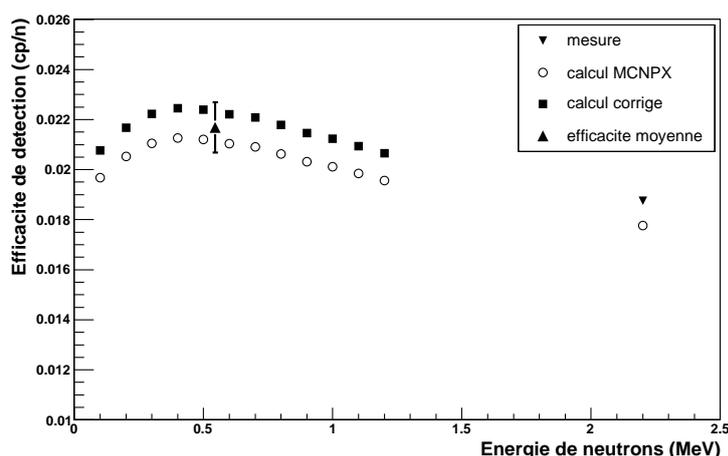


Figure 7.4 – Efficacité du système de détection en fonction de l'énergie des neutrons.

7.1.3 Acquisition et électronique

Le signal de sortie du détecteur est amplifié par un préamplificateur DEXTRAY ACHN92. La sortie logique du préamplificateur est connectée à une carte

d'acquisition. Cette carte est une échelle de comptage MCS (Multi Channel Scaling) possédant 8192 canaux. La largeur d'un canal est réglable entre 2 μ s et 10s. Pendant cette expérience, il a été fixé à 10 ms. L'acquisition est déclenchée par un module électronique DG535 (cf. 3.5.1), ce module pilote aussi la cage de Faraday. Cette dernière est utilisée pour couper le faisceau lors des mesures.

7.1.4 Stratégie de mesures

La mesure du rendement absolu (v_d) de neutrons retardés peut être effectuée soit après une irradiation courte en intégrant le nombre de neutrons retardés émis et en le divisant par le temps d'irradiation, soit après une irradiation longue en cherchant le nombre de neutrons retardés total émis à ($t = 0$ s) (cf. 2.4). Au 4 MV, l'accélérateur ne peut délivrer une courte impulsion faisceau. La méthode utilisant l'irradiation longue a donc été adoptée. La stratégie de mesure choisie est la suivante : nous pré-irradions la cible de ^{232}Th pendant une durée de cinq minutes afin que tous les produits de fission soient à l'équilibre puis nous maintenons l'équilibre par une série d'irradiations et de décroissances de 7s-1s respectivement. Le rendement absolu de neutrons retardés est donc extrait de la valeur à $t=0$ du spectre de décroissance des produits de fission et est calculé à l'aide de la formule suivante :

$$v_d = \frac{N_{\text{He}}(t=0)}{N_{\text{fiss}} \cdot \varepsilon} \quad (7.4)$$

$N_{\text{He}}(t=0)$ le nombre de coups cumulés à $t=0$ s après l'arrêt de faisceau.

ε l'efficacité du système de détection en cp/n.

N_{fiss} le nombre total de fissions calculé par MCNPX et normalisé à l'aide de la mesure du moniteur de flux en fiss/s.

7.1.5 Mesures

Deux séries de mesures de la valeur de v_d ont été effectuées avec deux cibles de production différentes. La première série effectuée avec une cible de titane tritiée et des faisceaux de protons et deutons a permis d'extraire la valeur de v_d pour une énergie de neutrons de 2,0, 2,4 et 16,0 MeV, la mesure à 17 MeV n'étant pas exploitable. Pour chaque énergie neutron étudiée, une mesure de bruit de fond a été faite en retirant la cible de thorium et en appliquant le même cycle d'irradiations et de décroissance.

Pour la mesure à 2 MeV, nous avons effectué 600 cycles de 7 s d'irradiation et d'une seconde de décroissance, ceci après les 5 minutes de pré-irradiation. L'intensité de faisceau était de 7 μ A. La figure 7.5a montre le signal enregistré (histogramme continu) pendant la présence du faisceau de neutrons incidents puis pendant la décroissance des précurseurs (1s). Le bruit de fond (figure 7.5a, histogramme pointillé) mesuré pour la même énergie montre une légère décroissance non attendue (canaux 60 à 80). Lors de l'analyse de la mesure de 2 MeV, cette décroissance bien qu'inexpliquée sera prise en compte. La figure 7.5b montre le signal enregistré

quelques dizaine de millisecondes avant l'arrêt du faisceau et pendant la seconde de décroissance. Comme nous l'avons déjà dit, une cage de Faraday nous sert à couper le faisceau. La descente de cette cage, qui dure 40 ms pour cette mesure, est bien vue sur la figure 7.5b.

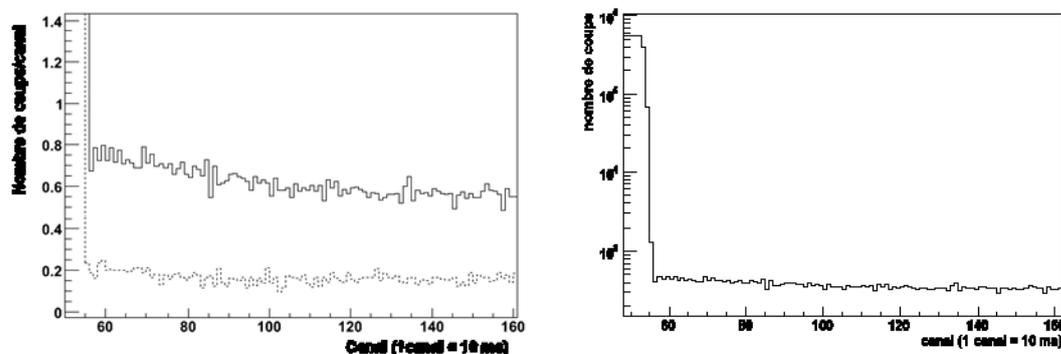


Figure 7.5 – a) Superposition de la mesure (continu) et du bruit de fond (pointillé) par cycle d'irradiation pour une énergie de neutrons de 2,0 MeV – b) Le signal montrant la chute de la cage de Faraday .

La qualité des mesures de signal et de bruit à 2,4 MeV est semblable à celle obtenue à 2,0 MeV. Le bruit est constant pour cette mesure. Les mesures réalisées à 16,0 MeV avec et sans cible sont présentées sur la figure 7.6. Nous constatons que la décroissance pour la mesure (histogramme continu) avec la cible n'apparaît pas. Le bruit (histogramme pointillé) noie la forme du signal. Le bruit sera donc soustrait du signal lors de l'analyse.

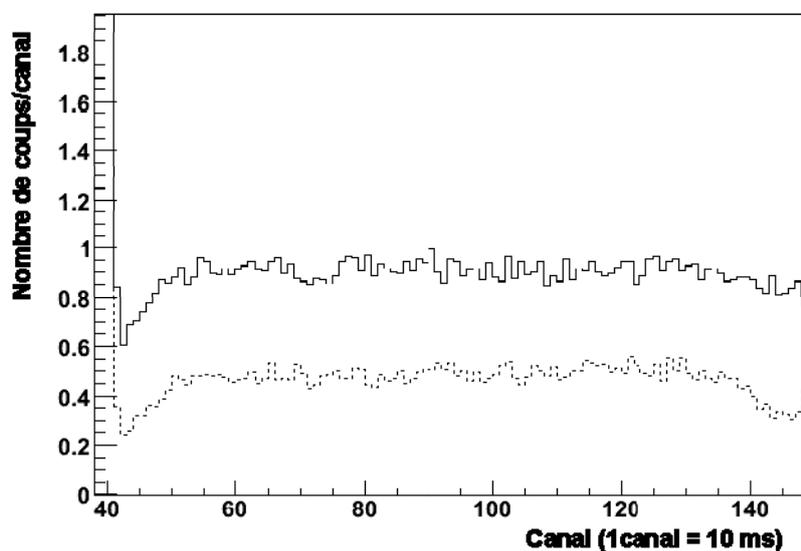


Figure 7.6 – Superposition de la mesure (continu) et du bruit de fond (pointillé) par cycle d'irradiation pour une énergie de neutrons de 16,0 MeV.

La dernière mesure effectuée avec la cible de titane tritiée est pour une énergie de neutrons de 17,0 MeV. Comme pour la mesure à 16,0 MeV, le bruit masque la décroissance pour la mesure avec cible. Cependant, contrairement à la

mesure à 16,0 MeV, ici après avoir soustrait le bruit de fond du signal, aucune décroissance n'est visible. Cette mesure n'est donc pas exploitable.

Les tableaux 7.1 et 7.2 récapitulent les intensités du faisceau, le nombre de cycles et le type de moniteur utilisé pour les mesures de v_d et de bruit de fond réalisées avec la cible de TiT.

Energie de neutrons (MeV)	Intensité du faisceau (μA)	Nombre de cycles	Moniteur de flux
2,0	7	600	BF ₃
2,4	5	500	BF ₃
16,0	5,5	1000	NE213

Tableau 7.1 – Résumé des mesures du rendement absolu de neutrons retardés du ²³²Th réalisées avec la cible de production de titane tritiée.

Energie de neutrons (MeV)	Intensité du faisceau (μA)	Nombre de cycles	Moniteur de flux
2,0	7	300	BF ₃
2,4	5	150	BF ₃
16,0	5,5	500	NE213

Tableau 7.2 – Résumé des mesures du bruit de fond réalisées avec la cible de production de titane tritiée.

La deuxième série de mesures visait à extraire les valeurs de v_d pour les énergies de neutrons comprises entre 3,5 et 5,0 MeV. Les faisceaux de neutrons ont été produits par un faisceau de deutons sur une cible de deutérium. Le moniteur de flux qui a été utilisé pour toutes ces mesures est le BF₃. Les tableaux 7.3 et 7.4 regroupent les informations concernant le nombre de cycles et l'intensité du faisceau pour les mesures de rendements absolus de neutrons retardés et pour le bruit respectivement. La figure 7.7 montre le spectre temporel obtenu avec (histogramme continu) et sans cible (histogramme pointillé) à 3,5 MeV. Ce spectre, comme les deux autres obtenus à 3,8 et 5,0 MeV ne présente aucune décroissance. Pour les trois énergies étudiées, le bruit de fond est constant en fonction de la durée de la mesure. Ce bruit provient très probablement de la cassure du deuton en amont de la cible de production, les neutrons ainsi produits rendent les données inexploitables.

Energie de neutrons (MeV)	Intensité du faisceau (μA)	Nombre de cycles
3,5	6	780
3,8	7	1050
5,0	5,5	450

Tableau 7.3 – Résumé des mesures du rendement absolu de neutrons retardés du ²³²Th réalisées avec la cible de production de deutérium.

Energie de neutrons (MeV)	Intensité du faisceau (μA)	Nombre de cycles
3,5	6	575
3,8	7,3	500
5,0	5,5	150

Tableau 7.4 – Résumé des mesures du bruit de fond réalisées avec la cible de production de deutérium.

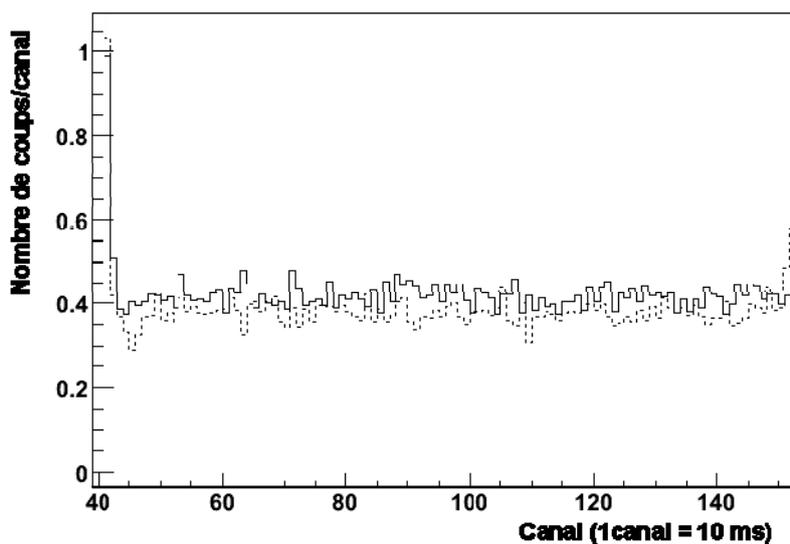


Figure 7.7 – Superposition de la mesure (continu) et du bruit de fond (pointillé) par cycle d'irradiation pour une énergie de neutrons de 3,5 MeV.

7.1.6 Analyse des données

Nous avons vu à la section 7.1.4 que le nombre de neutrons retardés total peut être déterminé à partir de la valeur à $t = 0$ s du spectre d'émission de neutrons retardés dans le cas d'une irradiation longue. Dans le cas de nos mesures, cette valeur ne peut pas être extraite proprement du spectre mesuré à cause du temps de la descente de la cage de Faraday qui est de 40 ms dans le cas de la mesure de 2 MeV. Cette descente est visible sur la figure 7.5b qui illustre la mesure du rendement absolu pour une énergie de 2,0 MeV. Pour corriger cela, il a fallu faire une extrapolation numérique des spectres temporels avec la méthode des moindres carrés (χ^2) implantée dans le logiciel ROOT pour extraire la valeur à $t=0$ s.

Afin de mieux choisir la fonction pour l'ajustement numérique, nous nous inspirons des paramètres des six groupes de neutrons du ^{232}Th présentés ci-dessous dans le tableau 7.5.

