



**HAL**  
open science

**Etude préliminaire de la mesure du rapport alpha,  
rapport de la section efficace moyenne de capture sur  
celle de fission de l' $^{233}\text{U}$ , sur la plateforme PEREN -  
Développement et étude du dispositif expérimental -**

Marie-Anne Cognet

► **To cite this version:**

Marie-Anne Cognet. Etude préliminaire de la mesure du rapport alpha, rapport de la section efficace moyenne de capture sur celle de fission de l' $^{233}\text{U}$ , sur la plateforme PEREN - Développement et étude du dispositif expérimental -. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2007. Français. NNT: . tel-00269052v2

**HAL Id: tel-00269052**

**<https://theses.hal.science/tel-00269052v2>**

Submitted on 7 Apr 2008

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

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

**INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**

**THESE**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'INPG**

**Spécialité : Energétique Physique**

préparée au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie

dans le cadre de l'**Ecole Doctorale de Mécanique et Energétique**

présentée et soutenue publiquement

par

**Marie-Anne COGNET**

le 20 Décembre 2007

**Etude préliminaire de la mesure du rapport  $\alpha$ , rapport de la section efficace moyenne de capture sur celle de fission de l' $^{233}\text{U}$ , sur la plateforme PEREN**

**- Développement et étude du dispositif expérimental -**

*Directeur de thèse :* Daniel HEUER

*co-Directrice de thèse :* Elsa MERLE-LUCOTTE

**JURY :**

Gérard Barreau	Président du jury
Eric Bauge	Rapporteur
Laurent Tassan-Got	Rapporteur
Daniel Heuer	Directeur de thèse
Elsa Merle-Lucotte	Co-directrice de thèse
Jean-Claude Angélique	Examineur



# Remerciements

Mes premiers remerciements vont à Johann Collot et à Serge Kox, respectivement ancien et actuel directeur du LPSC, qui m'ont accueilli au sein de leur laboratoire et qui ont toujours prêté attention aux doctorants et à leur devenir.

Je tiens également à remercier l'ensemble des membres de mon jury de thèse pour l'intérêt que chacun a porté à mon manuscrit de thèse. Je suis très reconnaissante envers Gérard Barreau qui a accepté de présider mon jury de thèse. Mes remerciements s'adressent aussi à Eric Bauge et à Laurent Tassan-Got, qui ont accepté d'être mes rapporteurs, ainsi qu'à Jean-Claude Angélique, pour leurs relectures très attentives et leurs commentaires.

J'aimerais remercier Daniel Heuer et Elsa Merle-Lucotte, respectivement mon directeur et ma co-directrice de thèse. Je les remercie tout particulièrement pour la confiance qu'il m'ont accordée lors de ces trois ans. Merci Daniel de m'avoir proposé un tel sujet, véritable projet à mener en trois ans. Malgré les difficultés attendues du sujet, je te suis reconnaissante d'avoir tenté l'expérience. Ce sujet complet m'a beaucoup apporté. Je te remercie aussi pour tous les conseils que tu m'as donnés pendant ces trois ans. Merci Elsa pour ton encadrement, tes conseils, tes nombreuses relectures. J'ai été très fière d'être ta première thésarde et je te souhaite d'en encadrer encore beaucoup (moins pugnaces que moi !).

Je tiens à remercier tout particulièrement Eric Liatard qui m'a beaucoup aidé malgré ses très nombreuses contraintes d'enseignement. Il m'a beaucoup appris sur la plateforme PEREN et ses conseils avertis m'ont été très profitables.

Je remercie l'ensemble du groupe Physique des Réacteurs qui m'a accueillie : Roger Brissot, Adrien Bidaud, Annick Billebaud, Ibrahim Bou Malham, Sébastien Chabod, Xavier Doligez, Véronique Ghetta, Perrine Guillemin, Daniel Heuer, Christian Le Brun, Eric Liatard, Jean-Marie Loiseaux, Elsa Merle-Lucotte, Hervé Nifenecker et Alexis Nuttin. J'ai pris plaisir à travailler dans ce groupe lors de ces années de thèse. Je n'oublie pas Murielle Heusch ni Michel Allibert qui, sans faire partie du groupe, apportent beaucoup par leur aide et leur bonne humeur.

J'aimerais aussi remercier des membres de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay avec qui j'ai eu l'occasion de travailler pour la fabrication et les caractérisations des cibles. Un très grand merci aux radiochimistes, Claire Le Naour et Didier Trubert, qui ont fabriqué les cibles. Je ne remercierai

jamais assez Laurent Tassan-Got pour le prêt d' $^{235}\text{U}$ . Il m'a aussi permis, avec l'aide de Sylvie Pierre et Claude Stephan de caractériser mes cibles.

Lors de ma thèse, j'ai eu l'occasion d'être en contact avec de nombreux services du laboratoire. Je tiens donc à exprimer ma gratitude envers le service SDI dont particulièrement Olivier Guillaudin qui a fait tout le travail de conceptualisation des chambres à fission. Je tiens également à remercier Alain Pelissier qui s'est occupé du montage et du travail délicat du tissage des électrodes centrales des chambres, ainsi que Thierry Cabanel qui a fait les montages de fermeture des chambres à fission.

Je remercie le service mécanique dont particulièrement Eric Perbet qui a dessiné les plans des chambres à fission et aussi les mécaniciens qui ont fabriqué et soudé celles-ci. Enfin, je ne peux oublier Denis Grondin et Guy Michel qui ont toujours pu insérer dans leur planning les travaux que je voulais.

Je suis également très reconnaissante envers le service AKIDO, particulièrement envers Joël Bouvier, venant toujours dépanner avec le sourire, et envers Georges Barbier et celui qui a pris sa suite, Fabrice Pancher.

J'aimerais remercier le service électronique, dont Ludovic Eraud. Il m'a toujours rendu service dans l'instant. Merci à Germain Bosson qui m'a aussi aidée en ce qui concerne les modules électroniques.

Je ne peux pas ne pas remercier Alain Nicollet. Il a monté la chambre sur le banc de pompage et effectué le remplissage de la chambre à fission. De plus, il m'a très souvent aidé pour de nombreux menus services.

Je remercie très chaleureusement l'ensemble du service accélérateur : un énorme merci à Michel Planet pour avoir fait tourner le faisceau (entre autres en continu, nuits et jours 6 jours sur 7 pendant l'été 2006), ainsi qu'à Roger Micoud qui l'a suppléé dans cette rude tâche. Merci aussi à Maud Beylac pour nous avoir autorisé à tourner autant et Denis Marchand pour les changements de cibles TiT et de détecteur Silicium. Je n'ose même pas parler du démontage de GENEPI et du temps que cela vous a pris, à tous... Je vous en suis véritablement très reconnaissante. Je remercie aussi tous ceux que j'ai croisés, comme Jean-Marie de Conto ou Michel Fruneau, qui ont toujours pris de l'intérêt à ma manip.

Mes remerciements s'adressent aussi aux autres services du laboratoire. Je pense au service informatique et plus particulièrement à Christine Gondrand qui a consacré du temps pour régler mes divers soucis informatiques. Je remercie tout le service administratif et plus spécifiquement France Chassary, ainsi que Chantal Mazzola pour les missions. Enfin, merci à William Regairaz du service sécurité et radioprotection pour les autorisations de détention de  $^{233}\text{U}$ , ou encore pour la réglementation lors des transports des cibles. J'en profite pour remercier ses homologues à l'IPNO, Nicolas Vigot et Yves Adès ainsi que Philippe Brion et Daniel Stanchina du LAPP pour l'aide qu'ils m'ont fourni lorsque j'ai dû organiser ces transports.

Lors de ma thèse, j'ai eu la chance d'effectuer un monitorat grâce au CIES et à l'ENSPG. J'en garde un excellent souvenir que je dois, entre autres, aux personnes qui m'ont entourée. Un immense merci à Elsa Merle-Lucotte, qui en plus de m'avoir incitée à poser un dossier de demande de monitorat, m'a beaucoup conseillée lors de ces trois années. Merci aussi à Nicole Coutris, Josette Mabed, Arnaud Lucotte, Ludovic Mathieu, Alexis Nuttin, Adrien Bidaud, Jean-Claude Angélique, Roger Brissot, ... et Michel Schlenker pour l'exposition "Magnétisme".

J'aimerais aussi citer des personnes qui furent pour moi plus que de simples collègues de travail mais aussi des amis dans les moments difficiles. Je pense entre autres (et dans le désordre) à Mahfoud, France, Annick, Perrine, Xavier, Elsa, Arnaud, Maryse ... De nombreuses personnes m'ont montré beaucoup de sympathie comme Sabine, Nicole, Jocelyne, ... Je les en remercie vivement.

Je remercie aussi tous les anciens compagnons de baigne à savoir les thésards du groupe. Je remercie donc les "anciens" du groupe Physique des Réacteurs : Nico, Joch, Olo et Ludo, tous deux d'excellents professeurs en mauvaise foi ; comme les "nouveaux" : Perrine, Xavier, qui ont été tout particulièrement sympas envers la "thésarde 3<sup>ième</sup> année". Je leur souhaite à tous bonne chance pour la suite. J'ai aussi une pensée pour les stagiaires qui ont amené un peu de fraîcheur et de bonne humeur : Nico\*, Eléonore et Mathilde (merci pour vos excellents gâteaux !). Je remercie aussi les autres thésards (anciens ou présents) du labo comme Xavier, Benjamin, Perrine, Bjoern, Julien, Bertrand, Julien, Laurent, Sylvain, Guillaume, Antje, Stéphanie, Yohann et Maud, ... ainsi que les quelques post-docs dont Benoît, Guiseppe, Richard, compagnon de bureau très agréable tout comme Ibrahim.

En dehors du travail, il y a eu beaucoup de personnes à mes côtés. Je dois beaucoup à D. Chadefaux et à B. David. Un grand merci à eux deux. Je pense aussi aux amis que je n'ai pas forcément beaucoup pu voir ces dernières années comme Florence Bonhomme, Lucie Bonin ou Xavier Gnata, et à ceux qui m'ont fait découvrir le JDR : Ben, Denis, Ludo, Olo, ...

J'aimerais tout particulièrement remercier de véritables amis, qui m'ont tous aidé et soutenu à leur façon :

- Je remercie Christina Villeneuve, qui a toujours su trouver du temps, les quelques fois où elle passait sur Grenoble, pour venir nous voir et discuter, entre autres, de nos thèses respectives.
- J'ai une pensée pour Ludovic Mathieu qui a toujours pris le temps de me conseiller judicieusement et de répondre à mes questions de petite thésarde. Nos discussions de physique mais aussi de sujets plus personnels ont toujours été un réel plaisir. Enfin, et c'est l'essentiel à mes yeux, tu as toujours répondu présent pour me soutenir et m'encourager quoi qu'il advienne.
- Je suis aussi reconnaissante envers Olivier et Maud qui ont toujours été là malgré des emplois du temps plus que chargés.
- Enfin, je ne peux pas ne pas avoir une pensée pour Aymeric Montgrenier, ami depuis si longtemps. Notre échange épistolaire m'a toujours été extrêmement cher et je souhaite qu'il se

poursuive encore très longtemps. Jamais son soutien envers moi n'a fait défaut pendant ces années malgré la distance qui nous séparait.

Pour tout ce que vous m'avez apporté : merci ! J'espère tant que cela a été réciproque !

Que serais-je devenu sans ma famille et leur soutien ? Tout particulièrement mes deux parents et mon frère Pierre, toujours présents et toujours compréhensifs, quelles que soient mes décisions. Ils m'ont toujours aidée et conseillée quand j'en avais besoin. Je pense aussi aux autres membres de ma famille qui m'ont toujours encouragée, tout particulièrement mes grands-parents, mais aussi mes oncles et tantes et leurs enfants, mes grands-oncles et grandes tantes,... J'aimerais pouvoir tous les citer. Le plus beau moment d'une vie est quand on apprend qu'on a une famille sur qui compter. Ainsi, les moments les plus difficile de ma vie, avant et pendant ma thèse, ont toujours été éclairés par leur présence et leur soutien. Je ne leur dirai jamais assez merci.

Mon dernier merci ne sera pas le moindre, bien au contraire. Il s'adresse à Florent Chevallier. Je n'oublie pas ses parents et sa tante dont les nombreux week-ends à visiter telle ou telle partie de la France ont permis à Florent et à moi de fuir, pour un temps, le stress du travail. Quant à Florent, l'homme qui partage ma vie, je lui dois tant... Il m'a toujours soutenu, encouragé et aidé sans conditions. Merci d'avoir été là.

Enfin, pour terminer de façon plus légère, je ne peux pas ne pas avoir une petite pensée aux nombreux lapins, chats, mésanges, pies, corbeaux, pics-verts et même frelons qui m'ont accompagnée pendant, entre autres, mes longues soirées de shifts.

A Maman et Papa  
A mon frère Pierre, Rachel et Sarah  
A mes Grands-Parents

A Florent





# Table des matières

<b>1</b>	<b>Contexte général</b>	<b>19</b>
1.1	Quel nucléaire pour demain ? . . . . .	21
1.1.1	Vers la quatrième génération de réacteurs nucléaires . . . . .	21
1.1.2	Quels cycles de combustible utiliser ? . . . . .	23
1.1.3	Cas des réacteurs actuels : utilisation de l' $^{235}\text{U}$ , seul noyau fissile naturel . . . . .	23
1.1.4	Utilisation de la filière $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ dans des Réacteurs à Neutrons Rapides surgénérateurs . . . . .	24
1.1.5	Utilisation de la filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ dans des Réacteurs à Sels Fondus surgénérateurs . . . . .	25
1.2	Description d'un Réacteur à Sels Fondus (RSF) . . . . .	28
1.3	Apports des simulations et nécessités de nouvelles mesures de données nucléaires . . . . .	31
<b>2</b>	<b>Le rapport <math>\alpha</math> de l'<math>^{233}\text{U}</math> : définition et état des lieux des données existantes</b>	<b>33</b>
2.1	Qu'est-ce que le rapport $\alpha$ de l' $^{233}\text{U}$ ? . . . . .	33
2.2	Types de mesures du rapport $\alpha$ . . . . .	35
2.2.1	Mesures différentielles ou intégrales . . . . .	35
2.2.2	Mesures directes ou indirectes . . . . .	35
2.3	Etats des lieux sur les données existantes du rapport $\alpha$ de l' $^{233}\text{U}$ et de l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	36
2.3.1	Qu'est ce qu'une évaluation ? . . . . .	37
2.3.2	Evaluations des incertitudes . . . . .	38
2.3.3	Etat des lieux pour l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	40
2.3.4	Etat des lieux pour l' $^{233}\text{U}$ . . . . .	47
2.3.5	Conclusions sur les données actuelles disponibles . . . . .	58
<b>3</b>	<b>Description de la plateforme PEREN</b>	<b>61</b>
3.1	Physique du spectromètre à temps de ralentissement : relation Energie - Temps . . . . .	63
3.1.1	Application au massif de Plomb . . . . .	64
3.2	Le spectromètre à temps de ralentissement au plomb . . . . .	68
3.3	Le faisceau de neutrons . . . . .	70
3.3.1	Description du GÉNérateur de NEutrons Pulsé Intense . . . . .	70
3.3.2	Choix de la fréquence de fonctionnement . . . . .	74