Groupe	ai (%)	Ti (s)
1	3,4 ± 0,2	56,03 ± 0,95
2	15,0 ± 0,5	20,75 ± 0,66
3	15,50 ± 2,1	5,74 ± 0,24
4	44,60 ± 1,5	2,16 ± 0,08
5	17,20 ± 1,3	0,571 ± 0,042
6	4,3 ± 0,6	0,211 ± 0,019

Tableau 7.5 – Paramètres des six groupes des neutrons retardés du ²³²Th [Kee57] pour un spectre rapide de neutrons.

Pendant la seconde sans faisceau, les groupes à vie longue 1, 2 et 3 ont une contribution quasi-constante et les groupes à vie courte 4, 5 et 6 ont une contribution décroissante. De ce fait, l'équation à utiliser pour l'ajustement numérique doit prendre en compte, outre le bruit, la partie constante des groupes à vie longue et la partie décroissante des groupes à vie courte que nous pouvons écrire :

$$f(t) = B(t) + a + be^{-\lambda t} \quad (7.5)$$

- $B(t)$ bruit en fonction de temps (en cps/s)
- a contribution des groupes 1, 2 et 3 (en cps/s)
- $be^{-\lambda t}$ contribution des groupes 4, 5 et 6 (en cps/s)

Nous avons vu au paragraphe 7.1.5 que le bruit a varié selon les mesures. Alors, une dépendance temporelle appropriée du bruit est choisie pour chaque analyse. Le nombre de coups à $t = 0$ s est donc égal à la valeur de la fonction à $t = 0$ s à laquelle nous soustrayons le bruit de fond.

7.1.7 Rendement absolu de neutrons retardés

En utilisant la formule (7.4), nous calculons le nombre total de neutrons retardés émis par la fission induite par neutrons de 2 ; 2,4 et 16,0 MeV du ²³²Th. Dans le cas des mesures à 2 MeV, le $N_{3He}(t=0)$ est calculé à l'aide de $f(0)$ dont on soustrait le bruit de fond mesuré. Ce dernier est paramétrisé avec deux composantes : l'une constante et l'autre décroissante. La figure 7.8 montre le résultat de l'ajustement numérique des paramètres de l'équation (7.5) (courbe rouge) sur le spectre expérimental pour la mesure à 2 MeV (noir). La contribution du bruit de fond (courbe verte) et celle des neutrons retardés (courbe bleue) sont aussi présentées sur cette figure.

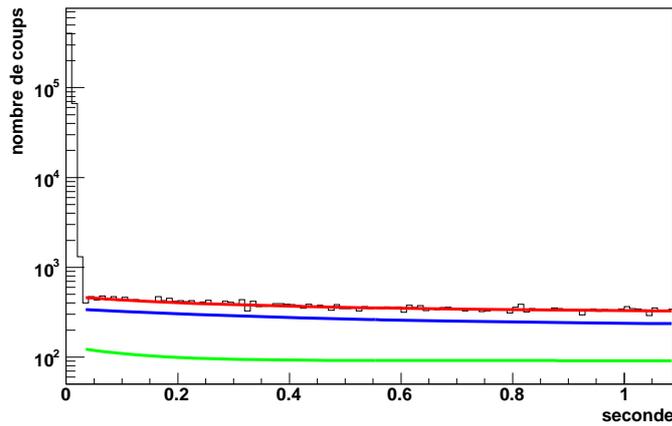


Figure 7.8 – Résultat de l’ajustement numérique des paramètres de l’équation (7.5) (courbe rouge) sur le spectre expérimental pour la mesure à 2 MeV (noir).

$N_{^3\text{He}}(t=0)$ est égal à $59,6 \pm 2,0$ cps/s. L’incertitude sur la valeur de $N_{^3\text{He}}(t=0)$ a été évaluée en faisant varier les paramètres donnés par ROOT dans leurs barres d’erreurs. Le nombre de fissions est de $5,53 \cdot 10^4 \pm 0,48 \cdot 10^4$ fissions/s, l’incertitude est calculée à partir de l’erreur sur la section efficace de la fission induite par neutrons de 2 MeV de ^{232}Th et de celle sur la mesure de flux de neutrons du BF_3 . L’efficacité est de $(2,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-2}$. Nous obtenons de l’équation (7.4) la valeur du rendement absolu de $4,98 \pm 0,52$ n/100fissions.

Concernant la mesure à 2,4 MeV, nous avons vu que le bruit est constant (cf. 7.1.5). Il aura donc une contribution constante dans l’équation (7.5). L’ajustement numérique de cette équation (courbe rouge) sur le spectre expérimental (noir) à 2,4 MeV est illustré sur la figure 7.9. La contribution constante du bruit (en vert) est aussi illustrée sur cette figure avec celle des neutrons retardés (courbe bleue). La valeur de $N_{^3\text{He}}(t=0)$ est extraite de la valeur à $(t=0)$ de $f(t)$ duquel le bruit de fond est soustrait.

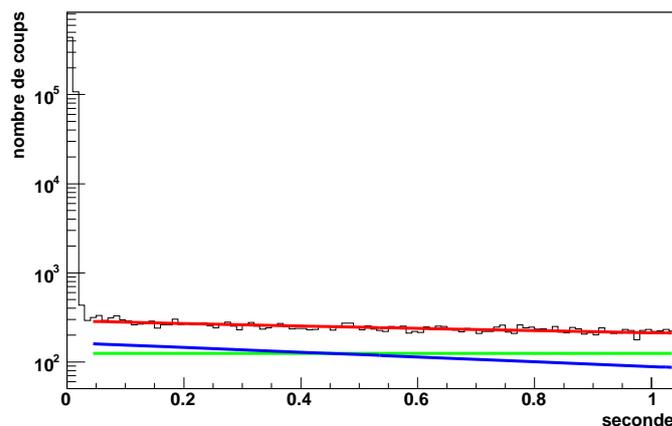


Figure 7.9 – Résultat de l’ajustement numérique des paramètres de l’équation (6.5) (courbe rouge) sur le spectre expérimental pour la mesure à 2,4 MeV (noir).

La décroissance dans le cas de la mesure avec la cible de thorium à 16,0 MeV n’étant pas visible, nous avons soustrait le bruit de cette mesure. Par conséquent, le

terme du bruit n'est pas pris en compte dans l'équation (7.5). L'ajustement numérique de cette équation sur le spectre mesuré à 16,0 MeV dont le bruit de fond est soustrait est présenté sur la figure 7.10. Dans ce cas, $N_{3He}(t=0)$ est la valeur de la fonction ajustée à $t=0$ s.

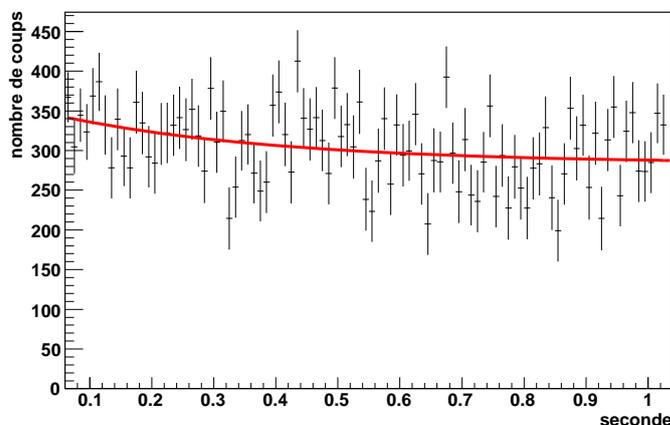


Figure 7.10 – Résultat de l’ajustement numérique des paramètres de l’équation (7.5) (courbe continue) sur le spectre expérimental net pour la mesure à 16,0 MeV (points noirs).

Les valeurs des rendements absolus de neutrons retardés du ^{232}Th à 2 MeV, 2,4 MeV et 16,0 MeV sont présentées dans le tableau 7.6. Les incertitudes sur nos mesures tiennent compte des erreurs statistiques sur la valeur à $t=0$ de la fonction ajustée, sur le nombre de fissions calculé par MCNPX et sur la mesure du flux de neutrons par le BF_3 et le $\text{Ne}213$. Elles contiennent aussi l’erreur systématique sur la mesure de l’efficacité et sur la section efficace. La différence entre les valeurs des incertitudes provient essentiellement des erreurs sur la mesure de flux de neutrons et sur la section efficace. Nos mesures sont comparées aux mesures antérieures [Kee57, Mas68, Her69] et aux évaluations sur la figure 7.11.

E_n (MeV)	2	2.4	16
v_d (n/100fiss)	$4,98 \pm 0,52$	$5,04 \pm 0,64$	$2,99 \pm 0,24$

Tableau 7.6 – Rendement absolu de neutrons retardés pour les énergies de neutrons de 2,0, 2,4 et 16,0 MeV.

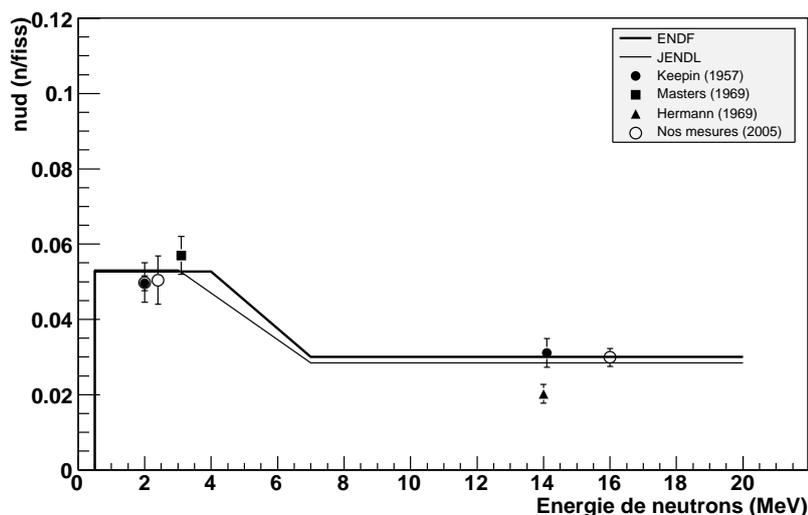


Figure 7.11 – Rendement absolu de neutrons retardés pour le ^{232}Th en fonction de l'énergie des neutrons incidents.

Notre valeur à 2,0 MeV est en accord avec la mesure de Keepin qui est de 4,96 n/100fiss [Kee57]. Il n'y a pas d'écart remarquable entre la valeur à 2,0 MeV et à 2,4 MeV. Dans ce domaine d'énergie, la voie de la fission de seconde chance n'est pas encore ouverte. La valeur à 16,0 MeV est aussi en accord avec les évaluations ENDF/BVI et JENDL3.3 à 16,0 MeV. Nos valeurs de rendements absolus de neutrons retardés pour les énergies étudiées ont la même évolution en énergie que celle des données retenues pour les évaluations.

7.2 Mesures au tandem

Une autre expérience a été réalisée, au CEA/DIF/DPTA/SPN auprès du tandem, afin de mesurer les valeurs de ν_d pour des énergies de neutrons incidents allant de 3,5 MeV à 6 MeV. Les neutrons ont été produits par les réactions d'un faisceau de protons sur une cible de titane tritiée. Un détecteur NE213 placé à 0° a mesuré le spectre en énergie des neutrons par la technique du temps de vol. La qualité des spectres obtenus n'a pas permis de s'affranchir de la contribution des polluants ni de s'assurer d'avoir un spectre de neutrons monocinétiques. La mauvaise résolution en temps du faisceau a probablement conduit à cette piètre qualité du spectre énergétique ce qui a empêché l'exploitation des données.

Synthèse

Le but principal de nos expériences était de mesurer le rendement absolu de neutrons retardés du ^{232}Th pour des énergies de neutrons comprises entre 4 et 8 MeV, une zone en énergie non explorée jusqu'à maintenant. Les mesures réalisées au 4MV du DPTA/SPN pour les énergies de neutrons de 2,0, 2,4 et 16,0 MeV ont permis de tester la méthode expérimentale pour la mesure de la valeur de ν_d et la méthode d'analyse. Les résultats sont encourageants et en accord avec les mesures antérieures

et les évaluations. Pour les mesures entre 3,5 et 6 MeV réalisées au tandem, aucune mesure n'a pu être exploitée faute d'avoir un spectre de neutrons monocinétique. En conséquence, d'autres mesures de rendements absolus du ^{232}Th pour le domaine en énergie entre 4 et 8 MeV utilisant la même stratégie de mesures et la même méthode d'analyse sont planifiés afin d'atteindre notre but initial. Il est envisagé de réaliser ces mesures soit à l'IRMM de Geel soit au PTB de Braunschweig. D'autres expériences sont aussi prévues pour d'autres actinides, notamment le ^{237}Np pour lequel des données sont aussi indispensables puisque peu de résultats sont disponibles dans la littérature.