3.3.3	Mesure du flux de neutrons par un détecteur Silicium . . . . .	74
3.3.4	Etude de la stabilité de la source de neutrons . . . . .	82
<b>4</b>	<b>Description du système de détection pour la mesure du rapport <math>\alpha</math> de l'<math>^{235}\text{U}</math> et de l'<math>^{233}\text{U}</math></b>	<b>85</b>
4.1	Principe de la mesure . . . . .	85
4.2	Difficultés inhérentes à la mesure . . . . .	86
4.2.1	Efficacité de détection de la fission . . . . .	87
4.2.2	Bruit de fond dû aux photons gamma . . . . .	88
4.3	Dispositif de détection et protocole expérimental . . . . .	89
4.4	Les détecteurs de photons gamma . . . . .	91
4.4.1	Montage expérimental . . . . .	92
4.4.2	Efficacité/résolution des scintillateurs . . . . .	93
4.5	La chambre à fission . . . . .	100
4.5.1	Descriptif . . . . .	100
4.5.2	Choix de l'électrode interne . . . . .	101
4.6	Fabrication et caractérisation des cibles d' $^{235}\text{U}$ et d' $^{233}\text{U}$ insérées dans les chambres à fission . . . . .	104
4.6.1	Caractéristiques géométriques des cibles . . . . .	104
4.6.2	Caractéristiques du matériau utilisé . . . . .	104
4.6.3	Caractérisation expérimentale des cibles . . . . .	106
4.7	Dispositif expérimental complet . . . . .	113
4.8	Description du montage électronique . . . . .	113
4.8.1	Traitement du signal provenant des ensembles [scintillateur YAP - Photomultiplicateur associé] et mise en place de la coïncidence . . . . .	115
4.8.2	Traitement du signal provenant de la chambre à fission . . . . .	116
4.8.3	Réglages de l'électronique . . . . .	116
4.9	L'acquisition . . . . .	116
4.9.1	Utilisation de deux cartes d'acquisition . . . . .	118
4.9.2	Optimisation du taux de comptage et fonctionnement stable de l'acquisition . . . . .	119
4.9.3	Programme d'analyse . . . . .	123
<b>5</b>	<b>Etude des chambres à fission à <math>^{235}\text{U}</math> et à <math>^{233}\text{U}</math></b>	<b>127</b>
5.1	Code Monte-Carlo de Transport de Produits de Fission (MCTPF) . . . . .	128
5.1.1	Description de MCTPF . . . . .	128
5.1.2	Validation de MCTPF . . . . .	132
5.1.3	Résultats des simulations de MCTPF . . . . .	152
5.2	Etudes préliminaires du fonctionnement de la chambre à fission . . . . .	153
5.2.1	Etude du fonctionnement de la chambre à fission avec GENEPI en fonction de la haute tension appliquée . . . . .	153

5.2.2	Proportion des particules $\alpha$ dans le spectre de fission pour l' $^{235}\text{U}$ : mesures expérimentales . . . . .	155
5.2.3	Proportion des particules $\alpha$ dans le spectre de fission pour l' $^{235}\text{U}$ : estimation par MCTPF. . . . .	157
5.2.4	Efficacité de détection de fission . . . . .	168
<b>6</b>	<b>Description de la simulation numérique</b>	<b>171</b>
6.1	Les codes de simulation utilisés . . . . .	171
6.1.1	Le transport des neutrons . . . . .	171
6.1.2	Le transport des photons gamma . . . . .	177
6.1.3	Couplage MCNP - GEANT4 . . . . .	184
6.2	Premiers résultats de simulations : Variation des taux de coïncidence et de diaphonie	186
<b>7</b>	<b>Les données expérimentales</b>	<b>190</b>
7.1	Description des différentes expériences pour la mesure du rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	190
7.1.1	Mesures du rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	190
7.1.2	Mesure de l'activation des matériaux . . . . .	190
7.2	Premiers résultats expérimentaux . . . . .	195
7.2.1	Reconstruction des spectres expérimentaux . . . . .	195
7.2.2	Spectres expérimentaux obtenus dans les scintillateurs YAP . . . . .	197
7.2.3	Mesure de section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	199
7.3	Méthode de reconstruction du rapport $\alpha$ à partir des données expérimentales . . . . .	199
7.3.1	Notations utilisées et définition du rapport $\alpha$ . . . . .	199
<b>8</b>	<b>Détermination du rapport <math>\alpha</math> de l'<math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>203</b>
8.1	Efficacités de détection des scintillateurs YAP . . . . .	203
8.1.1	Efficacité de détection des scintillateurs YAP pour les événements de fission .	203
8.1.2	Efficacité de détection des scintillateurs YAP pour les événements $\gamma$ de capture	213
8.1.3	Conclusion sur les efficacités de détection des scintillateurs YAP . . . . .	219
8.2	Efficacité de détection de la chambre à fission $\epsilon_{CaF}$ . . . . .	222
8.3	Le facteur de normalisation N . . . . .	222
8.4	Section efficace de capture de l' $^{235}\text{U}$ et rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	223
8.5	Conclusion . . . . .	226
8.6	Rapport signal sur bruit . . . . .	226
8.6.1	Conclusion . . . . .	229
<b>9</b>	<b>Etude du bruit de fond</b>	<b>233</b>
9.1	Etude expérimentale du bruit de fond . . . . .	233
9.1.1	Description des différentes expériences . . . . .	233

9.1.2	Analyse individuelle des expériences : quantification expérimentales du bruit de fond provenant des captures sur les éléments du dispositif . . . . .	237
9.2	Estimation des différentes contributions du bruit de fond par la simulation . . . . .	242
9.2.1	Bruit de fond provenant de la capture sur le bloc de plomb . . . . .	243
9.2.2	Rapport signal sur bruit extrait des simulations . . . . .	244
9.2.3	Effets fins . . . . .	246
9.2.4	Conclusion . . . . .	247
9.3	Conclusion . . . . .	253
<b>10</b>	<b>Améliorations possibles du dispositif expérimental</b>	<b>255</b>
10.1	Détermination expérimentale de l'efficacité de détection de fission par une source de $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	255
10.2	Positionnement du rail de guidage . . . . .	256
10.3	Utilisation de scintillateurs fins . . . . .	257
10.4	Utilisation de la spectroscopie . . . . .	257
10.5	Utilisation d'un autre massif ralentisseur . . . . .	259
10.5.1	Utilisation du massif de graphite . . . . .	259
10.5.2	Utilisation d'un "coeur de bismuth" au lieu du plomb, autour des détecteurs .	259
10.5.3	Creuser une cavité dans le bloc de plomb, autour des détecteurs . . . . .	260
10.6	Mesure simultanée du signal et du bruit de fond . . . . .	261
10.7	Augmentation de la quantité de matière fissile . . . . .	262
<b>A</b>	<b>Réglage de l'électronique d'acquisition</b>	<b>267</b>
A.1	Réglage des gains des amplificateurs pour les scintillateurs YAP . . . . .	267
A.2	Réglage des seuils des discriminateurs . . . . .	268
A.3	Réglage de la coïncidence . . . . .	268
A.4	Réglage du véto pulse . . . . .	268
<b>B</b>	<b>Etats des lieux des données existantes du rapport <math>\alpha</math> de <math>^{235}\text{U}</math> et de <math>^{233}\text{U}</math></b>	<b>270</b>
B.1	Etat des lieux du rapport $\alpha$ de $^{235}\text{U}$ : données expérimentales existantes . . . . .	270
B.2	Etat des lieux du rapport $\alpha$ de $^{233}\text{U}$ : données expérimentales existantes . . . . .	278
B.2.1	Les mesures de Weston et al. . . . .	284
<b>C</b>	<b>Evaluation ENDF/B-VII des sections efficaces de capture et de fission de <math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>290</b>
<b>D</b>	<b>Validation de MCTPF : Biais induit par le straggling en fonction du choix du tirage des produits de fission</b>	<b>292</b>
D.1	Version initiale de MCTPF . . . . .	292
D.2	Modification de MCTPF . . . . .	295
D.3	Conclusion . . . . .	299

<b>E</b>	<b>Validation de MCTPF : Influence de la géométrie de la chambre à fission et de la pression du gaz</b>	<b>300</b>
<b>F</b>	<b>Validation de MCTPF : démonstration de la formule du straggling latéral intermédiaire</b>	<b>305</b>
<b>G</b>	<b>Validation de MCTPF - autre version du code</b>	<b>308</b>
<b>H</b>	<b>Fabrication et caractérisation des cibles d'<sup>235</sup>U et d'<sup>233</sup>U</b>	<b>316</b>
	H.1 Caractéristiques des cibles . . . . .	316
	H.1.1 Caractéristiques géométriques des cibles . . . . .	316
	H.1.2 Matériau utilisé . . . . .	316
	H.1.3 Support de cible en aluminium . . . . .	317
	H.1.4 Comment sont fabriquées de telles cibles ? . . . . .	318
	H.1.5 Problèmes liés à radioprotection . . . . .	319
	H.2 Caractérisation expérimentale des cibles . . . . .	320
	H.2.1 Protocole expérimental . . . . .	320
	H.2.2 Calcul de l'angle solide de détection . . . . .	324
<b>I</b>	<b>Récapitulatif des données numériques</b>	<b>327</b>
	I.1 Récapitulatifs des données . . . . .	327
	I.2 Récapitulatifs des sources d'incertitudes . . . . .	335
	I.3 Comparaison avec d'autres mesures de fission ? . . . . .	337



# Introduction

Dans les recherches sur les énergies du futur, en particulier dans la recherche de solutions innovantes pour l'électronucléaire du Groupe Physique des Réacteurs du LPSC, il a été montré que la filière basée sur le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  et mettant en jeu des réacteurs à sels fondus est particulièrement intéressante et pérenne.

Cependant, un des paramètres-clés pour calculer le pouvoir de régénération et donc les capacités de déploiement de ces réacteurs est mal connu. Il s'agit du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$ , rapport de la section efficace de capture sur celle de fission. Les valeurs actuelles de ce coefficient proviennent de mesures effectuées dans les années 1960 par plusieurs méthodes difficilement vérifiables et peu précises : officiellement 3 % mais la dispersion des mesures est de 25 %. Afin de pouvoir mieux anticiper le déploiement de cette filière, il est donc indispensable de réévaluer le rapport  $\alpha$  avec le plus de précision possible.

Cette mesure peut être effectuée sur la plate-forme PEREN (Plateforme d'Etude et de Recherche sur l'Energie Nucléaire) composée d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb couplé à un GÉNérateur de NEutrons Pulsé Intense (GENEPI). Un tel dispositif devrait nous permettre d'obtenir le rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  en fonction de l'énergie du neutron incident. Nous avons choisi de mesurer directement la section efficace de fission et celle de capture. Pour cela, nous utilisons, une chambre à fission à  $^{233}\text{U}$  et huit scintillateurs YAP. Cette expérience est très novatrice de par le dispositif expérimental utilisé : spectromètre à temps de ralentissement, utilisation de scintillateurs YAP, détection en coïncidence des scintillateurs et géométrie optimisée de la chambre à fission.

Ce mémoire est composé de 10 chapitres :

Dans un premier chapitre, nous présenterons le contexte général de ce travail de thèse à savoir l'intérêt porté sur la filière Thorium et les raisons de son utilisation dans les systèmes innovants.

Le chapitre suivant définit ce qu'est le rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  et pourquoi il est capital de le connaître avec précision pour simuler les réacteurs de quatrième génération basés sur le cycle Thorium. Nous justifierons le besoin d'une nouvelle mesure suite à l'état des lieux des données actuelles existantes.

Dans le troisième chapitre, nous allons décrire l'environnement expérimental de notre mesure. Cette dernière s'est effectuée sur la plateforme PEREN, située au LPSC. Nous détaillerons quels sont les avantages de cette plateforme, ainsi que la physique associée à un tel système.



Le quatrième chapitre détaille le dispositif expérimental mis au point pour la mesure. Nous décrivons les détecteurs, dont une chambre à fission développée spécialement pour répondre aux besoins de la mesure, ainsi que l'électronique et l'acquisition utilisés. Dans la sous-partie décrivant les détecteurs, nous nous focaliserons particulièrement sur les cibles elles-mêmes : matériau, caractéristiques et détermination expérimentale de l'épaisseur de chacune d'elle.

Le cinquième chapitre s'attardera sur la conception de cette chambre à fission particulière, ainsi que sur les cibles d'uranium utilisées. Tout d'abord, nous y exposerons le code de transport de produits de fission que j'ai développé afin de concevoir la chambre à fission et de définir les caractéristiques des cibles d'uranium. Nous détaillerons le code ainsi que tout le travail de validation de celui-ci avant d'en donner les principaux résultats. Puis, nous donnerons les caractéristiques réelles de ces chambres à fission que nous comparerons alors aux résultats de simulations obtenus dans la première sous-partie.

Les derniers chapitres sont consacrés à l'analyse des résultats expérimentaux obtenus. Tout d'abord, dans le chapitre 6, nous expliquerons quels codes de simulation nous ont été utiles et comment nous nous en sommes servis. Puis, nous nous intéresserons, dans le chapitre 7, aux mesures effectuées ainsi qu'au traitement des données expérimentales. Enfin, nous exposerons l'analyse des mesures effectuées et les résultats dans le chapitre 8. Le chapitre suivant sera dédié à la compréhension du dispositif expérimental, et tout particulièrement à l'étude du bruit de fond. Le chapitre 10 conclura cette étude par une ouverture portant sur les améliorations possibles du dispositif expérimental.

Neuf annexes sont jointes à ce mémoire. Non nécessaires à la compréhension du contenu de la thèse, elles complètent le manuscrit pour toute personne voulant approfondir le sujet.

## Résumé

Le recours à l'énergie électronucléaire pour diminuer les émissions anthropiques de CO<sub>2</sub> tout en répondant à une forte demande énergétique impose aux réacteurs de quatrième génération des contraintes inévitables : sûreté améliorée, minimisation des déchets et régénération du combustible pour une exploitation pérenne des ressources. Le cycle Thorium, utilisé dans le concept de réacteurs à sel fondu, semble prometteur. De nombreuses études numériques basées sur des codes Monte-Carlo sont menées pour analyser le comportement de ces réacteurs. Cependant, un des paramètres-clés pour calculer le pouvoir de régénération, et donc les capacités de déploiement de ces réacteurs, est mal connu. Il s'agit du rapport  $\alpha$  de l'<sup>233</sup>U, rapport de la section efficace de capture radiative sur celle de fission.

Le but de cette thèse consiste en une étude préparatoire de la mesure du rapport  $\alpha$  de l'<sup>233</sup>U entre 1 eV et 10 keV. Des mesures préliminaires ont été effectuées au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie à Grenoble, sur la plateforme PEREN. Cet environnement expérimental est composé d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb couplé à un GÉNérateur de NEutrons Pulsé Intense (GENEPI). Pour mesurer les taux de capture et de fission de l'<sup>233</sup>U, nous avons choisi d'utiliser pour la détection huit scintillateurs YAP, couplés à des photomultiplicateurs, entourant une chambre à fission développée au laboratoire. Un programme d'analyse dédié nous a permis d'imposer le taux de détection en coïncidence des scintillateurs.

Afin de comprendre parfaitement le dispositif expérimental et de le quantifier, des premiers tests avec des cibles d'<sup>235</sup>U ont été effectués. Une première série de mesures a présenté un rapport signal sur bruit très faible (1 %). Le bruit de fond provenant des scintillateurs eux-mêmes s'avérant très pénalisant, une deuxième série d'acquisitions avec des scintillateurs 5 fois plus fins a alors été effectuée. Cependant, il s'avère encore nécessaire d'améliorer le rapport signal sur bruit pour mesurer le taux de capture de l'<sup>235</sup>U. Afin de s'assurer de la bonne compréhension des phénomènes régissant notre mesure, nous avons effectué de nombreuses comparaisons entre les données expérimentales et les simulations. Pour cela, plusieurs outils de simulations ont été nécessaires comme MCNP et GEANT4. Nous nous sommes particulièrement attachés à quantifier les différentes contributions du bruit de fond.

Pour conclure sur un tel dispositif expérimental, il est indispensable d'améliorer encore le rapport signal sur bruit d'au moins un ordre de grandeur pour obtenir la mesure de la capture d'un élément fissile, et donc le rapport  $\alpha$ , avec la précision souhaitée.

Mots clés : Cycle Thorium, rapport  $\alpha$ , section efficace, capture, fission, uranium 233, uranium 235, spectromètre à temps de ralentissement, plomb, neutrons épithermiques, MCNP, GEANT4.

## Abstract

Producing nuclear energy in order to reduce anthropic CO<sub>2</sub> emission and to meet high energy demand, implies three conditions to the nuclear plants of the IV<sup>th</sup> generation : safety improvements, radioactive waste minimization, and fuel breeding for a sustainable use of the resources. the Thorium fuel cycle used in Molten Salt Reactors seems promising. Many numerical studies based on probabilistic codes are carried out in order to analyse the behaviour of such reactors. Nevertheless, one of the most important parameters is badly known : the alpha ratio of <sup>233</sup>U, ratio of the neutron capture cross section to fission one for <sup>233</sup>U. This key-parameter is necessary to calculate the breeding ratio and thus, the deployment capacities of those reactors.

This Ph-D thesis was intended to prepare a precise measurement of the alpha ratio of <sup>233</sup>U between 1 eV and 10 keV. Preliminary measurements have been performed on the experimental platform PEREN. This experimental environment is composed of a lead slowing-down time spectrometer associated with an intense pulsed neutron generator. Capture and fission rates are measured thanks to eight scintillators with their photomultipliers, surrounding a fission chamber. A software analysis sets the coincidence rate between the scintillators.

In order to understand perfectly the experimental setup, preliminary tests using a <sup>235</sup>U fission chamber have been done. This experiment resulted in a very low signal to background ratio (1 %). The background coming from the scintillators themselves seriously handicapped the measurement. Another serie of experiment has been done with scintillators 5 times thinner. Nevertheless, the signal to background ratio should still be increased to measure the capture of <sup>235</sup>U. To make sure that the experimental setup has totally been understood, we made many comparisons between experimental results and simulations. Two simulation codes were mainly used : MCNP and GEANT4. We paid special attention to quantify the different components of the background.

To conclude with such an experimental setup, the signal to background ratio must be increased by about a factor 10 at least, to allow the measurement of the capture of a fissile element, and consequently of the alpha ratio, with a satisfying precision.

Keywords : Thorium cycle, alpha ratio, cross section, capture, fission, uranium 233, uranium 235, Time-of-Flight spectrometer, lead, epithermal neutrons, MCNP, GEANT4.

# Chapitre 1

## Contexte général

L'effet de serre est un processus naturel de réchauffement de l'atmosphère qui intervient dans le bilan radiatif de la terre. Il est dû aux gaz à effet de serre contenus dans l'atmosphère comme la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone ou encore le méthane. Grâce à l'effet de serre, notre planète Terre bénéficie d'une température moyenne propice au développement de la vie. Sans cet effet naturel, la température moyenne serait de l'ordre de  $- 15^{\circ}\text{C}$ .

Cependant, depuis plusieurs dizaines d'années, ce phénomène s'amplifie et les conséquences sur le climat deviennent visibles. Il semble désormais acquis que les émissions anthropiques, tout particulièrement de  $\text{CO}_2$ , dues à une utilisation massive des énergies fossiles, engendrent une légère modification du bilan radiatif terrestre qui entraîne une augmentation significative de l'effet de serre. Un "réchauffement global" c'est-à-dire une augmentation de la température moyenne à la surface de la planète, induit par ce renforcement de l'effet de serre, a déjà été observé par les spécialistes du climat. Il apparaît alors indispensable de réduire nos émissions de  $\text{CO}_2$ . Pour cela, 156 pays, à l'exception notable des États-Unis et de l'Australie, se sont déjà engagés à limiter leurs émissions par la ratification du protocole de Kyoto, ce protocole donnant l'objectif d'une réduction de 5 % d'ici 2012 des émissions de gaz à effet de serre par rapport à leur niveau de 1990. Afin de répondre à de tels engagements, il convient, entre autres, d'utiliser des sources d'énergie alternatives, autres que les combustibles fossiles fortement émetteurs de  $\text{CO}_2$ .

Cependant, parallèlement à cette prise de conscience, la demande énergétique mondiale ne cesse d'augmenter. La maîtrise de celle-ci compte-tenu des restrictions des émissions de  $\text{CO}_2$  devient un impératif majeur à l'heure actuelle. Afin d'éviter toute pénurie d'énergie, il semble indispensable de mettre en place de nouvelles sources de production massive d'énergie. De nombreuses options s'offrent à nous mais toutes ne sont pas acceptables à grande échelle et à long terme de par cette prise de conscience des conséquences dramatiques que peuvent engendrer l'augmentation de l'effet de serre. Dans ce contexte, l'énergie nucléaire, aux côtés des nouvelles énergies renouvelables et des économies d'énergie, apparaît comme une solution appelée à jouer un rôle majeur dans la production énergétique mondiale future.

Il existe de très nombreux scénarii quant à l'évolution des contributions mondiales de chaque source d'énergie dans le siècle à venir. Les valeurs citées dans ce rapport sont celles des scénarii élaborés dans le Groupe Physique des Réacteurs du Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie [1]. Nous pouvons ainsi faire une rapide estimation de la part estimée du nucléaire dans le futur. Pour cela, il faut tout d'abord anticiper la demande énergétique mondiale future vers 2050 par exemple. Elle peut être estimée en distinguant plusieurs paramètres :

$$E = \frac{E}{PIB} * \frac{PIB}{N} * N$$

avec :

- N : population mondiale
- $\frac{PIB}{N}$  : PIB par habitant
- $\frac{E}{PIB}$  : intensité énergétique

On peut supposer qu'en un demi-siècle, la population passera de 6 milliards en l'an 2000 à 9 milliards d'habitants en 2050 (facteur 3/2). La croissance (augmentation du PIB/habitant) est estimée selon divers scénarii à 1,5 % par an pour un scénario pessimiste, 3 % par an pour un scénario plus optimiste. Le terme  $\frac{PIB}{N}$  est donc multiplié par un facteur 2,1 à 4,4. L'intensité énergétique prend en compte les économies d'énergie et les changements de mode de consommation selon la richesse des pays. Supposons qu'elles induisent une réduction d'un facteur 0,5 dans la formule précédente. Au total, on voit la demande énergétique mondiale augmenter d'un facteur 1,6 à 3,3. Pour la suite, nous prendrons une valeur intermédiaire : une augmentation d'un facteur 2 d'ici à 2050. C'est la valeur communément admise par un certain nombre d'autres scénarii différents ([2], [3]).

Afin de pouvoir estimer la part de nucléaire dans la future production énergétique mondiale, deux hypothèses supplémentaires ont dû être faites, en plus de l'évaluation du doublement de la demande énergétique mondiale :

- Stabilisation de l'utilisation des énergies fossiles, en supposant une part de capture et de séquestration de CO<sub>2</sub>.
- Equi-répartition entre les nouvelles énergies renouvelables et le nucléaire, les nouvelles énergies renouvelables jouant un rôle complémentaire au nucléaire : tandis que le nucléaire permet l'approvisionnement massif des villes et des grandes zones industrielles, les énergies renouvelables peuvent alimenter des zones plus vastes ou isolées.

La répartition des apports des différentes sources d'énergie obtenues est résumée dans le tableau 1.1. De ces chiffres, il est aisé de voir que le nucléaire voit sa part croître d'un facteur 8 d'ici à 2050. Notez qu'avec un tel scénario, il sera de toute façon très difficile de contenir l'augmentation des gaz à effet de serre. De plus, il suppose une augmentation des nouvelles énergies renouvelables d'un facteur supérieur à 250 !

Nous pouvons donc facilement conclure grâce à ce rapide calcul, que si l'on souhaite un bon compromis entre forte demande énergétique et faible émission de gaz à effet de serre, la part du nucléaire dans la production mondiale d'énergie devra fortement augmenter par rapport à aujourd'hui. De plus, des études bien plus approfondies [2] [3] et basées sur des modèles complètement différents aboutissent à des projections de consommation énergétique équivalentes soit une augmentation d'un facteur 8 d'ici à 2050.

Si nous envisageons le futur du nucléaire comme stable voire légèrement croissant, alors, les technologies utilisées de nos jours sont largement suffisantes. Par contre, dans le scénario ci-dessus, la demande en énergie nucléaire devient très fortement croissante. Les technologies actuelles deviennent insatisfaisantes : de nouvelles technologies, telles que la régénération, peuvent s'avérer indispensables.

Energie primaire en Gtep	2000	2050
Fossiles (pétrole, gaz, charbon)	7.5	7.5
Hydraulique	0.7	1.0
Biomasse traditionnelle	1.2	1.3
Nouveaux Renouvelables (éolien, solaire, biocarburants)	0.02	5.1
Nucléaire (fission)	0.6	5.1
Total	10.0	20.0

TAB. 1.1 – Contributions des différentes sources commerciales d'énergie primaire en 2000 et en 2050 exprimées en GTep, une tonne équivalent pétrole correspondant à 11.7 MWh.

## 1.1 Quel nucléaire pour demain ?

### 1.1.1 Vers la quatrième génération de réacteurs nucléaires

Conscients de l'importance de disposer demain de nouvelles technologies nucléaires et à l'initiative du département américain de l'Energie, dix pays se sont regroupés en 2001 dans le Forum International Génération IV (GIF [5]). Ce forum a pour objectif de définir et de développer des systèmes nucléaires candidats pour la quatrième génération. Cette nouvelle génération de réacteurs, pensée pour une mise en service d'ici quelques décennies, devra permettre un développement énergétique durable à l'échelle de la planète. Pour cela, elle doit répondre à plusieurs enjeux :

- Sécurité optimale afin d'amoinrir encore le risque d'accident.
- Non-prolifération des matières fissiles.
- Minimisation de la quantité et de la nocivité des déchets produits.

Rappelons qu'il existe deux principaux types de déchets créés lors du fonctionnement d'un réacteur nucléaire : les produits de fission, résidus des noyaux qui ont fissionné (les "cendres" de la réaction de fission) et les transuraniens. La production des produits de fission, résultat

inévitables de la fission nucléaire, ne dépendent que de la puissance produite. Elle ne peut être réduite que par l'amélioration des rendements thermodynamiques des centrales. Par contre, les transuraniens sont créés lors de captures neutroniques sur le combustible. Chaque capture supplémentaire de neutron augmente la masse du noyau. On peut ainsi former des éléments tels que l'Américium ( $Z=95$ ), le Curium ( $Z=96$ ) voire le Californium ( $Z=98$ ), éléments beaucoup plus radiotoxiques que les produits de fission. Un des défis majeurs des réacteurs de génération IV repose donc sur la gestion de ces transuraniens.

- Economie des ressources ou du moins gestion optimisée des ressources en combustible. Pour cela, ces réacteurs doivent être régénérateurs voire surgénérateurs. Cela signifie que, lors du fonctionnement, ils produisent autant voire plus de matière fissile qu'ils n'en consomment, par l'introduction d'un matériau fertile<sup>1</sup> dans le réacteur. En cas de surplus, cette matière peut être utilisée ensuite pour démarrer de nouveaux réacteurs. On aura alors une utilisation optimale des ressources naturelles par régénération, point indispensable si l'on envisage une utilisation intense mais raisonnée et durable des ressources pour un déploiement notable de cette production d'énergie au niveau mondial.

La sélection des candidats les plus prometteurs pour les systèmes du futur a été finalisée lors d'une réunion du Forum International Generation IV en mai 2002, à Paris. Six systèmes nucléaires ont été sélectionnés pour des études approfondies. En effet, la diversité des besoins à couvrir et des contextes internationaux ainsi que les incertitudes technologiques expliquent que l'on n'aboutisse pas à un unique système Generation IV, mais à un éventail de solutions sur lesquelles se concentrent désormais les efforts de recherche et développement des pays membres du Forum International Génération IV. Ces six systèmes sélectionnés sont :

- VHTR (Very High Temperature Reactor system) - Réacteur à très haute température ( $1000^{\circ}\text{C}/1200^{\circ}\text{C}$ ), refroidi à l'hélium, dédié à la production d'hydrogène ou à la cogénération hydrogène/électricité [6]
- SCWR (Supercritical Water-Cooled Reactor system) - Réacteur à eau supercritique [6]
- GFR (Gas-cooled Fast Reactor system) - Réacteur rapide à caloporteur hélium [6]
- SFR (Sodium-cooled Fast Reactor system) - Réacteur rapide à caloporteur sodium [6]
- LFR (Lead-cooled Fast Reactor system) - Réacteur rapide à caloporteur alliage de plomb-bismuth
- MSR (Molten Salt Reactor system) - Réacteur à sels fondus

Les études portant sur les réacteurs à sels fondus et le cycle Thorium s'effectuent dans un cadre aussi bien français, qu'europpéen et mondial. Les études dans le cadre français se font au sein du Programme sur l'Aval du Cycle Electro-Nucléaire PACEN qui inclue le groupement de recherche GEDEPEON - GEstion des DEchets et Production d'Enegie par des Options Nouvelles - et du Programme Commun de Recherche sur les Réacteurs à Sels Fondus du CNRS. Dans le cadre européen, nous citerons l'action européenne ALISIA - Assessment of LIquid Salts for Innovative : Specific Support Action

---

<sup>1</sup>On appelle noyau fertile un noyau produisant un noyau fissile après capture d'un neutron.

de l'Europe -, lancée fin 2006 en préparation d'un réseau à présenter au premier appel du 7ème Programme-Cadre pour la Recherche et le Développement Technologique. Enfin, les recherches au niveau mondial sont regroupées dans le Forum International Génération IV.

### 1.1.2 Quels cycles de combustible utiliser ?

L'utilisation actuelle du nucléaire de fission repose presque entièrement sur le seul noyau fissile naturel, l' $^{235}\text{U}$  qui représente seulement 0.72 % de l'uranium naturel (cf section 1.1.3). Les ressources exploitables d'uranium naturel sont classées en catégories de coût. Actuellement, le coût moyen d'exploitation de l'uranium est de 60 \$/kgU ; en prenant un coût de 400 \$/kgU, les ressources en uranium naturel peuvent être extrapolées au maximum à 23 MtU [7]. Cela représente 250 ans de consommation au niveau actuel du parc mondial, et seulement 70 ans [1] si la part de la production d'énergie nucléaire croît d'un facteur 8 et si les ressources sont utilisées au mieux avec les réacteurs de 2ème et 3ème génération. Notez que la troisième génération correspond à de nouveaux réacteurs, basés sur la même technologie (même combustible, même caloporteur ...) que les réacteurs de 2ème génération mais ayant, entre autres, des dispositifs de sûreté supplémentaires. Ils peuvent prendre le relais des réacteurs actuels d'ici 2015 en attendant les systèmes de quatrième génération.

Les deux seuls autres noyaux fissiles pouvant être utilisés pour une production nucléaire massive sont le  $^{239}\text{Pu}$  et l' $^{233}\text{U}$  qui n'existent pas à l'état naturel et doivent être produits à partir des noyaux fertiles correspondants, l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$  respectivement. Il existe ainsi ce que l'on nomme deux "cycles du combustible" ou "filiales", le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ , dit cycle Uranium (cf section 1.1.4) et le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , dit cycle Thorium (cf section 1.1.5). Les ressources naturelles en  $^{238}\text{U}$  sont importantes (99,3 % de l'uranium naturel), celles en thorium davantage encore puisque estimées deux à trois fois plus importantes que celles de l'uranium. L'utilisation de réacteurs du futur au moins régénérateurs, c'est-à-dire produisant au moins autant de combustible qu'ils en consomment, permettrait alors de ne plus se poser la question des ressources avant plusieurs millénaires.

### 1.1.3 Cas des réacteurs actuels : utilisation de l' $^{235}\text{U}$ , seul noyau fissile naturel

L' $^{235}\text{U}$  est le seul élément fissile existant à l'état naturel sur Terre. C'est pourquoi le parc nucléaire mondial actuel utilise cet élément comme combustible. Le parc est composé à 87 % de réacteurs à eau ordinaire (ou "légère") que sont les PWR (Pressurised Water Reactor ou Réacteurs à Eau Pressurisée - REP), les BWR (Boiling Water Reactor ou Réacteurs à Eau Bouillante) et les WWER (Water Cooled Water Moderated Power Reactor, équivalent au PWR mais de facture russe) [8]. Les autres réacteurs utilisent du gaz comme les GCR (Gas-Cooled graphite moderated Reactor) et les AGR (Advanced Gas Reactor) ou de l'eau lourde comme les CANDU (CANadian Deuterium Uranium). L'uranium, de composition isotopique de 99.3 % d' $^{238}\text{U}$  et de 0.7 % d' $^{235}\text{U}$  lors de l'extraction au niveau de la mine, est enrichi en  $^{235}\text{U}$  à un taux de 3.5 % pour pouvoir être utilisé dans les PWR, les BWR, les WWER, les GCR et les AGR. Les réacteurs CANDU utilisent principalement l'uranium naturel.



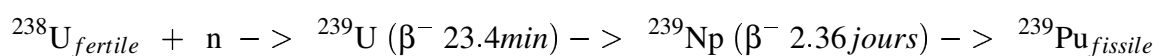
Le cycle utilisé de nos jours est ouvert : le combustible irradié n'est pas recyclé mais stocké en l'attente d'un recyclage éventuel. Certains pays, dont la France, ont choisi l'option du retraitement : l'uranium et le plutonium sont séparés dans le combustible irradié. L'uranium appauvri et celui de retraitement sont stockés tandis que le plutonium, dont certains isotopes sont fissiles ( $^{239}\text{Pu}$  principalement mais aussi  $^{241}\text{Pu}$ ), est valorisé dans des combustibles MOX.