Conclusion

Les récentes applications de la photofission basées sur la détection de neutrons retardés nécessitent pour être menées à bien un nombre important de données nucléaires. Malheureusement, ces données sont rares et parfois incohérentes. Ce constat a motivé la mise en œuvre d'un programme expérimental visant à mesurer les spectres temporels de neutrons retardés afin d'en extraire les paramètres des six groupes et les rendements absolus pour un ensemble d'actinides. Ce programme expérimental démarré en 2004 est réalisé par un groupe du Service de Physique Nucléaire du CEA/DSM/IRFU de Saclay en collaboration avec le Service de Physique Nucléaire du CEA/DIF de Bruyères-le-Châtel. Les mesures sont réalisées auprès de l'accélérateur d'électrons ELSA (CEA/DIF), le faisceau d'électrons servant à produire un rayonnement de freinage dont les photons interagissent avec les cibles d'actinides. Les résultats des premières mesures ainsi que celles préalablement disponibles dans la littérature ont fait apparaître la nécessité de mesurer à nouveau les paramètres de neutrons retardés de certains actinides et d'étudier l'évolution en énergie des rendements absolus. Ce travail de thèse a donc été dédié aux mesures des paramètres de neutrons retardés de ^{235}U et du ^{237}Np . L'évolution des rendements absolus en fonction de l'énergie a aussi été examinée pour ces deux actinides ainsi que pour le ^{232}Th et ^{238}U . La faisabilité d'une application visant l'identification et la quantification d'un mélange d'actinides a été étudiée.

L'évolution du rendement absolu de neutrons retardés (v_d) en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons a été étudiée pour la première fois pendant cette thèse dans une gamme d'énergie s'étendant au-delà de 15 MeV. Une expérience de mesures de v_d pour des énergies allant de 12 à 18,5 MeV a été réalisée pour différents actinides (^{232}Th , ^{235}U , ^{237}Np , ^{238}U). Un nombre important de données a été fourni grâce à cette expérience. La plupart de ces résultats sont inédits. Pour certains actinides étudiés, une légère diminution du rendement est observée autour de 12 - 13 MeV. Cette diminution est suivie par un plateau. Cette évolution du rendement en fonction de l'énergie a été observée dans le cas de la fission induite par neutron et attribuée à l'ouverture de la voie de la fission de seconde chance. Les incertitudes ont été réduites pour quelques rendements absolus. La dispersion observée dans les résultats a aussi été observée chez d'autres auteurs. Elle révèle la difficulté d'effectuer des mesures absolues. Certaines améliorations sont envisagées afin d'améliorer la qualité des résultats. Il faudrait utiliser un système d'acquisition capable de supporter de hauts taux de comptage. Il serait aussi nécessaire de mettre au point un monitoring relatif de l'intensité du faisceau de Bremsstrahlung. Ces deux aspects ont été étudiés et améliorés lors de la dernière expérience de notre groupe en février 2008. L'analyse des résultats est en cours. La mesure du rendement absolu du ^{239}Pu est prévue pour juin 2008 et bénéficiera des améliorations mentionnées plus haut.

Les paramètres de neutrons retardés ont été déterminés tout d'abord pour ^{235}U et ensuite pour le ^{237}Np . Malgré les faibles quantités de matière dont nous disposons et le faible rendement de neutrons retardés de ces deux actinides, deux expériences ont pu être réalisées dans des temps raisonnables. Ceci a été rendu possible grâce au nouveau détecteur qui a été conçu et dont l'optimisation a été décrite dans ce travail.

Concernant l'expérience sur ^{235}U , une correction des paramètres (a_i, T_i) des groupes 3, 5 et 6 de neutrons retardés donnés par O.P. Nikotin en 1966 pour ^{235}U pour une énergie électron de 15 MeV a été apportée. Notre mesure pour ^{235}U à 18 MeV a permis de déterminer pour la première fois les paramètres de neutrons retardés à cette énergie. Aucune différence remarquable n'a été observée entre 10 MeV, mesure effectuée par Kull, et 18 MeV. Cette indépendance des paramètres des six groupes en fonction de l'énergie électron est un résultat important qui vient confirmer les observations faites par notre groupe pour ^{238}U et le ^{232}Th en 2004 et 2005. Ce résultat nous permet aussi de déduire que la contribution de la fission de seconde chance pour les paramètres de neutrons retardés est faible. D'autre part, il est à remarquer que nous avons pu extraire les paramètres avec une incertitude inférieure à 10 % pour la plupart des cas. Pour l'expérience sur le ^{237}Np , nous avons déterminé pour la première fois les paramètres de neutrons retardés en six groupes pour une énergie électron de 15 MeV. Des paramètres de neutrons retardés déterminés à 15 MeV ont été répertoriés dans EXFOR sans qu'ils soient publiés. Ces derniers ont été mesurés par P.P. Ganich et étaient déterminés pour cinq groupes seulement. Ces résultats présentaient de grandes barres d'erreurs. Avec nos paramètres mesurés à 15 MeV, nous avons donc corrigé ceux existants en cinq groupes et diminué les incertitudes. La prochaine mesure envisagée est celle des paramètres des groupes de neutrons retardés du ^{239}Pu . Cette mesure sera réalisée auprès d'ELSA en juin 2008. L'autre actinide intéressant à étudier serait ^{241}Am . Cette mesure, impossible à réaliser à ELSA, pourrait être faite en Russie. Ce projet est cependant encore dans sa phase initiale.

Une modélisation complète de l'ensemble des processus a été développée lors de la mise en place du programme expérimental. Cette modélisation, à terme, servira à fournir des informations pour les actinides pour lesquels aucune donnée expérimentale ne serait disponible. Les résultats obtenus dans ce travail ont été comparés à ceux de la modélisation. Les résultats sont encourageants bien que certains écarts entre modélisation et résultats expérimentaux soient observés que ce soit pour les rendements absolus ou les paramètres des groupes de neutrons retardés. Certaines pistes pouvant améliorer la modélisation afin de mieux reproduire les données sont envisagées, mais ce travail dépasse le cadre de cette thèse

Sur le plan applicatif, nous avons testé la possibilité d'identifier isotopiquement et de quantifier quelques mélanges d'actinides composés d'uranium-235 et d'uranium-238. Une identification isotopique du mélange a été possible avec nos jeux de paramètres pour les deux actinides alors qu'avec les données de Nikotin le résultat obtenu n'était pas physique. Ceci met en évidence l'impact de nos corrections des paramètres sur la faisabilité de cette application. D'autre part, les masses et les rapports des masses des deux isotopes du mélange présentent un écart avec les valeurs réelles. Il a été expliqué en partie par l'atténuation des photons dans les cibles d'actinides et d'autre part par la sensibilité de la méthode. Il sera donc possible de quantifier les masses d'isotopes pour des échantillons pour lesquels l'absorption ne sera pas trop importante. Des mesures avec d'autres mélanges d'actinides ($\text{U}/^{239}\text{Pu}$) et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ sont prévues en 2008.

Parallèlement à nos expériences de photofission, nous portons un intérêt aux mesures de v_d issus de la fission induite par neutron du thorium-232. Le but de ces mesures était de déterminer pour la première fois le rendement absolu dans une zone

en énergie non explorée jusqu'à maintenant c'est-à-dire entre 4 et 8 MeV là où s'ouvre la voie de fission de seconde chance. Nous avons aussi réalisé des mesures à des énergies pour lesquelles des données existaient dans la littérature. Les données que nous avons pu exploiter sont celles obtenues à 2,0, 2,4 et 16,0 MeV. Ces résultats ont validé la méthode expérimentale. Leurs résultats sont en accord avec les résultats antérieurs et les évaluations. Notons que la mesure à 16,0 MeV est réalisée pour la première fois, à notre connaissance. Les données autour de 4 MeV n'ont pas pu être exploitées et il est prévu de refaire cette expérience à l'IRMM à Geel ou au PTB à Braunschweig. Nous en profiterons pour effectuer des mesures de rendements absolus de neutrons retardés pour le neptunium-237 dans la même zone d'énergie.

Finalement, mentionnons que nos mesures de rendements absolus et paramètres des groupes de neutrons retardés en photofission seront inclus dans les futures bibliothèques de la collaboration européenne JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion project). Ces mesures seront un complément aux fichiers évalués de sections efficaces, fichiers construits à partir des évaluations réalisées par notre groupe pour $^{235,238}\text{U}$, le ^{232}Th , le ^{237}Np et le ^{239}Pu pour des énergies allant jusqu'à 150 MeV.

Annexes

Annexe A

Liste des précurseurs de neutrons retardés

La liste des précurseurs de neutrons retardés répertoriés par England [Eng94] est présentée ici. Les 271 précurseurs sont tabulés sous la forme suivante : élément (X), masse (M), état fondamental (g, 'ground state') ou métastable (m, 'metastable'), période de décroissance $T_{1/2}$ (s), probabilité d'émission de neutrons retardés P_n (en pourcentage) et le numéro du groupe auquel appartient le précurseur (n).

Co-72g 0,1235 11,5322 6	Cu-72g 6,4891 0,0001 3	Co-73g 0,1290 25,1220 6
Ni-73g 0,4906 0,0047 5	Cu-73g 5,1136 0,5588 3	Co-74g 0,0920 17,4326 6
Ni-74g 0,9002 0,3560 4	Cu-74g 0,6482 0,2949 5	Co-75g 0,0817 31,3124 6
Ni-75g 0,2312 1,0022 6	Cu-75g 0,9274 3,4700 4	Ni-76g 0,3046 3,5113 5
Cu-76g 0,2602 2,8418 6	Ni-77g 0,1033 4,7115 6	Cu-77g 0,3052 12,3119 5
Ni-78g 0,1318 9,2984 6	Cu-78g 0,1179 0,9093 6	Zn-78g 1,9855 0,0041 4
Cu-79g 0,1351 24,2057 6	Zn-79g 0,3130 1,1459 5	Ga-79g 3,0000 0,0890 4
Cu-80g 0,0899 15,0430 6	Zn-80g 0,4873 1,0983 6	Ga-80g 1,6600 0,8300 4
Cu-81g 0,0742 52,9504 6	Zn-81g 0,1227 5,7372 6	Ga-81g 1,2300 11,9000 4
Zn-82g 0,1268 21,2264 6	Ga-82g 0,6000 21,1000 5	Zn-83g 0,0836 22,8749 6
Ga-83g 0,3100 56,2000 5	Ge-83g 1,9000 0,0235 4	Ga-84g 0,0984 28,0232 6
Ge-84g 1,2000 5,2055 4	As-84g 5,3000 0,0860 3	Ga-85g 0,0870 44,9654 6
Ge-85g 0,2500 16,4540 6	As-85g 2,0300 50,0000 4	Ge-86g 0,2470 15,2148 6
As-86g 0,9000 8,5030	Ge-87g 0,1339 15,1329 6	As-87g 0,3000 44,3600 6
Se-87g 5,6000 0,1880 3	Br-87g 55,7000 2,5400 1	Ge-88g 0,1290 21,6551 6
As-88g 0,1348 19,9068 6	Se-88g 1,5000 0,9660 4	Br-88g 16,0000 6,2600 2
As-89g 0,1212 33,2722 6	Se-89g 0,4270 7,7000 5	Br-89g 4,3800 14,0000 3
As-90g 0,0911 24,3493 6	Se-90g 0,5550 9,1321 5	Br-90g 1,8000 24,6000 4
Se-91g 0,2700 24,4382 6	Br-91g 0,6000 18,1000 5	Rb-91g 58,2000 0,0001 1
Se-92g 0,1682 13,2333 6	Br-92g 0,3600 42,7344 5	Kr-92g 0,3600 0,0332 5
Rb-92g 4,5300 0,0099 3	Se-93g 0,0968 12,0321 6	Br-93g 0,1760 25,0885 6
Kr-93g 1,2900 2,0100 4	Rb-93g 5,8600 1,3500 3	Br-94g 0,1108 29,8035 6
Kr-94g 0,2100 6,1300 6	Rb-94g 2,7600 10,0000 4	Br-95g 0,1069 27,0797 6
Kr-95g 0,7800 7,5051 5	Rb-95g 0,3800 8,6200 5	Br-96g 0,0888 21,9195 6
Kr-96g 0,2931 7,7473 6	Rb-96g 0,2040 14,0000 6	Sr-96g 1,1000 0,0011 4
Kr-97g 0,1000 8,3925 6	Rb-97g 0,1700 26,6000 6	Sr-97g 0,4000 0,0054 5
Y-97g 3,7000 0,0540 3	Y-97m 1,1100 0,1090 4	Kr-98g 0,1602 8,2989 6
Rb-98g 0,1100 13,3000 6	Sr-98g 0,6500 0,3260 5	Y-98g 2,0000 0,2280 4
Y-98m 0,6500 0,2280 5	Rb-99g 0,1450 17,1000 6	Sr-99g 0,6000 0,1290 5
Y-99g 1,4000 2,0200 4	Rb-100g 0,0984 4,9500 6	Sr-100g 0,6180 0,7430 5
Y-100g 0,8000 0,8420 5	Rb-101g 0,0939 28,3215 6	Sr-101g 0,1941 2,4700 6
Y-101g 0,6071 2,0500 5	Sr-102g 0,2871 4,7600 6	Y-102g 0,9000 5,9400 4
Sr-103g 0,1196 8,8758 6	Y-103g 0,2604 12,3656 6	Zr-103g 1,3377 0,0242 4
Nb-103g 1,5000 0,0137 4	Sr-104g 0,1629 13,4698 6	Y-104g 0,1283 8,7769 6
Y-105g 0,1469 19,7529 6	Zr-105g 0,4930 1,0879 5	Nb-105g 2,8000 2,2322 4
Y-106g 0,0894 15,6613 6	Zr-106g 0,9071 1,5242 4	Nb-106g 1,0000 0,9402 4

Y -107g 0,0923 25,9442 6	Zr-107g 0,2430 3,7127 6	Nb-107g 0,7660 8,7806 5
Zr-108g 0,3781 7,0302 5	Nb-108g 0,2423 6,4669 6	Mo-108g 1,5000 0,0001 4
Zr-109g 0,1300 7,3940 6	Nb-109g 0,3154 12,6533 5	Mo-109g 1,4090 0,1359 4
Tc-109g 1,4000 0,0879 4	Nb-110g 0,1298 10,0525 6	Mo-110g 2,7720 1,3758 4
Tc-110g 0,8300 0,6210 4	Nb-111g 0,1718 18,3948 6	Mo-111g 0,4664 1,0303 5
Tc-111g 1,9824 5,6954 4	Mo-112g 0,9754 2,0788 4	Tc-112g 0,4314 5,2031 5
Mo-113g 0,2287 3,7966 6	Tc-113g 0,6524 7,1864 5	Ru-113g 3,0000 0,0005 4
Tc-114g 0,2023 6,5358 6	Ru-114g 8,1365 0,1039 3	Rh-114g 1,7000 0,0020 4
Tc-115g 0,2704 14,3371 6	Ru-115g 0,8784 0,2276 4	Rh-115g 8,3154 0,7746 3
Tc-116g 0,1155 12,2226 6	Ru-116g 1,7004 1,0811 4	Rh-116g 0,9492 0,5379 4
Tc-117g 0,1518 21,2499 6	Ru-117g 0,3428 2,0509 5	Rh-117g 1,2174 4,8201 4
Ru-118g 0,6623 4,1092 5	Rh-118g 0,3156 2,9167 5	Ru-119g 0,1950 4,3580 6
Rh-119g 0,4654 8,2971 5	Pd-119g 1,7587 0,0001 4	Ag-119g 2,1000 0,0001 4
Ru-120g 0,3503 7,5652 5	Rh-120g 0,1725 5,9282 6	Pd-120g 3,9065 0,0068 3
Ag-120g 1,1700 0,0015 4	Rh-121g 0,2496 13,5677 6	Pd-121g 0,6437 0,2722 5
Ag-121g 0,8000 0,0753 5	Rh-122g 0,1071 8,3012 6	Pd-122g 1,4112 0,4377 4
Ag-122g 1,5000 0,1840 4	Rh-123g 0,1343 17,1070 6	Pd-123g 0,3004 0,6897 5
Ag-123g 0,3900 0,5450 5	Pd-124g 0,5140 2,6986 5	Ag-124g 0,2495 2,2881 6
Pd-125g 0,1660 2,2664 6	Ag-125g 0,3335 6,3167 5	Pd-126g 0,2520 5,0310 6
Ag-126g 0,1398 4,6380 6	Ag-127g 0,1753 9,8629 6	Cd-127g 0,5719 0,0101 5
In-127g 3,7600 0,6600 3	In-127m 1,3000 0,0001 4	Ag-128g 0,0943 6,8861 6
Cd-128g 1,0530 0,1215 4	In-128g 0,8400 0,0610 4	Cd-129g 0,2987 0,1519 6
In-129g 0,9900 2,9200 4	In-129m 2,5000 0,7600 4	Cd-130g 0,4767 0,9676 5
In-130g 0,5800 1,0400 5	In-130m 0,5100 1,4800 5	Cd-131g 0,1062 4,8728 6
In-131g 0,2800 1,8400 6	In-131m 0,1110 1,7300 6	Cd-132g 0,1357 20,5597 6
In-132g 0,1200 5,3600 6	In-133g 0,1116 31,6560 6	Sn-133g 1,4700 0,2549 4
In-134g 0,0806 33,7565 6	Sn-134g 1,0400 18,3000 4	Sb-134g 10,2000 0,1040 2
Sn-135g 0,4180 9,2929 5	Sb-135g 1,8200 17,8700 4	Sn-136g 0,7172 16,3918 5
Sb-136g 0,8200 28,9788 4	Te-136g 19,0000 1,1400 2	Sb-137g 0,4780 18,0322 5
Te-137g 3,5000 2,6900 3	I -137g 24,5000 6,9700 2	Sb-138g 0,1734 22,0114 6
Te-138g 1,6000 6,7800 4	I -138g 6,5000 5,3800 3	Sb-139g 0,2178 41,6934 6
Te-139g 0,5800 7,9624 5	Te-140g 0,8038 15,4961 4	I -140g 0,8600 9,2700 4
Te-141g 0,2726 10,4723 6	I -141g 0,4600 21,3000 5	Xe-141g 1,7200 0,0353 4
Cs-141g 24,9000 0,0474 2	Te-142g 0,5901 15,0790 5	I -142g 0,2000 13,8601 6
Xe-142g 1,2200 0,4040 4	Cs-142g 1,6900 0,0949 4	I -143g 0,4010 38,4989 5
Xe-143g 0,9600 3,0557 4	Cs-143g 1,7800 1,6000 4	I -144g 0,1460 15,2394 6
Xe-144g 1,1000 4,6118 4	Cs-144g 1,0010 3,1300 4	I -145g 0,1934 24,0859 6
Xe-145g 0,9000 6,1090 4	Cs-145g 0,5900 13,5900 5	Xe-146g 0,5627 6,5048 5
Ba-146g 2,0000 0,0100 4	La-146g 11,0000 0,0035 2	Xe-147g 0,1991 8,7056 6
Cs-147g 0,5460 26,1000 5	Ba-147g 1,7550 0,0210 4	La-147g 5,0000 0,0330 3
Cs-148g 0,2056 25,1000 6	Ba-148g 3,3250 0,0060 3	La-148g 1,3000 0,1330 4
Cs-149g 0,2442 32,7567 6	Ba-149g 0,6950 0,5750 5	La-149g 2,4080 1,0600 4
Cs-150g 0,1238 15,0881 6	Ba-150g 0,9620 10,9278 4	La-150g 0,6080 0,3991 5
Ba-151g 0,3327 3,7569 5	La-151g 0,7194 6,5495 5	Ba-152g 0,4205 5,7209 5
La-152g 0,2850 6,0393 6	La-153g 0,3258 10,6885 5	Ce-153g 1,4688 0,6219 4
La-154g 0,1493 10,2702 6	Ce-154g 2,0161 0,6373 4	Pr-154g 1,0614 0,1110 6
La-155g 0,1540 16,7592 6	Ce-155g 0,5278 1,6004 5	Pr-155g 1,1224 1,5427 4
Ce-156g 0,5963 2,9922 5	Pr-156g 0,3793 2,7170 5	Ce-157g 0,2144 4,4528 6

Pr-157g 0,3800 6,3874 5	Pr-158g 0,1685 6,4230 6	Nd-158g 2,6949 0,0053 4
Pr-159g 0,1806 12,3634 6	Nd-159g 0,6146 0,2361 5	Pm-159g 3,0005 0,0185 3
Nd-160g 0,7886 0,9469 5	Pm-160g 0,7289 0,2676 5	Nd-161g 0,3113 1,6982 5
Pm-161g 0,7899 1,7504 5	Pm-162g 0,3243 2,1452 5	Sm-164g 1,3850 0,0124 4
Eu-164g 1,5327 0,0001 4	Sm-165g 0,4536 0,2491 5	Eu-165g 1,3546 0,1911 4

**Tableau A.1 – Liste des précurseurs répertoriés par England présentés sous la forme suivante :
X, M, état, $T_{1/2}$, P_n et n**

Annexe B Optimisation du rapport signal sur bruit pour la détection des neutrons prompts dans le cadre du projet INPHO

Le projet INPHO (INterrogation par PHOtofission) a pour objectif d'étudier la caractérisation des déchets nucléaires en utilisant le processus photofission. Il s'agit de sonder les fûts de déchets avec des photons issus du rayonnement Bremsstrahlung. Les actinides contenus dans le fut fissionneront pour des énergies de photons supérieures à 6 MeV. Jusqu'à maintenant les études réalisées en utilisant les neutrons retardés pour déterminer la masse d'actinide contenue dans des colis de type CEDRA [Mak03] ont permis d'abaisser la limite de détection à 17 g. Cette limite doit encore être abaissée puisque le but visé est maintenant de détecter 1 g. Plusieurs propositions ont été faites pour améliorer la limite de détection. L'une d'entre elles repose sur la détection des neutrons prompts. La première année de ma thèse a été dédiée à l'étude de cette proposition. J'ai réalisé divers calculs à l'aide du code MCNPX afin d'en évaluer la faisabilité. Ce travail avait pour but de déterminer les zones d'énergie les plus favorables à un bon rapport signal sur bruit et d'en déduire la limite de détection.

Pour mener à bien ce travail, nous avons tout d'abord utilisé MCNPX afin d'obtenir le flux de photons sur l'échantillon. Puis des paramétrisations des sections efficaces d'absorption et de photofission ont été utilisées afin d'obtenir le nombre de neutrons émis par photon incident. Les résultats de cette étape sont apparus non fiables par comparaison à d'autres travaux. Nous avons donc adopté une autre approche et avons utilisé MCNPX pour l'ensemble du calcul en utilisant les bibliothèques de réactions photonucléaires coréennes disponibles dans MCNPX. Seule cette deuxième approche sera résumée ici.

B.1 Paramètres de calcul et simulation

La figure B.1 illustre la disposition des différents éléments inclus dans le calcul. Le faisceau d'électrons provenant du LINAC est utilisé en tir direct, c'est-à-dire qu'il vise directement le colis. Le rayonnement Bremsstrahlung est donc produit dans le fût. Le colis de déchet bétonné, colis maquette de 870 litres CEDRA, est représenté avec l'actinide en son centre. Les cinq petits cercles à 90° sont les trous pratiqués dans le colis afin d'y déposer les échantillons d'actinides. Pour l'étude présentée ici seul le trou au centre est utilisé. Le détecteur de neutrons prompts de type Micromégas [Boy05] sera placé 0°. Une géométrie simplifiée du détecteur a été utilisée pour la simulation. Il est modélisé par un parallélépipède rectangle ayant une longueur de 7 cm, une hauteur de 7 cm, et une largeur de 10 cm.

Le code de simulation calcule le flux de neutrons prompts à travers la surface du détecteur par électron incident. Les valeurs de signal et de bruit dépendent de plusieurs paramètres : l'intensité et l'énergie du faisceau, sa fréquence, le temps d'irradiation, le temps de mesure et l'emplacement de détecteur. Les deux paramètres du calcul qui seront variés pour notre étude sont l'énergie des électrons et l'emplacement du détecteur Micromégas. Les autres paramètres sont fixés aux valeurs ci-dessous :

L'énergie du faisceau : 10, 12, 15 MeV
 Le type de faisceau : monoénergétique
 La taille du faisceau d'électrons : 2 mm
 L'intensité du faisceau : 130 mA
 La fréquence des impulsions : 1 Hz (on peut travailler à plus haute fréquence)
 La longueur des impulsions : 2,5 μ s
 Le temps de mesure : 600 s (on peut travailler avec des temps plus longs)
 L'efficacité intrinsèque du détecteur : $2 \cdot 10^{-4}$ (pour un neutron de 2 MeV)

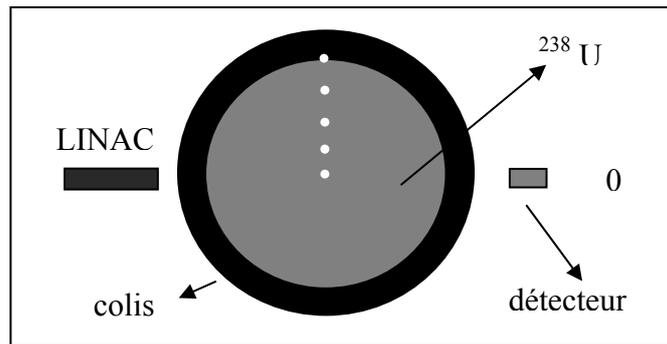


Figure B.1 – Géométrie telle qu'elle a été implantée dans MCNPX.

B.2 Signal, bruit et limite de détection

Le signal est défini par l'ensemble des neutrons prompts générés par l'actinide, transportés dans le colis et arrivant sur le détecteur. Il correspond au nombre de neutrons prompts détectés issus des réactions photonucléaires pour 1 g d' ^{238}U .

Le bruit de fond correspond au nombre de neutrons détectés durant le comptage du signal mais qui ne proviennent pas des réactions photonucléaires sur l'actinide. Il est constitué du bruit de fond passif et du bruit de fond actif. Le bruit de fond passif, comme son nom l'indique, est le bruit détecté sans activation de la source. Ce bruit est quasiment nul. Le bruit actif est le bruit détecté avec activation de la source et a deux provenances : le colis et la salle.

Le bruit du colis est dû essentiellement aux photoneutrons issus des réactions (γ, n) sur les éléments du colis (^{13}C , ^{17}O ,...). Le bruit de la salle est dû principalement aux neutrons issus des réactions (γ, n) sur le cuivre des fentes de focalisation du faisceau.

Nous avons choisi de faire le calcul du bruit puis du signal brut (signal+bruit). Pour le calcul de la limite de détection on utilisera la relation suivante [Pou04]:

$$LD = 4 \times \left(\frac{1}{t_m} + \sqrt{B_a \times \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_a} \right) + B_p \times \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_p} \right) + \sigma^2} \right)$$

avec :

- B_a : bruit de fond actif (c.s⁻¹)
- B_p : bruit de fond passif (c.s⁻¹)
- t_m : temps de mesure de signal
- t_a : temps de mesure du bruit de fond actif (s)
- t_p : temps de mesure du bruit de fond passif (s)
- σ : terme qui tient compte d'un bruit autre que nucléaire

B.3 Résultats

La position du détecteur de neutrons a été fixée à 0°. Le signal a été calculé pour une masse d'actinide de 100 g d'une densité de 2,5 g/cm² et il a été ramené à 1 g. L'étude du signal et du bruit a été réalisée pour des énergies d'électron de 10, 12 et 15 MeV. Le tableau B.1 compile les valeurs du signal brut (c. s⁻¹), du bruit (c. s⁻¹), le rapport signal sur bruit, le signal net (c. s⁻¹.g⁻¹) et des limites de détection en c. s⁻¹ et en g.