Les scénarii ne comportant que des réacteurs à eau légère nous mènent à un épuisement rapide des ressources en uranium fissile naturel, l' $^{235}\text{U}$  (0.7 % de l'uranium naturel total). Le scénario dans lequel le multirecyclage du plutonium est pris en compte est le plus optimisé. Cependant, il ne suffit pas à une production d'énergie pérenne : la demande énergétique mondiale ne pourra être satisfaite au delà de 2085 avec un scénario dans lequel est supposée une augmentation d'un facteur 8 d'ici à 2050 puis une augmentation de 1.1 % ensuite.

De plus, la quantité de déchets produits alors devient trop importante à long terme pour être seulement stockée. Il faut donc, soit pouvoir les incinérer dans de nouveaux types de réacteurs, soit étudier tout simplement des réacteurs qui produisent, au départ, moins de déchets à haute toxicité. Il va donc falloir se tourner vers les deux filières possibles basées sur les cycles  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  et  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

### 1.1.4 Utilisation de la filière $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ dans des Réacteurs à Neutrons Rapides surgénérateurs

Du  $^{239}\text{Pu}$  étant créé à l'intérieur des réacteurs actuels (PWR, BWR, AGR, CANDU ...) de par la présence d' $^{238}\text{U}$  dans le combustible ( $\sim 96.5$  % initialement), la transition vers le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  semble donc la plus naturelle. On peut alors imaginer un scénario dans lequel on complète la première filière utilisant l' $^{235}\text{U}$  comme élément fissile, par des réacteurs basés sur le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ , dit Cycle Uranium, suivant :



Ces réacteurs peuvent être surgénérateurs. Cela signifie que lors du fonctionnement, ils produisent de la matière fissile (ici,  $^{239}\text{Pu}$ ) à partir de matière fertile ( $^{238}\text{U}$ ). Les isotopes fissiles du plutonium et l'uranium appauvri peuvent être considérés, non plus comme des déchets de la filière PWR (ou REP en français), mais comme le combustible, et respectivement l'élément fertile, d'une nouvelle filière surgénératrice. Cette matière fissile peut servir notamment pour démarrer de nouveaux réacteurs.

La surgénération permet une utilisation optimale des ressources naturelles. En effet, nous pouvons tout de suite constater que cette filière permet d'augmenter considérablement les ressources en combustible. Les REP n'utilisent qu'une partie des 0.7 % de l'uranium extrait des mines<sup>2</sup>. Utiliser l' $^{238}\text{U}$

<sup>2</sup>On extrait effectivement 0.7 % d' $^{235}\text{U}$  dans les mines d'uranium. Par contre, nous n'utilisons de cet  $^{235}\text{U}$  qu'un rapport  $\frac{0.4}{0.7}$ , lors de l'enrichissement à 3 % . De plus, puisque l'uranium est enrichi à 3 % et ressort des réacteurs lorsque

comme élément fertile revient à considérer les 99.3 % restant comme ressource potentielle d'énergie. Un second facteur motivant le déploiement de la filière  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  s'explique par la bonne connaissance de la technologie à mettre en place. Dans le parc français, des REP utilisent déjà le  $^{239}\text{Pu}$  créé dans leur combustible pour produire au mieux 10 % de l'électricité grâce à l'utilisation d'un combustible mixte composé à la fois d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium (MOX) [9]. De plus, le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  a déjà fonctionné dans un réacteur de puissance dédié : Superphénix [10]. Cette filière continue ainsi d'être à la base de nombreuses recherches [11, 12].

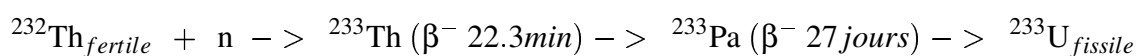
Cependant, ces réacteurs peuvent être surgénérateurs en spectre rapide<sup>3</sup> uniquement (cf section 1.1.5.2). La nécessité de garder un spectre rapide explique pourquoi le caloporteur doit être un élément lourd afin de ne pas ralentir les neutrons. Il doit aussi remplir les conditions inhérentes à tout caloporteur : ne pas capturer les neutrons et avoir de bonnes propriétés de conduction de la chaleur. Le choix est restreint au sodium, ou au plomb, ou gaz (He) ou encore aux sels fondus. C'est un des points délicats des réacteurs rapides basés sur le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  puisque ce sont des éléments qui restent encore assez difficiles à mettre en oeuvre du point de vue technologique de par la dangerosité du sodium, la non-transparence du sodium et du plomb rendant difficile les inspections, la complexité à faire circuler du plomb liquide à gros débit, les problèmes de corrosion induit par tous les matériaux cités ci-dessus, etc.

De plus, l'utilisation du cycle Uranium présente une gestion extrêmement complexe, tant au niveau du combustible que des déchets produits. En effet, ce type de réacteur a besoin d'environ 2\*6 tonnes de plutonium pour fonctionner (6 tonnes en charge dans le coeur du réacteur et 6 tonnes en phase de retraitement, puisque le combustible est solide). Si l'on multiplie par le nombre de réacteurs souhaités, nous nous rendons rapidement compte de la quantité de plutonium extrêmement importante à gérer. De plus, ce scénario conduit à la production de quantités importantes d'actinides mineurs, hautement radiotoxiques, présents dans les inventaires des réacteurs.

Une alternative au scénario précédent est l'ouverture de la deuxième filière possible, elle-aussi surgénératrice, basée sur le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

### 1.1.5 Utilisation de la filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ dans des Réacteurs à Sels Fondus surgénérateurs

La filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , dite filière Thorium, est basée sur le cycle suivant :



l'enrichissement est de 1 %, seul les 2/3 de l' $^{235}\text{U}$  mis en réacteur est effectivement consommé. C'est donc seulement 0.3 % de l'uranium total que nous utilisons dans la filière REP. Enfin, notez qu'on utilise un peu d' $^{238}\text{U}$  en brûlant du  $^{239}\text{Pu}$  créé lors du fonctionnement du réacteur.

<sup>3</sup>Un réacteur rapide est un réacteur dont le spectre des neutrons est rapide c'est-à-dire dont les neutrons émis par fission ne sont pas ralentis sur un matériau modérateur pour atteindre une énergie thermique.

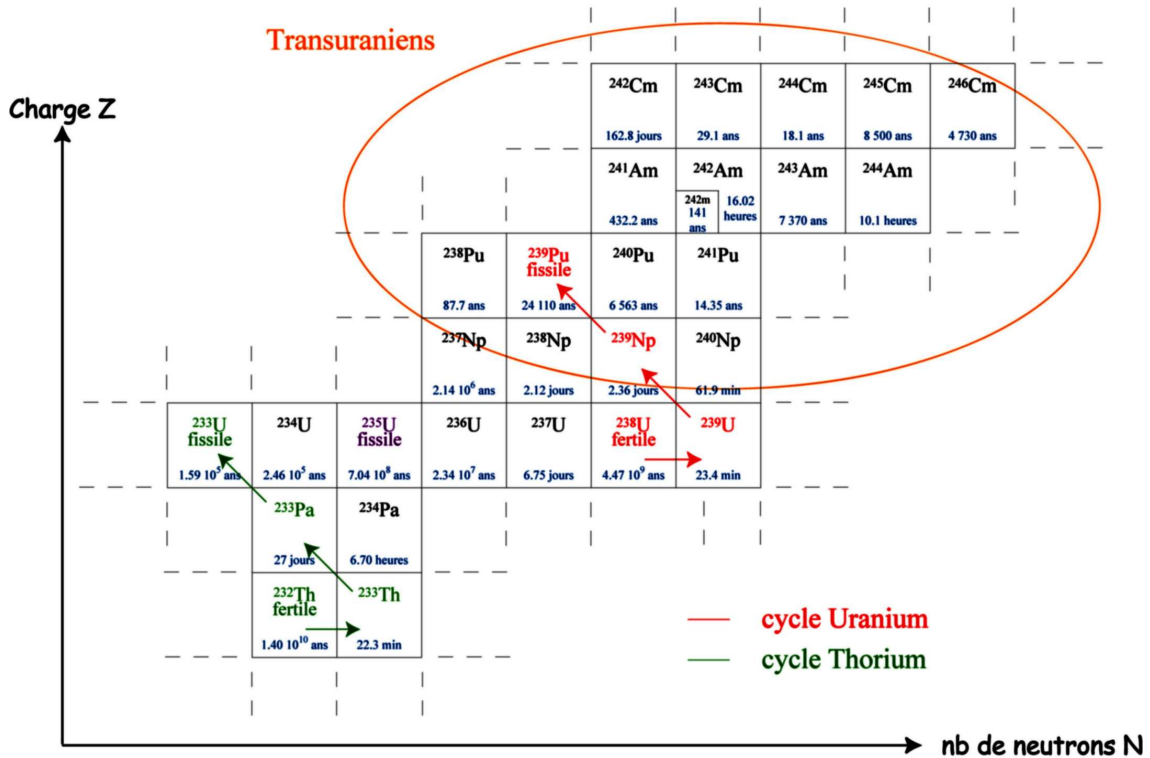


FIG. 1.1 – Extrait de la charte des éléments centrée sur les deux cycles du combustible permettant la régénération, ainsi que sur les premiers transuraniens.

Cette filière peut être mise en œuvre de manière avantageuse dans des réacteurs à sels fondus, comme nous le verrons dans la section 1.2.

Bien que la filière  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  présente des avantages certains et que son déploiement semble le plus naturel compte tenu des réacteurs actuellement en place, la filière Thorium n'est pas à négliger, bien au contraire. Le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  semble bien plus avantageux que le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  en ce qui concerne la production des déchets et les capacités de déploiement. De plus, avoir seulement deux solutions pour l'avenir impose de les étudier toutes les deux. C'est dans le cadre des études de cette filière que s'inscrit mon travail de thèse.

### 1.1.5.1 Minimisation des déchets

Si nous regardons le diagramme NZ (cf figure 1.1), nous nous rendons compte assez rapidement que le choix du cycle du combustible a une forte influence sur la production des transuraniens. En effet, le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  nécessite 6 captures neutroniques de plus sur le noyau fertile, noyau majoritaire dans le combustible, pour créer de tels éléments par rapport au cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ . La production des transuraniens est ainsi très fortement réduite. Le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  répond mieux au critère de minimisation des déchets à vie longue imposée par le Forum International Generation-IV.

### 1.1.5.2 Gestion pérenne du combustible : nombre de neutrons disponibles pour la régénération

Comme le cycle Uranium, le cycle Thorium satisfait l'exigence de gestion optimisée des ressources en combustible lors d'un développement notable du nucléaire au niveau mondial pour deux raisons :

- Comme nous l'avons déjà évoqué, le thorium est un élément assez répandu sur la Terre : les ressources estimées sont de deux à quatre fois supérieures à celles en uranium naturel déjà très importantes. De plus, le thorium se présente sous diverses formes minérales, la plus courante étant l'oxyde de thorium souvent mélangé avec de l'oxyde d'uranium dans des phosphates de terres rares appelés monazites. Contrairement à la plupart des minerais d'uranium couramment exploités, le thorium apparaît dans ces monazites à des teneurs beaucoup plus élevées que l'uranium (allant jusqu'à 140 fois plus en pourcentage massique), ce qui s'avère très avantageux, économiquement parlant, pour l'exploitation. Un dernier avantage concernant l'utilisation du thorium est sa répartition : il est a priori beaucoup mieux réparti sur Terre, ce qui pourrait éviter des tensions géopolitiques.

- Les réacteurs basés sur le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  présenterait une bonne capacité de surgénération quelque soit le spectre neutronique.

Dans un réacteur nucléaire régénérateur, les neutrons sont utilisés à la fois pour maintenir la réaction en chaîne et pour générer de la matière fissile par capture sur l'élément fertile. Toutes les captures sur le combustible fissile, les produits de fission, les transuraniens, les structures, ... sont autant de pertes pour la régénération. Le facteur déterminant la capacité de régénération d'un type de réacteur donné est le nombre de neutrons disponibles par fission après avoir entretenu la réaction en chaîne et régénéré le noyau fissile. Comme nous le montre la figure 1.2, le nombre de neutrons disponibles pour la régénération du combustible est positif quelle que soit l'énergie des neutrons pour le cycle Thorium, une telle condition n'étant remplie de manière exploitable que pour des énergies de neutrons supérieures à la dizaine de keV pour le cycle Uranium. Par conséquent, la régénération n'est possible pour le cycle  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$  que dans des réacteurs à spectre rapide tandis qu'elle l'est à la fois en spectres thermique, épithermique et rapide pour le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

Cependant, la capture des neutrons par les produits de fission devient très contraignante dans le cas d'un spectre thermique. Il est alors utile, pour améliorer la surgénération, de pouvoir retirer régulièrement ces éléments. De cette constatation, est venue l'idée des réacteurs à sels fondus, réacteur dont le combustible est liquide pour permettre un retraitement en batch lors du fonctionnement. Il est prévu de coupler au réacteur une unité de retraitement chimique du sel combustible qui aura la charge de "purifier" le sel en récupérant les produits de fission, voire certains transuraniens avant de le réinjecter dans le coeur du réacteur. En spectre épithermique ou rapide, ce retraitement reste un avantage mais n'est plus déterminant pour la régénération.

La filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  semble donc tout particulièrement intéressante et pérenne. En effet, l'utilisation de cette filière permet d'obtenir un déploiement durable et efficace de l'énergie nucléaire en optimisant l'utilisation de matières fissiles et la production de déchets à gérer. En outre, des études [13] ont montré qu'elle permet aussi la fermeture du cycle actuel.

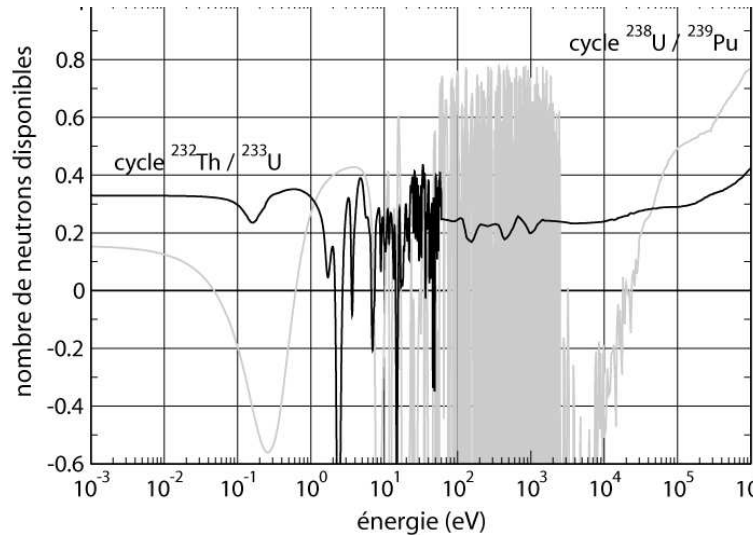


FIG. 1.2 – Nombre de neutrons disponibles pour la régénération du combustible, en fonction de l'énergie des neutrons pour les cycles  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ .

Il apparaît d'ores et déjà que le nombre de neutrons disponibles pour la régénération du combustible est une donnée cruciale pour les simulations numériques lors de l'étude de cette filière. Or, comme nous le verrons par la suite, sa connaissance dépend du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , rapport de la section efficace de capture sur celle de fission de l' $^{233}\text{U}$  (cf chapitre 2). Mon travail de thèse a pour but de mesurer cette donnée physique nucléaire dont une meilleure connaissance permettra la réévaluation du nombre de neutrons disponibles pour la régénération du combustible et donc les scénarii de déploiement de la filière basé sur le cycle Thorium.

Notez que la figure 1.2 est basée sur des évaluations. Nous verrons au chapitre 2 plus précisément en quoi consistent ces évaluations. Disons rapidement que ce sont des fichiers de données nucléaires, utilisés pour les simulations numériques et calculées à partir de modèles théoriques et de données expérimentales. Il est impératif de contraindre les évaluations, par des données expérimentales supplémentaires, afin d'améliorer la précision des évaluations, et par conséquent, des calculs numériques. Le nombre de neutrons disponibles pour la régénération (cf figure 1.2) sera alors réestimé avec une bien meilleure précision.