Energie (MeV)	S _{brut} (c. s ⁻¹)	Bruit (c. s ⁻¹)	R(S _{brut} /Bruit)	S _{net} (c. s ⁻¹ .g ⁻¹)	LD(c.s ⁻¹)	LD(g)
10	3,80E-03 ± 3,2%	1,53E-03 ± 4,0%	2,49E+00	2,27E-05	1,57E-02	6,91E+02
12	3,76E-02 ± 2,5%	2,66E-02 ± 3,5%	1,41E+00	1,10E-04	4,43E-02	4,04E+02
15	1,06E+00 ± 0,8%	1,03E+00 ± 2,6%	1,03E+00	2,84E-04	2,41E-01	8,47E+02

Tableau B.1 – Signal brut, bruit, leur rapport, le signal net et la limite de détection en c. s⁻¹ et en g pour trois énergies électron.

Nous remarquons dans le tableau B.1 que le signal brut n'est que légèrement plus élevé que le bruit pour les trois énergies électron étudiées. Une augmentation de l'énergie du faisceau d'électrons n'améliore donc pas la valeur du rapport signal (brut) sur bruit, ce rapport étant de 2,49 (à 10 MeV) à 1,03 (à 15 MeV). Ceci est dû au fait que l'évolution du bruit avec l'énergie est plus rapide que celle du signal. La limite de détection minimale atteinte est de 404 g, cette valeur étant obtenue pour un faisceau de 12 MeV. Cette valeur est très loin de la limite visée qui, rappelons-le est de 1g. La méthode de détection de neutrons prompts pour caractériser les déchets nucléaires n'a pas donc été validée par les calculs MCNPX.

Les résultats présentés ici sont cohérents avec ceux obtenus par un autre groupe au CEA/Saclay [Pou05] De plus, une expérience a été effectuée avec un colis maquette pendant laquelle un kilogramme d'²³⁸U a été irradié par des électrons de 13 MeV.

Aucun signal significatif de neutrons prompts n'a été détecté [Pan07]. Cette expérience est venue confirmer les simulations et a prouvé que la détection des neutrons prompts pour caractériser les déchets nucléaires n'est pas une méthode applicable.

B.4 Conclusion

Les calculs et l'expérience réalisés ont montré que la limite de détection ne peut pas être abaissée à 1 g d' ^{238}U à partir de la détection des neutrons prompts (en lieu et place de la détection des neutrons retardés). Ce type d'amélioration proposée pour la caractérisation des déchets nucléaires par photofission, dans le cadre de la phase I du projet INPHO n'a donc pas été validé.

Annexe C Détermination de rendements absolus de neutrons retardés pour la photofission des actinides

Le rendement absolu de neutrons retardés a été mesuré pour différents actinides. Dans cette annexe, nous reportons les valeurs de tous les termes de l'équation (4.1), présentée dans le chapitre 4, utilisés pour déterminer le rendement absolu. Ce dernier a été mesuré pour le thorium-232, l'uranium-235 et l'uranium-238 lors de l'expérience de Novembre 2006 et pour des énergies électron différentes. Nous utiliserons ici les mêmes symboles que ceux utilisés dans l'équation (4.1) pour désigner les termes de cette équation sauf pour le nombre total de neutrons détectés et le bruit de fond. Ils sont remplacés respectivement par 'Signal' et 'Bruit'. La valeur de l'efficacité utilisée est celle présentée dans le tableau 4.2 (cf. chapitre 4). Les tableaux C.1, C.2 et C.3 récapitulent les valeurs de ces termes pour les actinides cités ci-dessus.

Les tableaux C.1 et C2 présentent, respectivement, le calcul de rendement absolu pour le ^{232}Th et l' ^{238}U et pour les énergies électron allant de 12 à 18,5 MeV. N_{fiss1} est le nombre de fissions induites par neutrons dans la cible du ^{232}Th et de l' ^{238}U , ν_{dl} est égal à $4,96 \text{ n}/100\text{fiss} \pm 4\%$ et $4,4\text{n}/100\text{fiss} \pm 2,3\%$ pour les deux noyaux respectivement.

Energie électron (MeV)	Signal (cps)	Bruit (cps)	Chtot (e-)	N_{fiss1} (fiss/e-)	N_{fiss} (fiss/e-)	ν_{d} (n/fiss)
12	66678 (0,4%)	2098,4 (12,8%)	7,89E+14 (10,0%)	1,64E-10 (6,4%)	1,38E-08 (1,6%)	2,62E-02 (2,2%)
13	36381 (0,5%)	1021,2 (12,9%)	2,58E+14 (10,0%)	3,16E-10 (5,8%)	2,13E-08 (1,5%)	2,83E-02 (3,1%)
14	37136 (0,5%)	800,4 (12,9%)	1,98E+14 (10,0%)	4,4E-10 (5,3%)	3,11E-08 (1,5%)	2,60E-02 (3,5%)
15	48657 (0,5%)	512,4 (12,9%)	2,12E+14 (10,0%)	7,34E-10 (2,8%)	4,24E-08 (0,9%)	2,33E-02 (4,4%)
15,5	24241 (0,6%)	364,8 (13,1%)	8,41E+13 (10,0%)	8,67E-10 (7,0%)	5,35E-08 (2,5%)	2,32E-02 (5,2%)
16	33083 (0,5%)	425,6 (13,1%)	1,02E+14 (10,0%)	9,68E-10 (6,4%)	5,82E-08 (2,5%)	2,41E-02 (4,8%)
16,5	65998 (0,4%)	560 (13,1%)	1,63E+14 (10,0%)	1,13E-09 (6,3%)	6,43E-08 (2,3%)	2,73E-02 (4,2%)
17	51915 (0,4%)	469,2 (13,2%)	1,28E+14 (10,0%)	1,51E-09 (5,4%)	7,81E-08 (2,2%)	2,23E-02 (4,6%)
17,5	51300 (0,4%)	441,6 (13,1%)	1,15E+14 (10,0%)	1,57E-09 (5,1%)	8,61E-08 (2,1%)	2,24E-02 (4,8%)
18	62330 (0,4%)	441,6 (13,1%)	1,16E+14 (10,0%)	1,87E-09 (4,8%)	1,01E-07 (2,0%)	2,29E-02 (4,8%)
18,5	50499 (0,4%)	598,4 (13,0%)	7,87E+13 (10,0%)	1,99E-09 (4,7%)	1,06E-07 (1,9%)	2,62E-02 (4,1%)

Tableau C.1 – Termes de l'équation (4.1) et les valeurs de ν_{d} déterminées pour le thorium-232 présentés avec leurs erreurs relatives.

Energie électron (MeV)	Signal (cps)	Bruit (cps)	Chtot (e-)	N _{fiss1} (fiss/e-)	N _{fiss} (fiss/e-)	v _d (n/fiss)
12	27520 (0,6%)	256,0 (6,3%)	1,00E+14 (10,0%)	2,40E-09 (3,8%)	3,41E-08 (1,4%)	3,32 ^E -02 (13,5%)
13	44294 (0,5%)	414,8 (5,0%)	9,10E+13 (10,0%)	4,35E-09 (6,1%)	6,00E-08 (2,6%)	3,34E-02 (13,7%)
14	68574 (0,4%)	414,8 (5,0%)	1,13E+14 (10,0%)	6,93E-09 (4,7%)	9,47E-08 (2,3%)	2,58E-02 (14,0%)
15	442803 (0,2%)	2249,6 (2,1%)	5,38E+14 (10,0%)	1,06E-08 (5,5%)	1,33E-07 (2,9%)	2,46E-02 (14,4%)
15,5	188306 (0,2%)	790,4 (3,6%)	1,89E+14 (10,0%)	1,34E-08 (3,3%)	1,71E-07 (1,9%)	2,30E-02 (14,3%)
16	73317 (0,4%)	273,6 (6,0%)	6,50E+13 (10,0%)	1,6E-08 (4,0%)	1,96E-07 (2,2%)	2,27E-02 (14,4%)
16,5	298106 (0,2%)	680 (3,8%)	1,95E+14 (10,0%)	2,0E-08 (4,0%)	2,37E-07 (2,3%)	2,58E-02 (14,2%)
17	100381 (0,3%)	248,4 (6,3%)	6,52E+13 (10,0%)	2,07E-08 (3,3%)	2,68E-07 (2,0%)	2,27E-02 (14,3%)
17,5	86694 (0,3%)	193,2 (7,2%)	5,12E+13 (10,0%)	2,57E-08 (3,1%)	2,99E-07 (1,8%)	2,20E-02 (14,5%)
18	76556 (0,4%)	165,6 (7,8%)	4,01E+13 (10,0%)	2,8E-08 (3,0%)	3,45E-07 (1,7%)	2,16E-02 (14,4%)
18,5	223289 (0,2%)	633,6 (4,0%)	9,38E+13 (10,0%)	3,0E-08 (3,0%)	3,67E-07 (1,7%)	2,60E-02 (14,0%)

Tableau C.2 – Termes de l'équation (4.1) et les valeurs de v_d déterminées pour l'uranium-238 présentés avec leurs erreurs relatives.

Dans le tableau C.3 pour l'²³⁵U, s'ajoutent aux termes utilisés pour déterminer le rendement absolu pour les deux actinides précédents, N_{fiss2} et N_{fiss3} qui sont, respectivement, le nombre de photofissions et de fissions de l'²³⁸U présent dans la cible d'²³⁵U. Les rendements absolus associés à ces réactions sont v_{d2} et v_{d3}. Le premier est celui déterminé pour la photofission de l'²³⁸U pour différentes énergies (voir Tableau C.2) et le second est égal à 4,4n/100fiss ± 2,3%. Le rendement absolu de la fission induite par neutron de l'²³⁵U (v_{d1}) est égal à 1,67 n/100fiss ± 2,15%. Deux mesures ont été faites à 13,5 et à 18,5 MeV. La valeur du rendement absolu pour ces énergies, présentée dans le chapitre 4, est la moyenne de celles des deux mesures.

Energie électron (MeV)	Signal (cps)	Bruit (cps)	Chtot (e-)	N_{fiss1} (fiss/e-)	N_{fiss2} (fiss/e-)	N_{fiss3} (fiss/e-)	N_{fiss} (fiss/e-)	v_d (n/fiss)
12	14938 (0,8%)	2400 (2,0%)	9,83E+14 (10,0%)	6,80E-11 (24,3%)	2,17E-10 (1,69%)	1,03E-12 (35,0%)	4,99E-09 (1,8%)	1,09E-02 (12,78%)
13,5 (1)	8636 (1,1%)	1021,2 (3,1%)	2,94E+14 (10,0%)	4,57E-10 (31,9%)	4,62E-10 (1,32%)	2,67E-12 (36,3%)	1,19E-08 (1,4%)	8,99E-03 (13,56%)
13,5 (2)	30816 (0,6%)	2373,6 (2,1%)	1,08E+15 (10,0%)	4,57E-10 (31,9%)	4,62E-10 (1,32%)	2,67E-12 (36,3%)	1,19E-08 (1,4%)	9,16E-03 (13,44%)
15	11449 (0,9%)	2240 (2,1%)	2,39E+14 (10,0%)	7,27E-10 (7,6%)	8,41E-10 (0,25%)	5,32E-12 (6,5%)	2,24E-08 (0,26%)	7,04E-03 (13,30%)
16,5	54849 (0,4%)	2784 (1,9%)	5,85E+14 (10,0%)	1,18E-09 (11,0%)	1,38E-09 (0,46%)	9,36E-12 (17,8%)	3,65E-08 (0,48%)	1,06E-02 (12,31%)
18,5 (1)	31557 (0,6%)	1936 (2,3%)	2,32E+14 (10,0%)	1,96E-09 (14,5%)	2,40E-09 (0,70%)	1,72E-11 (12,1%)	6,26E-08 (0,73%)	8,70E-03 (12,63%)
18,5 (2)	24208 (0,6%)	1548,8 (2,5%)	1,85E+14 (10,0%)	1,96E-09 (14,5%)	2,40E-09 (0,70%)	1,72E-11 (12,1%)	6,26E-08 (0,73%)	8,32E-03 (12,73%)

Tableau C.3 – Termes de l'équation (4.1) et les valeurs de v_d déterminées pour l'uranium-235 présentés avec leurs erreurs relatives.

Table des figures

Figure 1.1 – Energie de liaison par nucléon en fonction du nombre de masse A. Les différents termes de l'énergie de liaison sont aussi présentés [Mey67].....	16
Figure 1.2 – Diagramme de l'énergie potentielle. La forme approximative du système est donnée en dessous de l'axe des abscisses [Mey67].....	17
Figure 1.3 – Section efficace de la fission induite par neutron de ^{235}U (ligne continue) et de ^{238}U (pointillé) en fonction de l'énergie de neutron incident. ..	18
Figure 1.4 – Section efficace de fission de ^{238}U en fonction de l'énergie du neutron. Les différents seuils de fission sont indiqués jusqu'à la fission de troisième chance [Mey67].	19
Figure 1.5 – Représentation graphique du processus de la fission [Mey67].	20
Figure 1.6 – Rendement en masse des fragments pour la fission induite par neutron thermique de ^{233}U , ^{235}U et du ^{239}Pu [Mey67].	21
Figure 1.7 – Rendement en masse pour la fission de ^{235}U avec des neutrons thermiques et de 14 MeV [Mey67].	21
Figure 1.8 – Mécanisme d'émission de neutrons retardés.	22
Figure 1.9 – Spectre d'émission de neutrons retardés pour différents actinides irradiés par un flux de neutrons de spectre rapide [Wal81].	25
Figure 1.10 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés de ^{238}U suite à la fission induite par neutron en fonction de l'énergie de neutron incident [Yos02].	26
Figure 1.11 – Rendement absolu de neutrons retardés en fonction du paramètre A-3Z où A et Z sont le nombre de masse et le numéro atomique du noyau composé [Kee58].	26
Figure 1.12 – Spectres en énergie des quatre premiers groupes de neutrons retardés issus de la fission de ^{235}U induite par neutrons thermiques [Kee58].	27
Figure 1.13 – Variation de la section efficace d'absorption d'un photon par un noyau exprimée par nucléon avec l'énergie du photon (MeV) [Fin90].	28
Figure 1.14 – Section efficace totale d'absorption pour ^{238}U (1). Celle de chacune des trois réactions photonucléaires est aussi présentée : 2 - (γ , n), 3 - (γ , f), 4 - (γ , 2n) [Huy99].	29
Figure 1.15 – Section efficace de photofission du ^{232}Th , de ^{238}U , de ^{241}Am , du ^{237}Np , de ^{235}U et du ^{239}Pu en fonction de l'énergie de photons [Huy99].	30
Figure 1.16 – Rapport de la section efficace de la première chance de fission sur la section efficace totale de photofission pour ^{238}U [Cal80a].	31
Figure 1.17 – Variation du rendement de photofission de ^{235}U avec des énergies électrons de 12, 15, 20, 30 et 70 MeV [Jac80].	32
Figure 1.18 – Nombre de neutrons prompts mesurés issus de la photofission de ^{233}U , ^{234}U , le ^{237}Np et le ^{239}Pu en fonction de l'énergie des photons (points). L'ajustement numérique de ces mesures (droite) est aussi présenté [Ber86].	33
Figure 2.1 – Schéma de production de rayonnement de freinage.	35
Figure 2.2 – Spectres en énergie des faisceaux de Bremsstrahlung simulés avec MCNPX pour des faisceaux d'électrons de 10, 15 et 20 MeV sur une cible de Ta.	36
Figure 2.3 – Distribution angulaire du rayonnement de Bremsstrahlung calculée avec MCNPX pour des faisceaux d'électrons de 10, 15 et 20 MeV sur une cible de Ta.	37

Figure 2.4 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission du ^{232}Th . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.	39
Figure 2.5 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission de ^{235}U . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.	40
Figure 2.6 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np mesuré par Caldwell.	40
Figure 2.7 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission de ^{238}U . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.	40
Figure 2.8 – Nombre total de neutrons retardés issus de la photofission du ^{239}Pu . Voir la figure pour la provenance des différents résultats.	41
Figure 2.9 – Rendements absolus de neutrons retardés du ^{232}Th déterminés pendant notre expérience de 2005 comparés aux mesures de Moscati, Nikotin et Caldwell.	42
Figure 2.10 – Rendements absolus de neutrons retardés de ^{238}U déterminés lors nos expériences de 2004 et de 2005 comparés aux mesures de Moscati, Nikotin et Caldwell.	42
Figure 2.11 – Comparaison des contributions relatives des six groupes de neutrons retardés de ^{238}U déterminées à 15 et à 18 MeV à celles trouvées par Kull à 8 et 10 MeV et par Nikotin à 15 MeV.	45
Figure 2.12 – Comparaison des contributions relatives des six groupes de neutrons retardés du ^{232}Th déterminées à 15 et à 18 MeV à celles trouvées par Nikotin à 15 MeV.	45
Figure 2.13 – Contribution relative des six groupes de neutrons retardés de ^{235}U suite à l’irradiation longue (à gauche) et l’irradiation courte (à droite).	48
Figure 3.1 – Schéma du dispositif expérimental à ELSA.	53
Figure 3.2 – Structure temporelle du faisceau d’électrons de l’accélérateur ELSA.	54
Figure 3.3 – Géométrie d’ELSA telle qu’elle a été implantée dans le code MCNPX.	55
Figure 3.4 – Section efficace des réactions des neutrons sur le béryllium, le lithium-7 et l’hélium-3 en fonction de l’énergie des neutrons.	58
Figure 3.5 – Image 3D du détecteur hélium-3.	59
Figure 3.6 – Efficacité calculée du détecteur hélium-3 en fonction de l’énergie des neutrons retardés et pour différentes distances cible-compteur. Le rayon extérieur du détecteur est fixé à 16 cm.	60
Figure 3.7 – Efficacité calculée du détecteur hélium-3 en fonction de l’énergie des neutrons retardés et pour différentes valeurs du rayon extérieur. La distance cible-compteur est fixée à 11,5 cm.	60
Figure 3.8 – Photographie du détecteur optimisé. A gauche une vue de l’arrière du détecteur. A droite une vue latérale où on voit la sortie du collimateur et le détecteur.	61
Figure 3.9 – Efficacité de détection mesurée avec une source de neutrons répartie dans la cible d’ ^{235}U en fonction de l’énergie de neutrons retardés. La valeur moyenne retenue et l’incertitude sont aussi indiquées.	62
Figure 3.10 – Spectre en énergie de la source de Californium-252 disponible dans MCNPX.	63
Figure 3.11 - Ajustement des paramètres du générateur.	64
Figure 3.12 – Schéma de l’électronique.	65
Figure 3.13 – Chronogramme de l’acquisition. Les flèches indiquent la dépendance des signaux.	65
Figure 4.1 – Spectre brut pour ^{238}U pour une énergie électron de 15 MeV. Un canal vaut 1 ms.	69

Figure 4.2 – Spectres en amplitude des signaux avant la coupure de bruit de fond. La flèche indique le seuil imposé lors de l'analyse.....	70
Figure 4.3 – Spectre temporel pour l' ²³⁸ U à 15 MeV avant (courbe noire) et après (grise) correction de temps mort.....	71
Figure 4.4 – Spectre de bruit de fond actif à 15 MeV.....	72
Figure 4.5 – Variation du bruit de fond passif (cercles ouverts) de l'environnement et actif (cercles fermés) pendant l'expérience. Les cinq premières mesures de bruit correspondent à celles effectuées durant les deux premiers jours de l'expérience. Le reste des mesures a été réalisé pendant la deuxième semaine de l'expérience.....	72
Figure 4.6 – Efficacité du détecteur lors de l'expérience.....	74
Figure 4.7 – Nombre de fissions par électron incident en fonction de l'énergie électron.....	76
Figure 4.8 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électron pour le ²³² Th.....	77
Figure 4.9 – Comparaison des rendements absolus mesurés pour le ²³² Th à ceux obtenus à l'aide de la modélisation.....	79
Figure 4.10 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électron pour l' ²³⁸ U.....	80
Figure 4.11 – Comparaison des rendements relatifs mesurés pour le ²³⁸ U à ceux obtenus à l'aide de la modélisation.....	81
Figure 4.12 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électron pour l' ²³⁵ U.....	82
Figure 4.13 – Comparaison des rendements relatifs mesurés pour le ²³⁵ U à ceux obtenus à l'aide de la modélisation.....	83
Figure 4.14 – Variation du rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie électron pour le ²³⁷ Np. Les résultats de la modélisation sont aussi présentés.....	84
Figure 5.1 – Spectre brut d'émission de neutrons retardés pour une énergie électron de 15 MeV. Un canal vaut 1ms.....	88
Figure 5.2 – Rendement temporel du bruit de fond pour une irradiation de 300 s et un temps de comptage de 300 s. Le spectre a été obtenu pour une énergie électron de 15 MeV et 3 cycles (1 canal = 1 ms).....	89
Figure 5.3 – Bruit mesuré pour les trois types d'irradiation pour une énergie électron de 15 MeV (motifs noirs) et de 18 MeV (motifs gris). L'abscisse représente l'ordre chronologique.....	89
Figure 5.4 – Le bruit mesuré sans faisceau pendant l'expérience.....	90
L'abscisse représente l'ordre chronologique.....	90
Figure 5.5 – Rendement temporel de neutrons retardés suite à l'irradiation courte (100 µs) pour une énergie électron de 15 MeV. Les canaux ont été regroupés afin d'obtenir une incertitude statistique de 5 %.....	91
Figure 5.6 – Comparaison du spectre expérimental après l'irradiation de 300 s avec les paramètres de Nikotin ($\chi^2/ndf = 1,86$).....	92
Figure 5.7 – Comparaison du spectre expérimental après l'irradiation de 10 s avec les paramètres de Nikotin ($\chi^2/ndf = 2,23$).....	92
Figure 5.8 – Comparaison du spectre expérimental après l'irradiation de 100 µs avec les paramètres de Nikotin ($\chi^2/ndf = 10,99$).....	92
Figure 5.9 – Evolution des paramètres du groupe 2 en fonction de l'intervalle en temps utilisé pour l'ajustement numérique.....	94

Figure 5.10 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation longue (300 s). La courbe expérimentale (noire) est comparée au résultat de l’ajustement (rouge). Les contributions de quatre groupes sont aussi représentées.....	95
Figure 5.11 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation de 10 s. La courbe expérimentale (noire) est comparée au résultat de l’ajustement (rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.....	96
Figure 5.12 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation courte (100 μ s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.....	97
Figure 5.13 – Comparaison de la courbe expérimentale (noire) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 300 s ($\chi^2/ndf = 1,004$).	98
Figure 5.14 – Comparaison de la courbe expérimentale (noire) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 10 s ($\chi^2/ndf = 0,99$).	98
Figure 5.15 – Comparaison de la courbe expérimentale (noire) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 100 μ s ($\chi^2/ndf = 1,03$).	98
Figure 5.16 – Comparaison des données expérimentales (points en noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 300 s. La contribution de ^{238}U (courbe verte) et celle de ^{235}U (courbe bleue) sont aussi présentées.	100
Figure 5.17 – Comparaison des données expérimentales (points en noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 10 s. La contribution de ^{238}U est présentée en courbe verte et celle de ^{235}U en courbe bleue.	101
Figure 5.18 – Comparaison des données expérimentales (points en noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 100 μ s. La contribution de ^{238}U est présentée en courbe verte et celle de ^{235}U en courbe bleue.	101
Figure 5.19 – Comparaison entre les paramètres de six groupes issus de deux analyses à 15 MeV.	101
Figure 5.20 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation longue (300 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions de quatre groupes sont aussi représentées.....	103
Figure 5.21 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation intermédiaire (2 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.....	104
Figure 5.22 – Rendement temporel des neutrons retardés après l’irradiation courte (100 μ s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l’ajustement (courbe rouge). Les contributions des six groupes sont aussi représentées.....	104
Figure 5.23 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 300 s ($\chi^2/ndf = 1,03$).	105
Figure 5.24 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 20 s ($\chi^2/ndf = 0,99$).	105
Figure 5.25 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l’ajustement (rouge) pour l’irradiation de 100 μ s ($\chi^2/ndf = 0,96$).	106
Figure 5.26 – Comparaison entre les paramètres de six groupes issus des deux analyses à 18 MeV.....	107

Figure 5.27 – Comparaison de nos paramètres temporels de l' ²³⁵ U à ceux de Nikotin et Kull.....	108
Figure 5.28 – Spectre temporel expérimental (points noirs) suite à l'irradiation longue pour l' ²³⁵ U. Les courbes paramétrées pour les valeurs minimales et maximales de la plage de variation des paramètres sont représentées par les courbes continues.	109
Figure 5.29 – Spectre temporel expérimental (points noirs) suite à l'irradiation intermédiaire pour l' ²³⁵ U. Les courbes paramétrées pour les valeurs minimales et maximales de la plage de variation des paramètres sont représentées par les courbes continues.....	109
Figure 5.30 – Spectre temporel expérimental (points noirs) suite à l'irradiation courte pour l' ²³⁵ U. Les courbes paramétrées pour les valeurs minimales et maximales de la plage de variation des paramètres sont représentées par les courbes continues.	110
Figure 5.31 – Comparaison des rendements relatifs obtenus expérimentalement pour une énergie électron de 15 MeV à ceux de la modélisation.	111
Figure 5.32 – Comparaison des rendements relatifs obtenus expérimentalement pour une énergie électron de 18 MeV à ceux de la modélisation.	112
Figure 5.33 – Spectre d'émission brut de neutrons retardés pour l'irradiation de 20 s (1 canal=1ms)	113
Figure 5.34 – Spectre de bruit de fond suite à l'irradiation de 20 s (1 canal=1ms)... ..	113
Figure 5.35 – Rendement temporel de neutrons retardés suite à l'irradiation intermédiaire (20 s). Les canaux ont été regroupés afin d'obtenir une incertitude statistique de 4 %.	114
Figure 5.36 – Comparaison du spectre expérimental de l'irradiation 300 s avec la courbe paramétrée de Ganich ($\chi^2/ndf = 2,9$).....	115
Figure 5.37 – Comparaison du spectre expérimental de l'irradiation 20 s avec la courbe paramétrée de Ganich ($\chi^2/ndf = 2,7$).....	115
Figure 5.38 – Comparaison du spectre expérimental de l'irradiation 140 μ s avec la courbe paramétrée de Ganich ($\chi^2/ndf = 6,3$).....	116
Figure 5.39 – Rendement temporel des neutrons retardés après l'irradiation longue (300 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l'ajustement (courbe rouge).....	117
Figure 5.40 – Rendement temporel des neutrons retardés après l'irradiation intermédiaire (20 s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l'ajustement (courbe rouge).	118
Figure 5.41 – Rendement temporel des neutrons retardés après l'irradiation courte (140 μ s). La courbe expérimentale (en noir) est comparée au résultat de l'ajustement (courbe rouge).....	118
Figure 5.42 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 300 s ($\chi^2/ndf = 0,97$).	119
Figure 5.43 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 20 s ($\chi^2/ndf = 1,07$).	120
Figure 5.44 – Comparaison de la courbe expérimentale (noir) et de l'ajustement (rouge) pour l'irradiation de 140 μ s ($\chi^2/ndf = 1,15$).....	120
Figure 5.45 – Comparaison de nos paramètres de neutrons retardés..... du ²³⁷ Np à ceux de Ganich.	121
Figure 5.46 – Comparaison de nos rendements relatifs des six groupes de neutrons retardés du ²³⁷ Np à ceux de la modélisation.	122