## 1.2 Description d'un Réacteur à Sels Fondus (RSF)

Le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  dans un RSF a été étudié au LPSC lors de deux thèses [14, 15], et lors de nombreux travaux [16, 17, 18, 19]. La description d'un réacteur à sels fondus donnée dans ce paragraphe

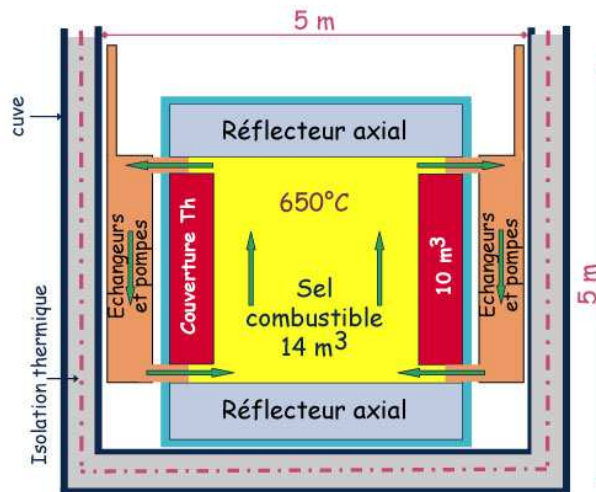


FIG. 1.3 – Schéma du cœur d'un TMSR [13].

est très simplifiée. Des études détaillées ont été effectuées grâce à des simulations numériques. Ainsi, un large éventail de configurations possibles de réacteurs a été simulé afin de mieux comprendre tous les phénomènes physiques régissant le comportement d'un RSF tout au long de son fonctionnement. Suite à cette étude paramétrique, plusieurs configurations satisfaisant aux contraintes de sûreté, régénération, tenue des matériaux, etc, ont pu être proposées. Un concept particulièrement performant a émergé. Une description globale de ce concept, nommé Thorium Molten Salt Reactor (TMSR) pour "Réacteurs à Sel Fondu en cycle Thorium", est donnée ci-dessous.

Un réacteur à sels fondus, dont on peut voir un schéma figure 1.3, est composé d'un cœur dans lequel circule un sel fondu à haute température ( $\sim 700^{\circ}\text{C}$ ) et à pression atmosphérique. Ce sel sert à la fois de combustible et de caloporteur. Il a pour formule chimique  ${}^7\text{LiF}+(\text{Noyaux Lourds})\text{F}_4$ . On entend ici par noyaux lourds, les actinides en général que ce soient l'élément fissile ( ${}^{233}\text{U}$  ou  $\text{Pu}$ ), l'élément fertile ( ${}^{232}\text{Th}$ ) ou les transuraniens. Le choix du  ${}^7\text{Li}$  dans la composition du sel provient du fait que le  ${}^6\text{Li}$ , présent à un taux de 7.6 % dans le lithium naturel, est un poison neutronique très puissant. La section efficace de réaction  ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$  est en effet de l'ordre de 3 000 barns à l'énergie thermique et de 60 barns en spectre rapide.

Le concept de TMSR est en cours d'étude. Des réflecteurs (un radial et deux axiaux) sont prévus comme dans tous les réacteurs afin de protéger les structures extérieures du flux de neutrons. En effet, ces réflecteurs empêchent la fuite de 80 % des neutrons. Afin d'utiliser au mieux ces neutrons, il est prévu que le réflecteur radial soit une couverture fertile en thorium. Cette couverture conserve sa fonction de réflecteur tout en profitant de ces neutrons pour la régénération. Cette couverture est constituée par des réservoirs de sel, composé de  ${}^7\text{LiF} - \text{ThF}_4$  seulement, et placés autour du cœur. Une partie de ce sel statique est vidangé pour être réinjecté dans le cœur du réacteur. Il est estimé que l' ${}^{233}\text{U}$  est intégralement récupéré en 6 mois et que le sel du réflecteur est entièrement changé tous les 20 ans.

Ce réacteur est couplé à une unité de retraitement du sel. Cette unité est destinée à extraire les produits de fission de manière à limiter l'empoisonnement du cœur et maximiser la régénération pendant

le fonctionnement du réacteur. De nombreuses versions de ce retraitement peuvent être envisagées en supprimant ou pas certaines étapes. Elles sont fortement conditionnées par leur possibilité de mise en oeuvre.

Notez que ce réacteur présente plusieurs avantages intrinsèques à son fonctionnement. Le fait que le combustible soit liquide apporterait plusieurs atouts non négligeables. Tout d'abord, rappelons que tous les réacteurs, quels qu'ils soient, sont accompagnés d'unités de fabrication de combustible, de moyens de transport adaptés et, parfois, d'unités de retraitement. C'est d'autant plus vrai pour les réacteurs surgénérateurs puisqu'il est nécessaire de récupérer la matière fissile créée lors du fonctionnement.

L'utilisation d'un combustible liquide permettrait une extraction en ligne des produits de fission, c'est-à-dire sans une interruption pénalisante du fonctionnement du réacteur (un REP s'arrête au mieux une quinzaine de jours, tous les 18 mois, pour le rechargement du combustible et la maintenance) ; la présence des éléments transuraniens serait moins complexe à gérer ; la gestion du coeur serait beaucoup plus aisée puisqu'on pourrait rajouter ou enlever en ligne l'élément fissile et les poisons neutroniques. Il ne serait pas nécessaire de prévoir une réserve initiale de réactivité, contrairement au REP. L'utilisation d'un combustible liquide évite de manière significative nombre des problèmes liés au recyclage de l'uranium et du thorium dans des combustibles solides. De plus, l'utilisation d'un combustible liquide permet d'être rapidement vidangé en cas de problème. Il n'y a pas de risque de fusion du coeur, accident majeur dans les autres réacteurs. De plus, le sel étant liquide à haute température, il n'est pas utile de recourir à de hautes pressions ce qui simplifie notablement le design du réacteur. Enfin, le sel est peu sensible à l'irradiation.

Ce réacteur répond aux critères de sûreté déterministes principaux. Le coefficient de température total est toujours largement négatif pour toutes les configurations du TMSR non modéré (toujours inférieur à  $-5 \text{ pcm/K}^4$ ). Ce coefficient correspond à la variation du coefficient de multiplication des neutrons provoquée par une variation de température du coeur ou d'une partie du coeur. Il doit être impérativement négatif pour induire une contre-réaction et assurer la stabilité intrinsèque du coeur. Cette condition de sûreté est largement vérifiée pour les TMSR. Le coefficient de vide est lui aussi une donnée capitale concernant la sûreté. Il correspond à la variation de la réactivité si une vidange du coeur accidentelle se produit ou si des bulles traversent le coeur. Il est également largement négatif pour toutes les configurations du TMSR non modéré.

Ce réacteur semble donc tout à fait attrayant de par ses nombreux avantages. Cependant, de nombreuses interrogations liées au retraitement se posent encore [20]. Les capacités de retraitement possibles du point de vue technologique et chimique restent mal connues. De nombreuses recherches en matériaux et en chimie complètent l'étude neutronique effectuée au LPSC. Dans le cadre français, elles sont fédérées au sein du groupement de recherche GEDEPEON et du Programme Concerté de Recherche RSF du CNRS qui font partie du Programme sur l'Aval du Cycle Electro-Nucléaire (PA-

---

<sup>4</sup>le "pcm" signifie une variation de réactivité de "un pour cent mille" soit  $10^{-5}$ .

CEN). Enfin, il est essentiel de préciser que, même si le principe d'un tel système (combustible liquide et unité de retraitement associée au réacteur) est très séduisant, la réelle faisabilité technique n'est pas encore démontrée. Ce système est extrêmement novateur et complètement différent par rapport aux systèmes actuels. Les avantages apportés sont très attrayants. En contre partie, il faut s'attendre à des problèmes eux aussi inédits.

### **1.3 Apports des simulations et nécessités de nouvelles mesures de données nucléaires**

L'étude de la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  et plus particulièrement des RSF, s'effectue grâce à un code de calcul nommé MCNP (Monte-Carlo N-Particules [21]) qui évalue des observables physiques grâce à un couplage entre un traitement stochastique et des bases de données nucléaires. Ce code de transport de neutrons ne fournit des informations qu'à un instant donné de la vie du réacteur. Or, l'étude de réacteurs nucléaires nécessite de connaître l'évolution temporelle du coeur du réacteur. Le code de transport MCNP est donc couplé à un code d'évolution (REM [14, 15] ou MURE [22]) qui a pour but de modifier la composition des matériaux au cours du temps en fonction des réactions ayant eu lieu en leur sein et en fonction de paramètres externes tels que le retraitement.

Les bases de données nucléaires utilisées par ces codes de calculs rassemblent un très grand nombre d'évaluations de grandeurs comme les sections efficaces, les distributions angulaires, etc, pour de très nombreux noyaux. Or, il s'est avéré que les simulations ont atteint un degré de précision tel que les erreurs apportées par certaines évaluations sont désormais devenues prépondérantes. Il devient impératif de renouveler les données en effectuant des mesures prenant en compte ces récentes exigences sur la précision. Un besoin essentiel de mesure d'un paramètre clé de la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , pouvant s'effectuer auprès de la plateforme PEREN du LPSC, est alors apparu et sera justifié par la suite. Il s'agit du rapport  $\alpha$  de la section efficace moyenne de capture de l' $^{233}\text{U}$  sur celle de fission. En effet, ce rapport, qui conditionne la proportion de captures parasites de neutrons (cf détails au chapitre 2), est nécessaire pour calculer le pouvoir de régénération de cette filière et/ou le temps de retraitement. Les valeurs actuelles du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , servant de bases aux évaluations, proviennent de plusieurs mesures effectuées dans les années 1960 (cf chapitre 2). Les précisions indiquées, dont le calcul est très souvent non détaillé, sont de quelques pourcents. Cependant, les mesures ont une dispersion entre elles de 25 %. Or, certaines grandeurs, comme par exemple le taux de régénération, sont très sensibles au rapport  $\alpha$ . Actuellement, la connaissance de ce terme est jugée insatisfaisante pour effectuer des scénarii suffisamment précis. Par conséquent, une nouvelle mesure de ce rapport est indispensable.





## Chapitre 2

# Le rapport $\alpha$ de l' $^{233}\text{U}$ : définition et état des lieux des données existantes

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  s'avère particulièrement intéressante et pérenne dans le cadre d'un développement notable du nucléaire à l'échelle mondiale. Un des paramètres clés pour effectuer des scénarii de déploiement précis de cette filière réside en la bonne connaissance du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , rapport de section efficace de capture sur celle de fission. Actuellement, la précision de ce terme s'avère insuffisante ce qui justifie le besoin de nouvelles mesures.

Dans ce chapitre, nous allons définir le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ . Nous montrerons en quoi il tient un rôle particulier dans la détermination du pouvoir régénérateur d'un réacteur et comment sa précision joue un rôle capital dans les études de scénarii. Nous expliquerons ensuite quels sont les différents types de mesures possibles avant de détailler l'état des données actuelles disponibles. Afin d'améliorer la lisibilité de cet état des lieux, l'ensemble des figures des données expérimentales est reporté en annexe B. De plus, la bibliographie associée aux données expérimentales est séparée de celle de la thèse. Pour ne pas confondre ces deux bibliographies, les références ne sont pas numérotées de la même façon : la bibliographie de la thèse est numérotée en chiffre croissant, les références étant organisées dans l'ordre d'apparition dans le corps du texte. Les références de la bibliographie associée à l'annexe B, classées par ordre alphabétique des auteurs, sont numérotées par les trois premières lettres de l'auteur et la date de la publication.

### 2.1 Qu'est-ce que le rapport $\alpha$ de l' $^{233}\text{U}$ ?

Le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est défini par :

$$\alpha(E_n) = \frac{\sigma_{capture}(E_n)}{\sigma_{fission}(E_n)} \quad (2.1)$$

avec :

$\sigma_{capture}$  section efficace de capture radiative

$\sigma_{fission}$  section efficace de fission

$E_n$  énergie du neutron incident

Le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est un paramètre indispensable pour connaître le régime de fonctionnement du réacteur. En effet, il est relié au nombre de neutrons disponibles pour la régénération. Voici le raisonnement permettant d'obtenir la relation entre ce nombre de neutrons et le rapport  $\alpha$  :

Lorsqu'un noyau d' $^{233}\text{U}$  fissionne,  $\nu$  neutrons ( $\nu = 2.5$  en moyenne) sont émis. Ces neutrons peuvent alors être absorbés par un autre noyau d' $^{233}\text{U}$  en induisant soit une fission, soit une capture pour former un noyau d' $^{234}\text{U}$ . Pour connaître le nombre de neutrons nécessaires pour provoquer une nouvelle fission et entretenir ainsi la réaction en chaîne, nous devons prendre en compte ces deux probabilités de réaction. Ainsi,  $(1 + \alpha)$  neutrons sont nécessaires pour entretenir la réaction en chaîne. En effet, on a :

$$\frac{\sigma_{fission} + \sigma_{capture}}{\sigma_{fission}} = 1 + \alpha$$

Enfin, pour chaque  $(1 + \alpha)$  noyaux fissiles consommés, il faut en régénérer  $(1 + \alpha)$  par capture sur le noyau fertile. Il faut aussi prendre en compte les inévitable pertes : captures stériles et fuites. On peut alors exprimer le nombre moyen de neutrons disponibles pour la surgénération  $N_d$  en fonction du rapport  $\alpha$  :

$$N_d = \nu - 2(1 + \alpha) - pertes \quad (2.2)$$

Comme  $N_d$  est le nombre de neutrons disponibles d'une génération à l'autre,

- $N_d < 0$  implique un fonctionnement en sous-génération.
- $N_d = 0$  implique un fonctionnement en régénération.
- $N_d > 0$  implique un fonctionnement en surgénération. On veut dans ce cas connaître le temps de doublement, temps nécessaire pour démarrer un nouveau réacteur à partir du combustible surgénéré dans un réacteur identique.

Le schéma 2.1 nous montre la répartition des diverses contributions de  $N_d$ . Le nombre moyen  $\nu$  de neutrons émis par fission est une donnée bien connue. A ce terme, nous devons forcément soustraire le chiffre 2. Ainsi,  $N_d$  est égal à  $0.5 - pertes - 2\alpha$ . Seules les pertes et le rapport  $\alpha$  sont des variables à déterminer. En ce qui concerne les pertes, elles dépendent du retraitement choisi (cf partie 2.3.4.3). Elles ont été estimées par des simulations numériques à 0.3 neutron [15]. Cela implique que :  $N_d = 0.5 - 0.3 - 2\alpha = 0.2 - 2\alpha$ . C'est finalement le rapport  $\alpha$ , qu'on se propose de mesurer dans cette thèse, qui permet de connaître le régime du réacteur.

De plus, la précision sur ce rapport doit être la meilleure possible. En effet, on sait que le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est de l'ordre de 0.1. Il apparaît ainsi que le terme  $2\alpha$  est déterminant pour le signe de  $N_d$  : c'est ce terme qui fait basculer le signe de  $N_d$ . Nous pouvons constater que c'est une contribution

proportionnellement faible par rapport aux autres termes définissant  $N_d$ . Le rapport  $\alpha$  joue donc véritablement un rôle de bras de levier. Une faible incertitude sur celle-ci induit alors une grande erreur sur  $N_d$ . Ce rapport, qui conditionne la proportion de captures parasites de neutrons, est nécessaire pour calculer le pouvoir de régénération de la filière.

Nombre  $N_d$  de neutrons disponibles d'une génération à l'autre :

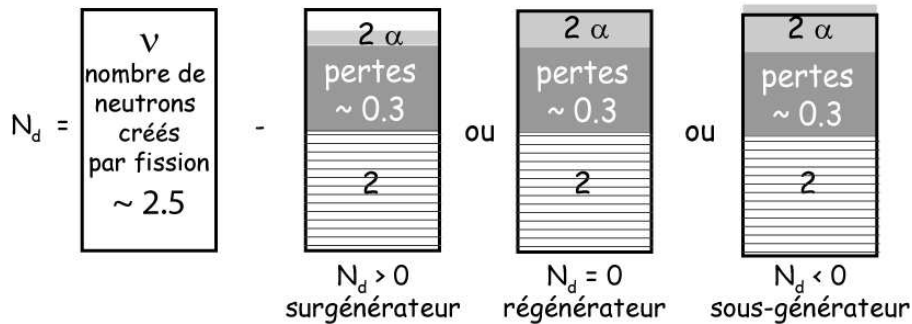


FIG. 2.1 – Répartition des divers termes composant  $N_d$ .