Figure 6.1 – Reproduction du spectre expérimental par une courbe paramétrée avec les paramètres de Kull pour l' ^{238}U et l' ^{235}U	128
Figure 6.2 – Reproduction du spectre expérimental avec les paramètres des six groupes de neutrons retardés déterminés à 15 MeV d'énergie électron pour l' ^{235}U et l' ^{238}U	128
Figure 6.3 – Rapport des coefficients en fonction de la masse d'uranium-238 irradiée.....	129
Figure 6.4 – Rapports ($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$) des masses réels (cercles) et calculés (carrés) tracés en fonction de la masse d' U^{238} pour la Géométrie 1 (figure de gauche) et la Géométrie 2, (figure de droite).....	130
Figure 6.5 – Rapports des masses ($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$) calculés avec deux approches tracés en fonction de la masse d' U^{238} dans le cas de la géométrie 1 (figure de gauche) et de la géométrie 2 (figure de droite).....	130
Figure 7.1 – Le rendement absolu de neutrons retardés en fonction de l'énergie des neutrons incidents.....	135
Figure 7.2 – La section efficace différentielle de la production de neutrons monocinétiques à 0° . Pour la partie des courbes en pointillé, les neutrons ne sont plus monocinétiques [Lan04].....	137
Figure 7.3 – a) Schéma du dispositif expérimental au 4MV ; b) Emplacement des compteurs dans les deux blocs de polyéthylène.....	137
Figure 7.4 – Efficacité du système de détection en fonction de l'énergie des neutrons.....	138
Figure 7.5 – a) Superposition de la mesure (continu) et du bruit de fond (pointillé) par cycle.....	140
d'irradiation pour une énergie de neutrons de 2,0 MeV – b) Le signal montrant la chute de la cage de Faraday.....	140
Figure 7.6 – Superposition de la mesure (continu) et du bruit de fond (pointillé) par cycle.....	140
d'irradiation pour une énergie de neutrons de 16,0 MeV.....	140
Figure 7.7 – Superposition de la mesure (continu) et du bruit de fond (pointillé) par cycle.....	142
d'irradiation pour une énergie de neutrons de 3,5 MeV.....	142
Figure 7.8 – Résultat de l'ajustement numérique des paramètres de l'équation (7.5) (courbe rouge) sur le spectre expérimental pour la mesure à 2 MeV (noir).....	144
Figure 7.9 – Résultat de l'ajustement numérique des paramètres de l'équation (6.5) (courbe rouge) sur le spectre expérimental pour la mesure à 2,4 MeV (noir).....	144
Figure 7.10 – Résultat de l'ajustement numérique des paramètres de l'équation (7.5) (courbe rouge) sur le spectre expérimental net pour la mesure à 16,0 MeV (points noirs).....	145
Figure 7.11 – Rendement absolu de neutrons retardés pour le ^{232}Th en fonction de l'énergie des neutrons incidents.....	146
Figure B.1 – Géométrie telle qu'elle a été implantée dans MCNPX.....	160

Liste des Tableaux

Tableau 1.1 – Sections efficaces de fission induite par des neutrons thermiques pour quelques actinides [END07].	18
Tableau 1.2 – Sections efficaces de fission induite par des neutrons de 2 MeV pour quelques actinides [END07].	19
Tableau 1.3 – Nombre moyen de neutrons prompts émis par fission pour quelques actinides [END07].	22
Tableau 1.4 – Temps de demi-vie des différents groupes.	24
Tableau 1.5 – Energie seuil en MeV des trois réactions photonucléaires (γ , n), (γ , 2n) et (γ , f) [END07].	29
Tableau 1.6 – Distribution des masses dans la photofission de ^{235}U [Jac80] et de ^{238}U [Jac79].	32
Tableau 1.7 – Relation entre le nombre de neutrons prompts et l'énergie du photon [Ber86].	33
Tableau 2.1 – Rendements absolus de neutrons retardés issus de la photofission du ^{232}Th , de ^{235}U , de ^{238}U , du ^{237}Np , et du ^{239}Pu .	39
Tableau 2.2 – Seuils de la photofission de seconde chance pour les actinides étudiés. [Cal80a].	41
Tableau 2.3 – Périodes et contributions relatives des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission du ^{232}Th , de ^{235}U , de ^{238}U et du ^{239}Pu pour des énergies électron de 15 MeV [Nik66].	43
Tableau 2.4 – Contributions relatives des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission de ^{235}U et de ^{238}U pour des énergies électron de 8 et 10 MeV [Kull70].	44
Tableau 2.5 – Expériences réalisées dans le cadre de notre campagne expérimentale sur le ^{232}Th , ^{235}U , le ^{237}Np et ^{238}U . Les énergies électron utilisées et les observables déterminées sont aussi indiquées.	46
Tableau 3.1 – Dimensions, masse et impuretés de chaque cible d'actinides.	56
Tableau 3.2 – Masse et impuretés mesurées par spectrométrie gamma de quelques cibles d'actinides.	56
Tableau 3.3 – Rappel des masses, ν_d , et sections efficaces de photofission pour ^{238}U , ^{235}U et le ^{237}Np [Nik66, Cal75]. Le nombre total de neutrons retardés attendu, relativement à une masse donnée d' ^{238}U est aussi présenté.	57
Tableau 3.4 – Les efficacités de détection calculées avec les cibles d'actinides.	62
Tableau 4.1 – Nombre de cycles effectués pour les mesures de rendements absolus de neutrons retardés du ^{232}Th , de ^{235}U et de ^{238}U en fonction de l'énergie électron.	69
Tableau 4.2 – Efficacités de détection des neutrons retardés corrigées de l'écart trouvé entre le calcul et la mesure de l'efficacité du détecteur pour une source de californium-252.	74
Tableau 4.3 – Comparaison des mesures d'activités du cuivre-62 et cuivre-64 avec les simulations MCNPX pour les cibles de cuivre de 3 mm d'épaisseur irradiées pendant 2 minutes.	75
Tableau 4.4 – Comparaison des mesures d'activités du cuivre-62 et cuivre-64 avec les simulations MCNPX pour les cibles de cuivre de 5 mm d'épaisseur irradiées pendant 20 minutes.	75
Tableau 5.1 – Résumé des irradiations à 15 MeV et à 18 MeV.	88

Tableau 5.2 – Paramètres des groupes 1 à 6 extraits de l’irradiation 300 s – 300 s.	95
Tableau 5.3 – Valeurs des paramètres des groupes 3 à 6 extraits de l’irradiation 10 s – 100 s.	96
Tableau 5.4 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 extraits de l’irradiation 100 μ s – 40 s.	96
Tableau 5.5 – Valeurs des paramètres des six groupes de neutrons retardés de l’ ^{235}U irradié pour une énergie de Bremsstrahlung maximale de 15 MeV.	97
Tableau 5.6 – Valeurs des paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission de l’ ^{238}U [Gia05].	99
Tableau 5.7 – Valeurs des paramètres des six groupes de neutrons retardés issus de la fission de l’ ^{235}U induite dans un spectre de neutrons rapides [Kee57].	99
Tableau 5.8 – Valeurs des paramètres des six groupes de l’ ^{235}U extraits des trois spectres expérimentaux à 15 MeV et corrigés de la contribution de neutrons retardés provenant des réactions $^{235}\text{U}(n,f)$ et $^{238}\text{U}(\gamma,f)$	100
Tableau 5.9 – Valeurs des paramètres des groupes déterminés suite à l’irradiation longue (300 s – 300 s) pour l’ ^{235}U à 18 MeV.	102
Tableau 5.10 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 déterminés de l’irradiation intermédiaire (2 s-18 s) pour l’ ^{235}U à 18 MeV.	103
Tableau 5.11 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 déterminés de l’irradiation courte (100 μ s – 40 s) pour l’ ^{235}U à 18 MeV.	104
Tableau 5.12 – Les paramètres des six groupes de neutrons retardés de l’ ^{235}U pour une énergie électron de 18MeV.	105
Tableau 5.13 – Valeurs des paramètres des groupes 1 à 6 extraits des trois spectres expérimentaux de 18 MeV corrigés de la contribution des deux fissions.	106
Tableau 5.14 – Comparaison des valeurs de ce travail à celles publiées par Nikotin et al.	107
Tableau 5.15 – Comparaison des résultats expérimentaux de 15 MeV à la modélisation.	110
Tableau 5.16 – Comparaison des résultats expérimentaux de 18 MeV à la modélisation.	111
Tableau 5.17 – Résumé des irradiations à 15 MeV.	112
Tableau 5.18 – Valeurs des paramètres des groupes 1 à 6 déterminés de l’irradiation 300 s –300 s.	117
Tableau 5.19 – Valeurs des paramètres des groupes 3 à 6 déterminés suite à l’irradiation 20 s – 100 s.	117
Tableau 5.20 – Valeurs des paramètres des groupes 5 et 6 déterminés de l’irradiation 140 μ s – 40s.	118
Tableau 5.21 – Valeurs des paramètres temporels des six groupes des neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np ($E_e = 15$ MeV).	119
Tableau 5.22 – Nos paramètres temporels des six groupes de neutrons retardés issus de la photofission du ^{237}Np ($E_e = 15$ MeV) comparés à ceux de Ganich.	121
Tableau 5.23 – Comparaison des résultats expérimentaux et de la modélisation.	122
Tableau 6.1 – Nombre de cycles de 140 μ s d’irradiation et de 40 s de décroissance effectué pour les trois mélanges et les deux géométries. Les numéros attribués aux mélanges seront utilisés pour les désigner ultérieurement dans ce chapitre.	125
Tableau 6.2 – Masses d’ ^{235}U et d’ ^{238}U contenues dans chaque mélange et leurs rapports.	127
Tableau 6.3 – Masses réelles et mesurées d’ U^{235} et d’ U^{238} contenues dans chaque mélange.	131

Tableau 7.1 – Résumé des mesures du rendement absolu de neutrons retardés du ^{232}Th réalisées avec la cible de production de titane tritiée.....	141
Tableau 7.2 – Résumé des mesures du bruit de fond réalisées avec la cible de production de titane tritiée.....	141
Tableau 7.3 – Résumé des mesures du rendement absolu de neutrons retardés du ^{232}Th réalisées avec la cible de production de deutérium.....	141
Tableau 7.4 – Résumé des mesures du bruit de fond réalisées avec la cible de production de deutérium.....	142
Tableau 7.5 – Paramètres des six groupes des neutrons retardés du ^{232}Th [Kee57] pour un spectre rapide de neutrons.....	143
Tableau 7.6 – Rendement absolu de neutrons retardés pour les énergies de neutrons de 2,0, 2,4 et 16,0 MeV.....	145
Tableau A.1 – Liste des précurseurs répertoriés par England présentés sous la forme suivante : X, M, état, $T_{1/2}$, P_n et n.....	157
Tableau B.1 – Signal brut, bruit, leur rapport, le signal net et la limite de détection en c. s^{-1} et en g pour trois énergies électron.....	161
Tableau C.1 – Termes de l'équation (4.1) et les valeurs de v_d déterminées pour le thorium-232 présentés avec leurs erreurs relatives.....	163
Tableau C.2 – Termes de l'équation (4.1) et les valeurs de v_d déterminées pour l'uranium-238 présentés avec leurs erreurs relatives.....	164
Tableau C.3 – Termes de l'équation (4.1) et les valeurs de v_d déterminées pour l'uranium-235 présentés avec leurs erreurs relatives.....	165

Bibliographie

[Bat56] Batchelor R., McK. Hyder H. R., «The energy of delayed neutrons from fission», *J. Nuclear Energy*, 1956, vol.3, p. 7-17.

[Bel04] Belgya T., Bersillon O. Capote R. et al., Reference Input Parameter Library RIPL-2, Handbook for calculations of nuclear data. IAEA techdoc, 2004.

[Ben97] Benlliure J., Grewe A. Et al., «Calculated nuclide production yields in relativistic collisions of fissile nuclei», *Nuclear Physics A*, 1998, vol. 628, p.458.

[Ber86] Berman B. L., Caldwell J. T. et al., «Photofission and photoneutron cross sections and photofission neutron multiplicities for ^{233}U , ^{234}U , ^{237}Np and ^{239}Pu ». *Physical Review C*, 1986, vol.34, n°6, p. 2201-2214.

[Bey74] Beynon T. D., «The nuclear physics of fast reactors», *Rep. Prog. Phys.*, 1974, vol.73, p. 951-1034.

[Boh39] Bohr Niels, Wheeler John Archibald, «The Mechanism of Nuclear Fission», 1939, *Physical Review*, 56, p.426.

[Boy05] Boyer S. et al., «*fast neutron detector for nuclear waste characterization*», Proceedings of Global, Tsukuba (Oct 9-13, 2005), Paper No. 303.