La détermination du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est donc capitale pour définir le régime de fonctionnement d'un réacteur basé sur la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Connaître ce terme, relié directement au taux de régénération, permet de simuler avec précision le déploiement de cette filière.

## 2.2 Types de mesures du rapport $\alpha$

Il existe plusieurs façons de mesurer le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  : mesures différentielles/intégrales d'une part ; mesures directes/indirectes d'autre part.

### 2.2.1 Mesures différentielles ou intégrales

Les mesures différentielles du rapport  $\alpha$  permettent d'obtenir des valeurs expérimentales en fonction de l'énergie du neutron incident. A l'opposé des mesures différentielles, les mesures intégrales donnent le rapport  $\alpha$  intégré sur une plage donnée d'énergie du neutron incident.

### 2.2.2 Mesures directes ou indirectes

Comme l'illustre la figure 2.2, la section efficace totale est composée de plusieurs contributions :  $\sigma_{totale} = \sigma_{fission} + \sigma_{capture} + \sigma_{diffusion\ élastique}$  pour des neutrons incidents d'énergie inférieure à 340.5 keV. Au delà de ces 340.5 keV, d'autres réactions peuvent avoir lieu, la première étant la section efficace de diffusion inélastique, puis viennent les réactions  $(n, 2n)$ ,  $(n, 3n)$ , ... Ce sont des réactions à seuil. Les sections efficaces représentées sur la figure 2.2 proviennent d'évaluations. Nous

détaillerons dans la partie 2.3 comment elles ont été obtenues. Néanmoins, nous pouvons déjà remarquer que la section efficace de capture est plus faible d'un ordre de grandeur par rapport à la section efficace de fission ou à la section efficace totale. Il sera donc beaucoup plus difficile de la mesurer. De cette constatation, deux choix de méthode de mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  s'offrent à nous :

- Les mesures directes consistent à mesurer la section efficace de fission et celle de capture de l' $^{233}\text{U}$  directement c'est-à-dire sans passer par la mesure d'autres sections efficaces.
- Les mesures indirectes correspondent à des mesures de la section efficace de fission et celle de la section efficace totale. La section efficace de diffusion est alors mesurée ou calculée par diverses méthodes afin d'en déduire la section efficace de capture.

Les mesures indirectes sont parfois préférées puisqu'elles permettent de s'affranchir de la difficulté de mesure de la section efficace de capture. En effet, il est beaucoup plus aisé de mesurer la section efficace totale. Cependant, des hypothèses fortes doivent alors être émises pour obtenir la section efficace de capture, ce qui n'est pas le cas pour les mesures directes.

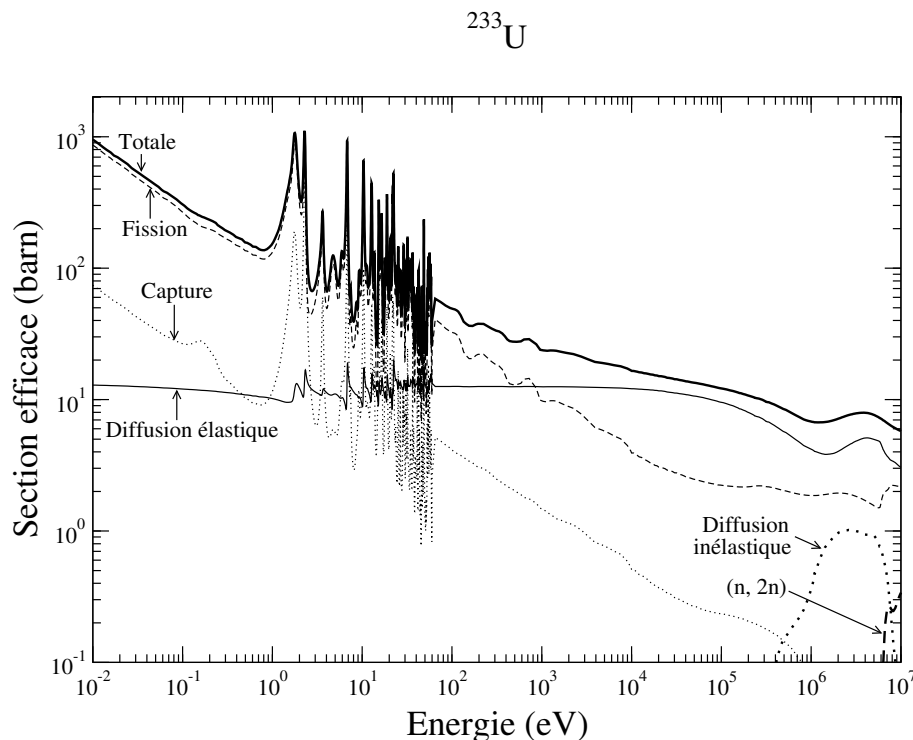


FIG. 2.2 – Sections efficaces neutroniques de l' $^{233}\text{U}$ , données par l'évaluation ENDF/B-VI.

## 2.3 Etats des lieux sur les données existantes du rapport $\alpha$ de l' $^{233}\text{U}$ et de l' $^{235}\text{U}$

Dans cette partie, après avoir défini ce qu'est un fichier évalué, nous nous proposons de faire un tour d'horizon des différentes mesures et évaluations du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  et de l' $^{235}\text{U}$ . Nous

verrons que ce dernier est connu avec une précision suffisante pour nous servir de référence afin de caractériser notre dispositif expérimental.

L'ensemble des données exposées dans cette section provient de la base de données du National Nuclear Data Center de Brookhaven (NNDC [23]). Ce centre regroupe à la fois les données évaluées et expérimentales. Pour ces dernières, nous utilisons les bases de données EXFOR, pour Experimental Nuclear Reaction Data [24], et CINDA, pour Computer Index of Nuclear reaction DAta [25]. De plus, des valeurs expérimentales supplémentaires, provenant de publications mais non reprises sous EXFOR, complètent ce bilan.

### 2.3.1 Qu'est ce qu'une évaluation ?

Un fichier évalué est un fichier contenant des informations issues à la fois d'expériences et de modèles et qui sont nécessaires au bon fonctionnement de codes de simulation comme par exemple MCNP. Les simulations numériques utilisent des bases de données nucléaires d'observables physiques (sections efficaces de réactions induites par un neutron, un proton, un deutérium, etc, données de décroissance des noyaux radioactifs ...) pour de très nombreux noyaux. Dans le cas des besoins en sections efficaces neutroniques pour l'étude de réacteurs, la plage en énergie du neutron induisant la réaction est très large puisque elle s'étale du meV au MeV, soit sur plus de 9 ordres de grandeur. Or, il est impossible d'obtenir expérimentalement en tout point toutes ces données, pourtant nécessaires au calcul. Les évaluations ont pour but de pallier ce défaut. Pour constituer les fichiers d'évaluations, les évaluateurs ont donc à leur disposition à la fois une base de données de valeurs expérimentales très complète et des modèles de noyaux valides sur certaines plages en énergie. Ils assemblent ces outils pour en déduire alors un ensemble cohérent de données extrapolables à toute énergie pour quasiment n'importe quelle réaction et n'importe quel isotope, même s'il n'existe aucune mesure explicite pour un isotope, une énergie, ou une réaction.

Les informations stockées dans les fichiers d'évaluations sont rarement des sections efficaces mais plutôt des paramètres permettant leur calcul. C'est le cas, par exemple, des sections efficaces neutroniques dans la zone de résonances : seuls des paramètres de résonances sont fournis. Un modèle (NJOY [26], SAMMY [27], ou autres) peut alors en déduire la section efficace.

Les fichiers d'évaluations sont écrits sous un format codifié et standardisé : le format ENDF (Evaluated Nuclear reaction Data File). Le programme NJOY permet de lire les informations contenues dans ce fichier et de produire les données au format voulu. Par exemple, on peut demander de construire le fichier de la section efficace de fission de l' $^{233}\text{U}$  à 300 K utile pour le code de transport de neutrons MCNP.

De constants efforts de mise à jour d'évaluations sont faits. En effet, il existe encore des quantités de réactions nucléaires pour lesquelles il n'existe aucune donnée expérimentale, et d'autres, encore

plus nombreuses, dont les mesures expérimentales ne couvrent pas tout le spectre en énergie des neutrons. De plus, certaines évaluations présentent des discontinuités non physiques provenant d'un mauvais raccordement des modèles utilisés pour des plages d'énergie différentes. Enfin, il faut prendre en compte régulièrement les nouvelles données expérimentales. La non concordance entre les simulations d'un système réel et les mesures associées justifie aussi la mise à jour des évaluations. Des simulations de systèmes complexes, dont la mesure et la modélisation ont été réalisées, permettent régulièrement de s'assurer de la qualité des évaluations. Les techniques d'évaluation et de remise à jour peuvent se faire de plusieurs façons plus ou moins complexes [28] :

- Reprise d'évaluations déjà existantes : une nouvelle évaluation dans un domaine d'énergie donnée peut être complétée par une évaluation déjà existante sur un domaine d'énergie adjacent.
- Renormalisation d'évaluations existantes : des évaluations déjà existantes sont réajustées de façon à être en accord avec de nouvelles valeurs expérimentales. C'est typiquement le cas lors de mesures d'une section efficace constante sur une plage en énergie donnée. Une renormalisation peut être envisagée grâce à cette nouvelle valeur.
- Interpolation de données expérimentales : cette méthode est basée sur la mesure de données puisque l'évaluation est déduite par l'interpolation entre des points de mesures de section efficace. C'est une méthode assez limitée de par la difficulté à tout mesurer. Elle n'est utilisée que pour des réactions dont la mesure complète est motivée par une application particulière.
- Modélisation : l'utilisation de modèles de processus physiques gouvernant les réactions nucléaires est la méthode la plus généralement applicable pour calculer une évaluation. Ces modèles dépendent généralement de paramètres ajustables. Il est alors nécessaire d'avoir suffisamment de données expérimentales pour contraindre correctement ces modèles théoriques.

Les fichiers évalués sont regroupés en bibliothèques, chacune étant censée apporter toutes les données nucléaires de façon cohérente. Il en existe cinq principales [23] :

1. la base de données américaine : ENDF, Evaluated Nuclear Data File
2. la base de données japonaise : JENDL, Japanese Evaluated Nuclear Data Library
3. la base de données européenne : JEF, Joint Evaluated File
4. la base de données chinoise : CENDL, Chinese Evaluated Nuclear Data Library
5. la base de données russe : BROND, Biblioteka Rekomendovannykh Otsenjonnykh Neutronnykh Dannykh

Nous verrons par la suite les différences entre ces différentes librairies.

### **2.3.2 Evaluations des incertitudes**

Le travail d'évaluation peut être suivi par un travail tout aussi important d'estimation de l'incertitude sur les données nouvellement évaluées. En effet, il existe plusieurs sources d'erreurs dans les

évaluations :

- Les données expérimentales, utilisées dans les évaluations, sont inévitablement entachées d'incertitudes (statistique insuffisante, incertitudes sur le flux, incertitudes sur la géométrie exacte, ...). Les évaluateurs doivent sélectionner les mesures pertinentes. De plus, un dispositif expérimental est souvent utilisé pour mesurer plusieurs sections efficaces (fission de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$ , par exemple). Dans un tel cas, les deux mesures ont des incertitudes corrélées entre elles. Elles ont en effet, la même erreur systématique provenant de la méthode de normalisation au flux de neutrons, par exemple. De plus, il arrive fréquemment (ce sera le cas pour notre mesure) qu'une mesure expérimentale soit recalibrée par rapport à d'autres données effectuées par ailleurs sur des dispositifs expérimentaux différents. L'incertitude sur la mesure ne pourra pas être meilleure que celles des données servant alors de référence.
- Les modèles utilisés dans les évaluations induisent, eux aussi, des erreurs. Le calcul de l'incertitude des données évaluées se fait par la propagation des incertitudes au travers des modèles de noyaux.

Tout un travail d'évaluation des incertitudes sur les sections efficaces a démarré assez récemment. Les incertitudes sur les sections efficaces sont parfois spécifiées dans les fichiers évalués. Notez qu'actuellement, elles sont encore loin d'être toutes disponibles. Par exemple, les incertitudes sur les sections efficaces de capture sont encore toutes introuvables<sup>1</sup>.

Les incertitudes sur les sections efficaces sont évaluées à partir de modèles statistiques complexes qui tiennent compte des incertitudes des mesures, lorsqu'elles sont précisées. Ces incertitudes sont généralement données, non pas quelle que soit l'énergie, mais pour des domaines d'énergie. Ces incertitudes correspondent donc à l'incertitude sur les sections efficaces moyennées sur une zone en énergie.

Il est possible de calculer l'incertitude sur la section efficace pour une énergie donnée, ainsi que toutes ses corrélations avec les données à d'autres énergies ou pour d'autres réactions. On représente généralement ces informations par des matrices de corrélation énergie-énergie, en fonction de l'énergie du neutron incident (l'incertitude est donnée par l'écart-type à un  $\sigma$  en pourcent). Notez que les corrélations ne proviennent pas seulement des méthodes expérimentales mais aussi de la physique nucléaire. Par exemple, à basse énergie, la section efficace varie de manière inversement proportionnelle à la racine carrée de l'énergie du neutron.

Il est possible d'obtenir des évaluations dont l'incertitude est inférieure à celle des mesures expérimentales de référence. Ceci s'explique par le fait que les évaluations utilisent en plus des modèles de physique qui permettent de contraindre les données. Par exemple, pour la section efficace de capture de l' $^{233}\text{U}$ , il a été imposé que la largeur relative des résonances est constante. Enfin, les très

---

<sup>1</sup>celles pour l' $^{233}\text{U}$  et l' $^{235}\text{U}$  sont en cours de calcul.



nombreuses études de validation des évaluations ont permis des corrections et des ajustements qui peuvent expliquer la très bonne connaissance d'une section efficace, malgré des incertitudes expérimentales fortes. L'incertitude liée alors à l'évaluation est extrêmement complexe à définir.

### 2.3.3 Etat des lieux pour l' $^{235}\text{U}$

Avant de présenter l'état des lieux des données existantes pour l' $^{233}\text{U}$ , nous nous intéressons à un isotope mieux connu : l' $^{235}\text{U}$ . En effet, le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  est plus grand que celui de l' $^{233}\text{U}$ , impliquant une mesure plus accessible. De plus, les nombreuses utilisations actuelles (réacteurs électrogènes, applications militaires) de l'élément  $^{235}\text{U}$  ont motivé un grand nombre de mesures de sections efficaces de capture et de fission. Cet élément est indispensable pour calibrer le dispositif expérimental. L' $^{235}\text{U}$  est donc un très bon candidat : activité plus faible, rapport  $\alpha$  plus favorable et mieux connu comme nous allons le voir dans les paragraphes suivants.

#### 2.3.3.1 Données expérimentales existantes

De très nombreuses mesures expérimentales du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  ont été effectuées sur des plages en énergie diverses. L'annexe B en fait la liste exhaustive.

#### Mesures intégrales

Il existe plusieurs mesures intégrales du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$ . Elles sont représentées sur la figure 2.3. Toutes ces mesures ne sont pas compatibles entre elles. En effet, les spectres en énergie considérés sont différents. En particulier, les mesures effectuées en spectre non thermique (mesure n°6 par exemple) diffèrent des mesures effectuées en spectre thermique (mesure n°2 par exemple). Aucune comparaison n'est possible pour ce domaine en énergie. Par contre, les valeurs prises en spectre thermique sont cohérentes, bien que les domaines d'énergies considérées ne soient pas toujours mentionnés dans la documentation. La figure 2.4 montre que la plupart des mesures se superposent.

En considérant uniquement la partie thermique, la moyenne du rapport  $\alpha$  pour les valeurs intégrales est de 0.171. Les erreurs citées sur ces mesures varient entre 0.35 % [OKA64235] et 15 % [EGE55]. La dispersion, ou l'écart-type<sup>2</sup>, de ces mesures est de 0.017, ce qui représente une variation de 10 % sur la mesure du rapport  $\alpha$  moyen.

Il reste quelques interrogations à propos de certaines données. Il existe deux jeux de données pour la mesure d'Okazaki et al. [OKA64235]. En effet, sous EXFOR, nous avons accès à deux fichiers absolument identiques (référence des publications, explications de l'expérience ...) exceptée les valeurs du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ . Ne pouvant accéder à la publication originale, il ne nous est pas possible de comprendre les différences. Nous ne pouvons pas conclure : est-ce qu'il s'agit de deux mesures distinctes, et le cas échéant, qu'est ce qui les différencie ? Ou est-ce un problème provenant d'EXFOR

<sup>2</sup>Pour toute la suite de cette thèse, j'entendrai par écart-type d'une série de données, le terme calculé ainsi :  $\sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^{i=n} (x_i - x_m)^2}$  avec  $x_m$ , la moyenne des données.

et, dans ce cas, quelle valeur est correcte ? De même, les données de Craig et al. [CRA58] sont, elles aussi, en double et, de la même façon que pour les données d'Okazaki et al., aucun moyen ne nous permet de comprendre la différence.

### Mesures différentielles

Les valeurs différentielles sont récapitulées sur les figures B.4 à B.8 situées en annexe B. De très nombreuses mesures du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$  ont été effectuées, dont certaines sont très récentes. Elles diffèrent sur la méthode de mesure et la plage en énergie considérée. Des écarts importants entre les mesures sont visibles.

La mesure de la section efficace de fission de  $1^{235}\text{U}$ , seule, a été effectuée lors de plus nombreuses mesures encore que celles du rapport  $\alpha$ . De par leur trop grand nombre, nous ne les avons pas répertoriées. Seules celles qui ont été utilisées par les évaluateurs sont citées en annexe B. Des mesures de section efficace de fission de  $1^{233}\text{U}$  sont encore en cours, par exemple celles auprès du dispositif n-ToF [29].

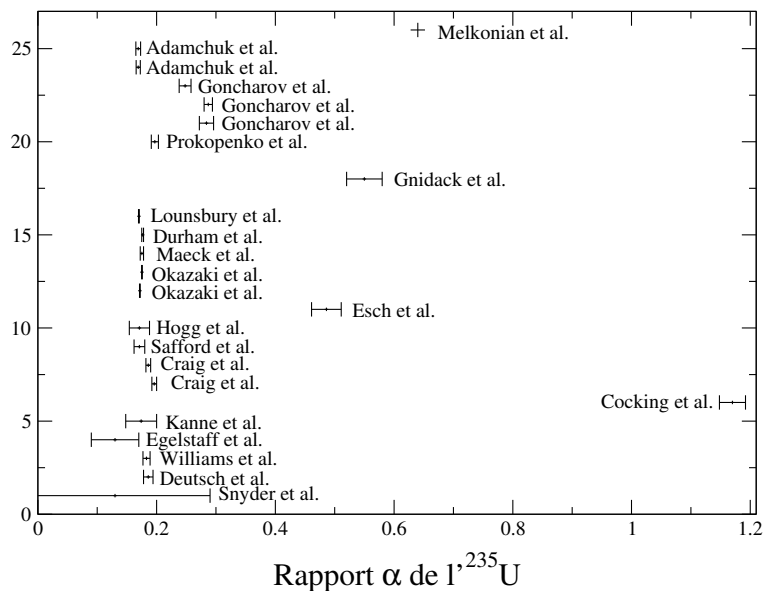


FIG. 2.3 – Récapitulatif de l'ensemble des valeurs expérimentales intégrales du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR.

### 2.3.3.2 Evaluations

Il n'existe pas d'évaluation directe du rapport  $\alpha$ . Seules sont évaluées les sections efficaces de fission et de capture de  $1^{235}\text{U}$ . Ainsi, les incertitudes provenant de chacune de ces évaluations se répercutent sur l'incertitude du rapport  $\alpha$ . La figure 2.5 montre les différentes valeurs de ce rapport en fonction de la base de données choisie. Aucun désaccord majeur n'est visible entre les différentes évaluations.

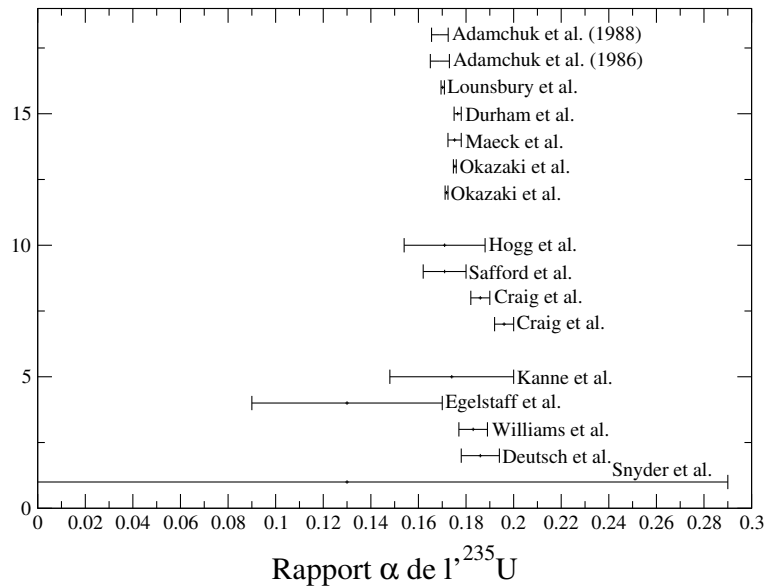


FIG. 2.4 – Valeurs expérimentales intégrales du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR. Seules les mesures en spectre thermique apparaissent.

Ces données sont comparées en les moyennant sur deux plages en énergie : [1 eV ; 10 keV] correspondant à la plage de mesure de notre expérience, et celle correspondant à tout le spectre. Elles sont répertoriées dans le tableau 2.1. Le rapport  $\alpha$  moyen pour ces différentes évaluations est de 0.398 pour la plage en énergie [1 eV ; 10 keV] (respectivement 0.0142 pour tout le spectre) avec un écart-type de 0.013 (respectivement 0.0011). L'écart-type relatif, calculé comme étant l'écart-type divisé par la moyenne, est alors de 3.1 % (resp. 7.6 %).

L'inconvénient d'une estimation de la dispersion des mesures par l'écart-type est que celui-ci "lisse" les écarts. Idéalement, il faudrait pouvoir calculer l'incertitude sur chacune des données du rapport  $\alpha$  selon l'évaluation pour vérifier si les écarts sont significatifs. Cependant, aucune incertitude sur les sections efficaces de capture n'est donnée dans les évaluations.

Base de données	ENDF/B-VI	JENDL-3.3	JEFF-31	JEFF-31A
1 eV ; 10 keV	0.403	0.399	0.403	0.388
$1 \cdot 10^{-5}$ eV ; 20 MeV	0.0146	0.0133	0.0145	0.0146

Ecart-type relatif	ENDF/B-VI	JENDL-3.3	JEFF-31	JEFF-31A
1 eV ; 10 keV	1.19 %	0.19 %	1.19 %	2.57 %
$1 \cdot 10^{-5}$ eV ; 20 MeV	2.46 %	6.67 %	1.75 %	2.46 %

TAB. 2.1 – Récapitulatif des valeurs moyennes du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$  pour les différentes bases de données, pour deux plages en énergie. L'écart-type relatif, calculé comme étant l'écart-type divisé par la moyenne, est également mentionné.

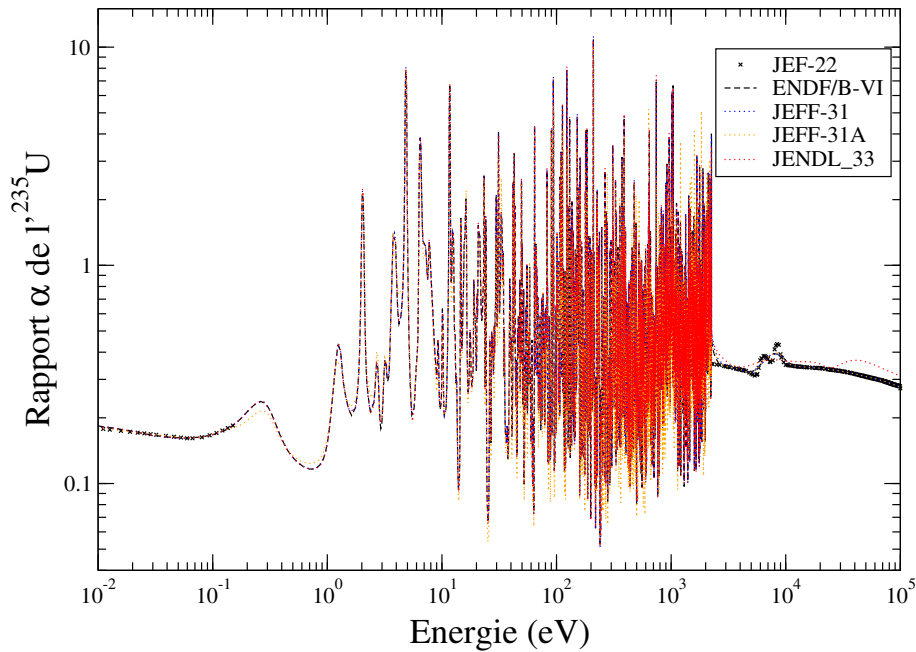


FIG. 2.5 – Comparaison entre les différentes bases de données disponibles du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$ .

### L'évaluation ENDF/B-VII

Dans cette évaluation, les intégrales des sections efficaces de capture et de fission dans la zone des résonances sont respectivement de 276.04 barns et 140.49 barns. Ceci donne un rapport  $\alpha$  égal à 0.5089, ce qui est en accord avec la valeur obtenue en mesure intégrale en spectre épithermique :  $0.486 \pm 0.025$  (mesure de Esch et al. [ESC64]). De plus, les mesures expérimentales différentielles prises en compte dans l'analyse pour effectuer l'évaluation sont au nombre de 18. Une brève description de chacune d'elle est donnée dans l'annexe C.

Les données expérimentales utilisées pour l'évaluation ne reprennent pas forcément les données expérimentales du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$  référencées dans EXFOR. De plus, les évaluations utilisent aussi des mesures expérimentales de fission et de capture indépendantes. Les évaluateurs ne prennent pas seulement en compte les mesures de sections efficaces mais aussi des données nucléaires fondamentales comme le rendement de fission.

Les évaluateurs ont d'abord pris en compte les données expérimentales différentielles avant d'inclure les données expérimentales intégrales. L'évaluation de la section efficace de capture est basée sur la section efficace de fission évaluée et des mesures du rapport  $\alpha$  de  $1^{235}\text{U}$  pour la plage en énergie allant de 2.25 keV à 1 MeV. Les évaluateurs ne prennent pas les mesures expérimentales de section efficace de capture directement mais systématiquement la mesure du rapport  $\alpha$ .

Les évaluations, ont été comparées à des données expérimentales afin de vérifier leur cohérence. Les tableaux 2.2, et 2.3 regroupent les résultats obtenus. L'écart maximal entre la section efficace de

Plage en énergie (eV)	ENDF/B-VII [30] (barn.eV)	De Saussure et al. [SAU67] (barn.eV)	Ecart entre ENDF/B-VII et De Saussure	Perez et al. [PER73] (barn.eV)	Ecart entre ENDF/B-VII et Perez
0.5 - 20.0	653.5	647	1.0 %		
20.0 - 60.0	1066.1	1084	1.7 %	1057	0.8 %
60.0 - 100.0	490.2	477	2.7 %	504	2.8 %
100.0 - 200.0	1158.8	1148	0.9 %	1138	1.8 %
200.0 - 300.0	907.8	904	0.4 %	940	3.5 %
300.0 - 400.0	660.2	658	0.3 %	642	2.8 %
400.0 - 500.0	495.9	506	2.0 %	478	3.6 %
500.0 - 600.0	533.3	506	5.1 %	562	5.4 %
600.0 - 700.0	494.8	481	2.9 %	449	9.5 %
700.0 - 800.0	490.1	513	4.7 %	475	3.1 %
800.0 - 900.0	439.8	444	0.9 %	397	9.7 %
900.0 - 1000.0	504.2	542	7.5 %	482	4.4 %
1000.0 - 2000.0	509.6	522	2.4 %	463	9.1 %
1100.0 - 1200.0	413.7	395	4.5 %	332	19.7 %
1200.0 - 1300.0	340.4	372	9.3 %	267	21%
1300.0 - 1400.0	304.1	304	0.03 %	225	26 %
1400.0 - 1500.0	355.7	301	15 %	254	29 %
20.0 - 1500.0	9164.7	9046	1.3 %	8665	5.4 %

TAB. 2.2 – Comparaison entre les données calculées et des données expérimentales pour la section efficace de capture.

fission évaluée et celle mesurée est de 4.4 % pour Schrack et al. [SCH88], 2.8 % (2.0 %) pour Weston et al. [?, WES92]. Par contre, l'écart maximal entre la section efficace de capture évaluée et celle mesurée est de 15.4 % pour De Saussure et al. [SAU67] et de 28.6 % pour Perez et al [PER73].

### L'évaluation JENDL-3.3

Les données expérimentales utilisées pour l'évaluation de la section efficace de fission dans la librairie JENDL-3.3 sont au nombre de 40 [PER74, POE74, POE77, CZI75, CZI75b, CZI76, SZA76, BAR76, GWI76, CAN78, CAN81, CAR78, KAR78, ADA79, ARL79, ARL83, ARL85, WAS82, WAS82b, LIJ82, LIJ86, MAH82, CAR82, COR81, ALK83, ALK86, ALK88, AZI83, DUS84, WES84, CAR84, HER85, SCH85, IWA88, BUL88, FIL88, KAL88, KAL91, JOH91, MER91, LIS97]. En ce qui concerne la section efficace de capture, deux domaines en énergie sont considérés. En dessous de 1 MeV, elle est évaluée à partir de l'évaluation de la fission et des mesures du rapport  $\alpha$  suivantes : [HOP62, BEE79]. Au dessus de 1 MeV, ce sont des modèles qui sont utilisés (code CAS-THY [IGA91]).

Plage en énergie (eV)	ENDF/B-VII (barn.eV)	Schrack et al. [SCH88] (barn.eV)	Ecart entre ENDF/B-VII et Schrack	Weston et al. [?] (barn.eV)	Ecart entre ENDF/B-VII et Weston [?]	Weston et al. [WES92] (barn.eV)	Ecart entre ENDF/B-VII et Weston [WES92]
0.5 - 20.0	910.4	929.9	2.1 %				
20.0 - 60.0	1867.8	1882.8	0.8 %	1869.9	0.1 %		
60.0 - 100.0	954.0	968.0	1.5%	954.2	0.02 %		
100.0 - 200.0	2032.7	2092.7	2.9 %	2089.5	2.8 %	2073.9	2.0 %
200.0 - 300.0	2062.2	2007.0	2.7 %	2060.0	0.1 %	2054.6	0.4 %
300.0 - 400.0	1280.8	1321.6	3.2 %	1297.1	1.3 %	1292.9	0.9 %
400.0 - 500.0	1333.2	1391.5	4.4 %	1351.8	1.4 %	1347.9	1.1 %
500.0 - 600.0	1489.2	1467.9	1.4 %	1499.2	0.7 %	1494.3	0.3 %
600.0 - 700.0	1126.6	1156.4	2.6 %	1134.1	0.7 %	1132.6	0.5 %
700.0 - 800.0	1088.7	1085.8	0.3 %	1093.3	0.4 %	1075.7	1.2 %
800.0 - 900.0	797.6	784.0	1.7 %	813.0	1.9 %	804.9	0.9 %
900.0 - 1000.0	724.4	723.9	0.1 %	738.2	1.9 %	721.4	0.4 %
1000.0 - 2000.0	7036.1					7054.2	0.3 %

TAB. 2.3 – Comparaison entre les données calculées et des données expérimentales pour la section efficace de fission. Les deux dernières colonnes proviennent de deux mesures de la section efficace de fission effectuée par Weston et Todd. Bien que les données diffèrent, la même méthode de mesures est utilisée, seule la plage en énergie a changé.

## L'évaluation JEFF-31

Cette évaluation prend pour données de base les évaluations de JEFF-3.0 qui elle-même prend pour données de base les évaluations de ENDF/B-VI. Ceci explique les similitudes entre les évaluations JEFF-31 et ENDF/B-VI. De plus, l'évaluation de la section efficace de capture a été renormalisée en fonction de nouvelles mesures du rapport  $\alpha$ , mais aucune référence sur ces mesures n'est indiquée.