[Boy06] Boyer S., Berthoumieux E., Doré D. et al., «Delayed gammas detection technique for nuclear waste characterization», Proceedings of the International Conference, NEMEA-3, Borovets Bulgaria, 2006, 4 p.

[Cal75] Caldwell J. T., Dowdy E. J., «Experimental determination of photofission neutron multiplicities for eight isotopes in the mass range $232 \leq A \leq 239$ », *Nuclear Science and Engineering*, 1975, vol. 56, p. 179-187.

[Cal80a] Caldwell J. T., Dowdy E. J. et al., «Experimental determination of photofission multiplicities for ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , and ^{232}Th using monoenergetic photons», *Nuclear Science and Engineering*, 1980, vol. 73, p. 153-163.

[Cal80b] Caldwell J. T., Dowdy E. J. et al., «Giant Resonance for the actinide nuclei: Photoneutron and photofission cross sections for ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , and ^{232}Th », *Physical Review C*, 1980, vol. 21, n° 4, p. 1215-1231.

[Cha34] Chadwick J., Goldhaber M., «A Nuclear Photo-effect: Disintegration of the dipion by γ – rays», *Nature*, 1934, p. 237-238.

[Cha03] Chadwick Mark B. et Giacri Marie-Laure, «Photonuclear reactions for detection of nuclear materials and proliferation», Proceedings of the International Conference on Nuclear Mechanisms, Varenna, Italy, 2003, 8 p.

- [Dav04] Davis J.C. et al., «Fissile fragment distributions and delayed neutron yields from photon induced fission», Proceedings of ND2004 Conference, Santa Fe, USA, 2004
- [Dei90] Dei-Cas R., Balleyguier P. et al., «Status report on the low-frequency photo-injector and on the infrared FEL experiment (ELSA) », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 1990, vol. 296, p. 209-216.
- [Dig07] Dighe P.M., Berthoumieux E., Doré D. et al., «Characterization of delayed gammas for detection of U-235 in nuclear waste barrels», Proceedings of the International Conference, NEMEA-4, Prague, Czech Republic, 2007, 4 p.
- [Dor05] Doré Diane, David Jean-Christophe et al., «Delayed neutron yields and spectra from photofission of actinides with Bremsstrahlung photons below 20 MeV», Proceedings of the Nuclear Physics Division Conference, *IOP Journal of Physics*, Conference series, 2005, vol. 41, p. 241
- [Dor07a] Doré Diane et al., «Delayed neutron yields and spectra from photofission of actinides: Data and calculations with Bremsstrahlung photons below 20 MeV», Proceedings of the international conference on Nuclear Data for science and technology, Nice, France, 2007, 4p.
- [Dor07b] Doré Diane, «Status of Experiment», Conseil Scientifique et Technique du SPhN, CEA, Saclay, 2007, 26 p.
- [END07] Evaluated Nuclear Data File (ENDF)/B-VII Incident- Neutron Data, *web site: <http://t2.lanl.gov/data/neutron7.html>*
- [ENG94] England T. R. et Rider B. F., «Evaluation and compilation of fission product yields», LA-UR-94-3106, Los Alamos National Laboratory, 1994, 18p.
- [Fin90] Findlay D. J. S., «Applications of photonuclear reactions», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 1990, vol. 50, p. 314-320
- [Gia05] Giacri-Mauborgne M. L., «Création d'une bibliothèque d'activation photo-nucléaire et mesures de spectres d'émission de neutrons retardés», Thèse de doctorat de l'université de Caen de Basse-Normandie : Physique, 198 p., 2005.
- [Gma06] Gmar Mehdi, Berthoumieux Eric et al., «Detection of nuclear material by photon activation inside cargo containers», SPIE Defense and Security Symposium, Orlando, Florida USA, 2006, 11 p.
- [Gui02] Guimbal Ph., Balleyguier P. et al., «Status of the ELSA-2 Project», Proceedings of EPAC, Paris, France, 2002, p. 1768-1770.
- [Hen05] Hendricks J. et al., «MCNPX extensions: version 2.5.0», LA-UR-05-2675, LANL, USA, 2005.
- [Her69] Hermann G., Panel delayed fission neutrons, International Atomic Energy Agency (Vienna), 1969, p. 147.

- [Hug48] Hughes D. J., Dabbs J. et al., «Delayed neutrons from fission of ^{235}U », *Physical Review*, 1948, vol.73, n°2, p. 111-124
- [Huy99] Huynh Frédéric, «Tomographie appliquée à la détection des actinides par photofission», Thèse de doctorat de l'université paris XI : Physique, 229 p., 1999
- [Inp06] Les défis du CEA, n° 116, Juillet-Août 2006
- [Jac79] Jacobs E., Thierens H. et al., «Product yields of photofission of ^{238}U with 12, 15, 20, 30 and 70 MeV bremsstrahlung», *Physical Review C*, 1979, vol.19, n°2, p. 422-432
- [Jac80] Jacobs E., Thierens H. et al., «Product yields of photofission of ^{235}U with 12, 15, 20, 30 and 70 MeV bremsstrahlung», *Physical Review C*, 1980, vol.21, n°1, p. 237-245
- [Jal01] Jallu F., Lyoussi A. et al., «Fissile and non-fissile element separation in concrete radioactive waste drums using the SIMPHONIE method», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2001, vol. 179, p. 267-278
- [Jon00] Jones J. L., Yoon W. Y. et al., «Proof of concept assessment of a Photofission-Based Interrogation system for the detection of shielded nuclear material», INNEEL/EXT, 2000, 25 p.
- [Jun98] Junghans A. R., De Jong, Clerc H.-G. et al., «Projectile-fragment yields as a probe for the collective enhancement in the nuclear level density», *Nuclear Physics A*, 1998, p.635
- [Kee57] Keepin G. R., Wimett T. F., Zeigler R. K., «Delayed neutrons from fissionable isotopes of uranium, plutonium and thorium», *J. Nuclear energy*, 1957, vol.6, p.1-21
- [Kee58] Keepin G. R., «Interpretation of delayed neutron phenomena», *J. Nuclear Energy*, 1958, vol.7, p. 13-34
- [Kin05] Kinlaw M. T., Hunt A.W., «Time dependence of delayed neutron emission for fissionable isotope identification», 2005, *Applied Physics Letter*, vol.86, 3 p.
- [Kul70] Kull L. A., Bramblett et al., «Delayed neutrons from low energy photofission», *Nuclear Science and Engineering*, 1970, vol.39, p. 163-169
- [Lan04] Lantuéjoul I., «Etude expérimentale des mécanismes de pré-équilibre dans les réactions (n, xn)», Thèse de doctorat, Université de Caen/Basse-Normandie, 2004
- [Mak58] Maksyutenko B. P., «Relative yields of delayed neutrons in fission of ^{235}U , ^{238}U and ^{232}Th by fast neutrons», *J. Exptl. Theoret. Phys.*, 1958, vol. 35
- [Mak03] Makil H., Poumarède B. et Lainé F., «Compte rendu des essais sur le colis maquette CEDRA», 2003, Rapport DIMRI/SIAR/RAP03-023.

- [Mar02] Marmouget J.-G., Binet A., Guimbal Ph., «Present performance of the low emittance, high-bunch charge ELSA photo-injected LINAC», Proceedings of EPAC, Paris, France, 2002, p. 1795-1797
- [Mas69] Masters Christopher F., Thorpe M. M., Smith Darryl B., «The measurements of absolute delayed neutron yields from 3.1 and 14.9 MeV fission», *Nuclear Science and Engineering*, 1969, vol. 36, p. 202-208
- [Mea78] Meadows J. et al., «Nuclear data and measurements series ANL/NDM-35, evaluated data file for ^{232}Th », Argonne National Laboratory, 1978, 104 p
- [Mey67] Meyerhof W. E., «Eléments de physique nucléaire», McGraw-Hill Book Company, 1967, 310 p.
- [Mor] Moritz, logiciel pour Windows, version 1.3.
- [Mos62] Moscati G., Goldemberg J., «Delayed neutron yields in the photofission of ^{235}U and ^{232}Th », *Physical Review*, 1962, vol.126, n°3, p.1098-1099
- [Nik66] Nikotin O. P., Petrzhak K. A., «Delayed neutron in the photofission of heavy nuclei», *Atomnaya Energiya*, vol.20, n°3, p. 268-270
- [Pan07] Pancin J. et al., «Neutron detection in high γ background using a micromegas detector», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A (NIM A)*, 2007, 7p.
- [Pic04] Pichoff N., Balleyguier P. et al., «Extraction of high charge electron bunch from the ELSA RF injector – Comparison between simulation and experiment», Proceedings of LINAC, Lübeck, Germany, 2004, p. 402-404
- [Pou04] Poumarède B., «Etude en énergie», 2004, Note DETECS/SSTM/04-0290
- [Pou05] Poumarède B., *Communication privée*.
- [Pro99] Pronyaev V. G., Meeting on assessment of nuclear data needs for thorium and other advanced cycles, IAEA Headquarters, Vienna, 1999, 15 p.
- [Rob39] Roberts R. B., Meyer R. C., Wang P., «Further Observations on the Splitting of Uranium and Thorium», *Physical Review*, 1939, p. 510-511.
- [Roo07] User's Guide v5.16 (2007), web site: <http://root.cern.ch/root/doc/RootDoc.html>
- [Tan86] Tanczyn R. S., Sharfuddin Q. et al., «Composite delayed neutron energy spectra for thermal fission of ^{235}U », *Nuclear science and engineering*, 1986, vol.94, p. 353-364

[Van06] Van Lauwe A., Davis J.-C., Doré D. et al., «Photofission of ^{232}Th and ^{238}U with Bremsstrahlung photons below 20 MeV: Measurements and Model predictions of delayed neutron yields and spectra», Proceedings of the 11th International Conference on Nuclear Reaction Mechanisms, Varenne, Italie, 2006, 12 p.

[Wal81] Waldo R. W., Karam R. A., Meyer R. A., «Delayed neutron yields: Time dependant measurements and a predictive model», 1981, *Physical Review C*, vol. 23, n°3, p. 1113-1127

[Wil99] Wilson W. B., England T. R. et Van Kiper K. A., «Status of CINDER»90 Codes and Data», Los Alamos National Laboratory, LA-UR-99-361, 1999.

[Yos02] Yoshida Tadashi, Okajima Shigeaki et al., «Evaluated of delayed neutron data for JENDL-3.3», *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2002, p. 136-139

[Yosh04] Yoshida Tadashi et Nakagawa T., private communication (2004).

Résumé en français : Etude expérimentale de l'émission de neutrons retardés issus de la photofission des actinides.

Différents projets d'applications de la photofission basées sur la détection de neutrons retardés ont vu le jour ces dernières années. Les études préliminaires pour ces projets, telle la caractérisation des déchets nucléaires, ont mis en lumière le besoin de nouvelles données. Dans ce cadre, un programme expérimental a été lancé afin de mesurer les spectres temporels de neutrons retardés pour les principaux actinides. Il a débuté par les mesures sur l'uranium-238 et le thorium-232. L'objectif de cette thèse est de poursuivre avec des expériences sur l'uranium-235 et le neptunium-237. Un détecteur de neutrons retardés a été optimisé, construit et utilisé pour les mesures réalisées à 15 MeV et à 18 MeV d'énergie maximale de Bremsstrahlung pour l' ^{235}U et à 15 MeV pour le ^{237}Np . Les résultats obtenus pour les paramètres des groupes de neutrons retardés $\{a_i, \lambda_i\}$ ont été comparés aux données de la littérature et à ceux d'une modélisation. L'évolution du rendement absolu de neutrons retardés (v_d) a été étudiée pour le ^{232}Th , l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{237}Np à des énergies maximales de Bremsstrahlung comprises entre 12 et 18 MeV. Enfin, un test de faisabilité d'identification et de quantification d'un mélange d'actinides a été effectué. Parallèlement à ces expériences, nous avons étudié l'évolution du v_d en fonction de l'énergie pour la fission neutronique du ^{232}Th .

Mots clés : fission, Bremsstrahlung, photofission, actinide, produits de fission, neutrons retardés.

Summary: Experimental study of delayed neutron emission from photo-fission of actinides.

Recently there is a strong interest in a number of applications using the detection of delayed neutrons. Some ongoing projects, as non-destructive characterization of nuclear waste, have shown an urgent need of associated nuclear data. In this context, an experimental program has been launched to measure the delayed neutron yields and their time spectra from photo-fission of actinides. The very first measurements had been performed earlier in our laboratory with the uranium-238 and thorium-232 targets. In this thesis work the follow-up experiments, data analysis and results are reported for uranium-235 and neptunium-237. The high efficiency delayed neutron detector was designed, optimised, constructed and employed for these experiments with the endpoint Bremsstrahlung photons from 15 to 18 MeV. The photo-fission delayed neutron group parameters $\{a_i, \lambda_i\}$ were obtained and compared both with earlier work found in the literature and our own modelling results. The energy dependence of the total delayed neutron yield (v_d) was also experimentally studied with the endpoint Bremsstrahlung photons in the energy range from 12 to 18 MeV for the uranium-235, 238, thorium-232, and neptunium-237 targets. Finally, some feasibility experiments were successfully performed with mixed samples in order to quantify the different actinide presence in the target. In parallel, the energy dependence of the total delayed neutron yield (v_d) was also experimentally studied for thorium-232 but from neutron induced fission.

Key words: fission, Bremsstrahlung, photo-fission, actinide, fission fragments, delayed neutrons.