## Evaluation des incertitudes

La matrice de covariance pour la section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$  pour l'évaluation ENDF/B-VII est donnée sur la figure 2.6. Elle indique que, sur la plage en énergie [1 eV ; 10 keV] correspondant à celle de notre mesure, la section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$  est connue à 0.5 % près. Par contre, les incertitudes et les corrélations des sections efficaces de capture de l' $^{235}\text{U}$  ne sont pas disponibles dans ENDF/B-VII, comme dans toutes les autres évaluations. Cependant, Palmiotti et al. [31] cite une incertitude sur le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  de 5 %.

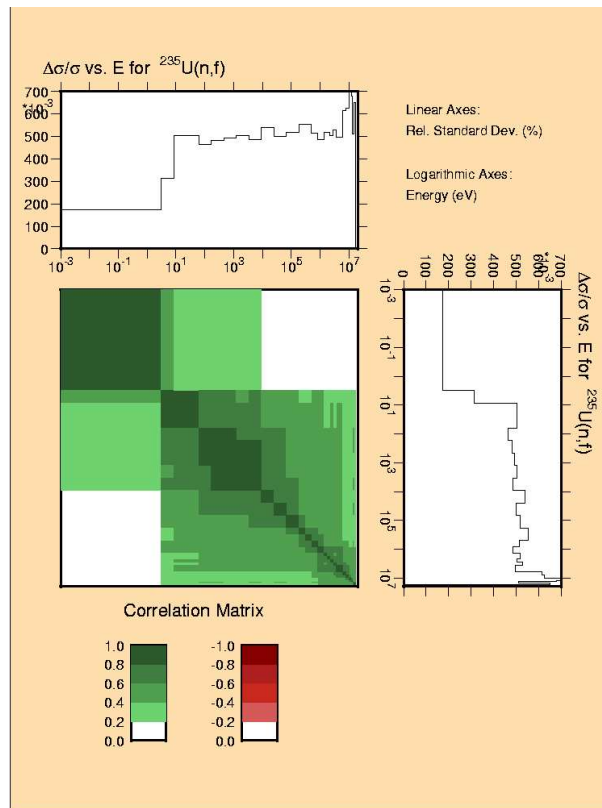


FIG. 2.6 – Incertitude et corrélations des sections efficaces de fission l' $^{235}\text{U}$  disponible dans ENDF/B-VII.

## 2.3.4 Etat des lieux pour l' $^{233}\text{U}$

### 2.3.4.1 Données expérimentales existantes

Les données expérimentales concernant le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  sont assez peu nombreuses et datent essentiellement des années 60. Il a été assez difficile de trouver les publications portant sur ces mesures. Un certain nombre n'a pas été accessible. De plus, peu de valeurs sont tabulées et existent sous EXFOR. Ces mesures sont résumées dans le tableau B.6 pour les mesures intégrales et dans le tableau B.7 pour les mesures différentielles, situés dans l'annexe B.

Il existe assez peu de mesures du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  et beaucoup d'entre elles sont des mesures intégrales. Ces mesures sont obtenues dans des réacteurs dont nous ne connaissons pas précisément la forme du spectre. Nous savons seulement qu'il s'agit de spectres thermiques (neutrons d'énergie inférieure à 0.5 eV). Or, il est très utile de connaître le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  dans le domaine épithermique voire rapide puisqu'il s'est avéré que les Réacteurs à Sels Fondus peuvent fonctionner de façon avantageuse avec des spectres autres que purement thermiques (cf chapitre 1).

La moyenne du rapport  $\alpha$  pour ces valeurs intégrales sur le spectre thermique est de 0.127. Ces données expérimentales, bien qu'individuellement assez précises (les erreurs données sur les mesures étant au minimum de 0.44 %, au maximum de 10 %), présentent entre elles une dispersion de 25 %. Il semble que des erreurs systématiques non maîtrisées soient à l'origine d'une telle dispersion. Pour mieux visualiser la dispersion des données et leur incohérences, nous avons représenté ces données sous forme de segments. La figure 2.7 montre que les mesures en spectre thermique ne sont pas en accord. Bien que les plages précises en énergies ne sont pas spécifiées et peuvent donc différer, elles ne peuvent pas expliquer de tels écarts sur le rapport  $\alpha$ . Enfin, il y a deux valeurs pour la mesure de Esch et al. pour une même référence [ESC64] (publication non accessible) : celle égale à 0.165 est la valeur relevée dans EXFOR, tandis celle égale à 0.175 est celle trouvée dans de nombreuses publications dont celles de Weston et al.

En outre, beaucoup de ces mesures ne sont pas assez détaillées dans EXFOR : les méthodes, le type de détecteurs utilisés, la source de neutrons, ... ne sont pas systématiquement précisés. Les incertitudes ainsi que leur calcul, lorsqu'elles sont données dans les publications, sont mal connues. Les publications n'étant pas toujours accessibles, nous n'avons pas pu vérifier et compléter les informations indiquées dans EXFOR.

Les mesures différentielles sont aussi peu nombreuses. Elles sont représentées sur les figures B.6, B.7, B.8, B.10 et B.11, dans l'annexe B.

Les données de Egelstaff [EGE55] sont différentielles puisqu'il est spécifié dans EXFOR qu'un spectromètre à temps de vol a été utilisé, sans plus de détails. Cependant, une seule valeur est spécifiée :  $\alpha = 0.18 \pm 0.04$  pour la plage en énergie entre  $5.10^{-3}$  eV et 21 eV.



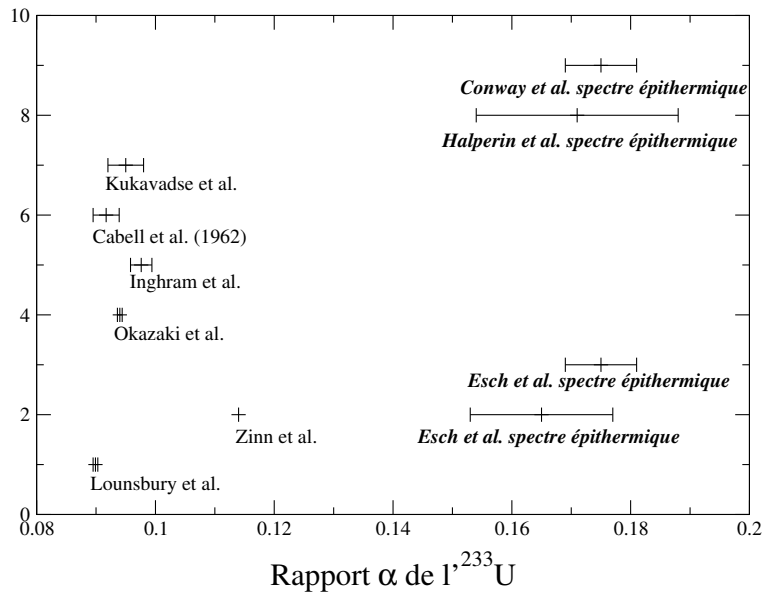


FIG. 2.7 – Récapitulatif de l'ensemble des valeurs expérimentales intégrales du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR. Toutes les mesures représentées sont effectuées en spectre thermique, exceptées celle dont le titre est en gras souligné qui sont obtenues pour des spectres épithermiques.

### Les données expérimentales de Weston et al.

Nous nous intéressons tout particulièrement à l'expérience de Weston et al. puisqu'il s'avère que les résultats servent de référence dans les évaluations. L'étude décrite dans ce paragraphe permettra par la même occasion de mieux comprendre les données indiquées dans EXFOR. Plusieurs publications sont à notre disposition pour les comparaisons :

1. "Neutrons Fission and Capture Cross Sections measurements for  $^{233}\text{U}$  in the energy region 0.02 to 1 eV" L.W. Weston, R. Gwin and G. de Saussure, ORNL, Nuclear Science and Engineering, 42, 143-149 (1970) [WES70]. Cette publication correspond à celle utilisée par EXFOR. Les données des sections efficaces récupérées sous format informatique sous EXFOR coïncident parfaitement avec celles tabulées dans cette publication.
2. "Measurement of Neutron Fission and Capture Cross Sections for  $^{233}\text{U}$  in the region 0.4 to 2 000 eV" L.W. Weston, R. Gwin and G. de Saussure, ORNL, Nuclear Science and Engineering, 34, 1-12 (1968) [WES68]. Cette publication, utilisée comme référence par EXFOR, ne contient aucune donnée de section efficace tabulée. Seuls des graphiques sont à disposition. Aucune comparaison directe n'est possible.
3. "Measurement of Neutron Fission and Capture Cross Sections for  $^{233}\text{U}$  in the region 0.4 to 1 000 eV" L.W. Weston, R. Gwin and G. de Saussure, ORNL, internal report (1967) [WES67]. Ce rapport interne de l'ORNL correspond à un rapport intermédiaire avant publication. La publication correspondante est celle citée ci-dessus [WES68]. Cependant, contrairement à la publication qui ne contient que des graphiques, les données des sections efficaces de capture et

de fission sont entièrement tabulées dans ce rapport. Nous pouvons alors les comparer avec les valeurs indiquées par EXFOR. Or, il s'avère qu'il y a une différence non négligeable entre ces deux références. Les figures B.12, B.13 et B.14 montrent ces écarts pour la section efficace de fission et de capture, et pour le rapport  $\alpha$  sur toute la plage de mesure. Afin de mieux visualiser les différences, le rapport  $\alpha$  est représenté sur les figures B.15 à B.22 pour plusieurs plages en énergie. Le tableau 2.4 montre une comparaison des valeurs de Weston et al. (du rapport interne ORNL et provenant d'EXFOR) avec celles de l'évaluation ENDF/B-VI. Les mesures de Weston et al. provenant d'EXFOR sont, en moyenne sur toute la plage en énergie étudiée (soit 0.4 eV ; 1 keV), plus proches des données de l'évaluation ENDF/B-VI que des mesures de Weston et al. provenant du rapport interne ORNL. Cette constatation est compatible avec le fait que l'évaluation se base sur ces données. Par contre, de gros écarts subsistent sur certaines plages en énergie. C'est le cas pour la plage comprise entre 50 eV et 100 eV. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que, à partir de 60 eV, l'évaluation ne résout plus les résonances. Mais dans ce cas on pourrait s'attendre à ce que, résonances résolues ou pas, la valeur moyenne reste cohérente.

Nous avons supposé que l'essentiel des différences entre [WES68] et [WES67] provenait d'une révision des résultats avant la publication (les données du rapport interne de 1967 ne sont pas définitives), tout particulièrement de la renormalisation absolue des données. En effet, lors de la déduction de la section efficace de capture, deux paramètres non accessibles par l'expérience ont dû être calculés à partir de la mesure de la section efficace totale de l' $^{233}\text{U}$  par Pattenden et Harvey [PAT63]. La section efficace de diffusion a été supposée constante et égale à 12.5 barns. Les données expérimentales de Weston sont donc corrélées à celles de la mesure de section efficace totale de Pattenden et Harvey. Une légère modification de cette normalisation (2.6 %) induit des écarts sur le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  pouvant aller jusqu'à 50 %. Cet exemple nous permet de mieux comprendre les problèmes qui se posent lors de l'analyse des données : il est souvent nécessaire de s'appuyer sur des expériences passées. La nouvelle mesure, et donc son incertitude, sont alors corrélées aux autres expériences. De plus, cet exemple nous permet d'ores et déjà de souligner la difficulté d'obtenir directement la section efficace de capture. Il fait ressortir l'importance de la précision sur la normalisation et de la grande sensibilité de la mesure à celle-ci.

Sur la figure B.15, les données d'EXFOR et l'évaluation coïncident relativement bien. Par contre, les données initiales peuvent être différentes de plus d'un facteur 2 par rapport aux données publiées dans EXFOR.

Les résonances venant de la base de données EXFOR sont mieux définies que celles provenant du rapport interne [WES67] (cf figures de B.17 à B.22). Aucune explication à ce propos n'est spécifiée dans la publication. Nous pouvons supposer qu'un traitement de déconvolution de la résolution a pu être effectué.

Nous trouvons plus de 400 valeurs en plus dans les données EXFOR par rapport aux données initiales

Plage en énergie (eV)	ENDF/B-VI	Rapport interne ORNL	Ecart par rapport à ENDF/B-VI	Données EXFOR	Ecart par rapport à ENDF/B-VI
0.4 ; 1 000	0.1379	0.2674	94 %	0.1629	18 %
0.4 ; 5	0.1781	0.1681	5.6 %	0.1641	7.9 %
5 ; 10	0.1635	0.1461	11 %	0.1919	17 %
10 ; 50	0.1449	0.1301	11 %	0.1988	37 %
50 ; 100	0.1096	0.1281	17 %	0.3370	207 %
100 ; 500	0.1471	0.1964	34 %	0.1528	3.9 %
500 ; 1 000	0.1322	0.3513	166 %	0.1504	14 %

TAB. 2.4 – Comparaison de la valeur moyenne du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  obtenue par Weston et al. pour les deux sources de données expérimentales, et pour différentes plages en énergie. Ces valeurs sont comparées à l'évaluation ENDF/B-VI. Aucune incertitude n'a pu être donnée puisqu'elles ne sont pas précisées dans les publications.

du rapport interne. La plage en énergie n'est pas la même : 1.286 keV au maximum pour les données du rapport interne contre 2.048 keV pour les données issues de EXFOR. Dans la publication, il est précisé que les données vont jusqu'à 2.0 keV, bien que les graphiques ne les représentent que jusqu'à 1.0 keV. Cependant, nous n'avons pas accès à de quelconques explications à ce sujet.

La renormalisation absolue des mesures de Weston induit des valeurs de la section efficace de capture négative, comme le montre la figure B.9. Ceci nous donne une idée de l'incertitude et de la limite de la mesure.

La mesure de Weston et al. ([WES68]) est la seule dont l'analyse, particulièrement les incertitudes, est très détaillée. Afin de pouvoir comparer la valeur du rapport  $\alpha$  obtenue, Weston a complété ses mesures par l'évaluation de Snidow [SNI66]. Il obtient ainsi  $\alpha = 0.188 \pm 0.017$  pour une énergie de 0.5 eV à 10 MeV. Cette valeur est assez éloignée de celles indiquées par Conway et al. [CON67] et Halperin et al. [HAL63] qui donnent tous deux une valeur proche de 0.17 avec une précision de 3.4 % (resp. 10 %). Les données de Halperin et al. et de Weston et al. ne sont pas contradictoires à l'incertitude près. Par contre, les données de Conway et al. et de Weston et al. ne coïncident pas.

### 2.3.4.2 Evaluations

Tout comme pour l' $^{235}\text{U}$ , il n'existe pas d'évaluation directe du rapport  $\alpha$ . Seules sont évaluées les sections efficaces de fission et de capture de l' $^{233}\text{U}$ .

Pour comparer ces évaluations entre elles, nous nous intéressons dans un premier temps aux sections efficaces directement obtenues des évaluations. La figure 2.8 montre le rapport  $\alpha$  en fonction de la base de données choisie. D'importants désaccords sont visibles entre les différentes évaluations, notamment entre ENDF/B-VI et JENDL-3.3 pour la zone en énergie comprise entre 50 eV et 200 eV. En effet, JENDL-3.3 prévoit beaucoup plus de résonances. Cela s'explique par la méthode d'évalua-

tion utilisée : plusieurs modèles sont utilisés pour reproduire les différentes zones en énergie que sont le domaine thermique, le domaine des résonances résolues et celui des résonances non résolues. La frontière entre ces deux domaines n'est pas la même selon les modèles et les évaluateurs.

Des différentes évaluations nous pouvons en déduire pour chacune le rapport  $\alpha$  sur deux plages en énergie : celle comprise entre 1 eV et 10 keV qui correspond à la plage de mesure de notre expérience et celle correspondant à tout le spectre. Elles sont répertoriées dans le tableau 2.5. Le rapport  $\alpha$  moyen pour ces différentes évaluations est de 0.11765 (respectivement 0.0707) avec un écart-type de 2.28 % (respectivement 2.43 %). Cela conduit à un écart-type relatif de 19.4 % (resp. 34.4 %).

Nous avons reporté les écarts par rapport à la moyenne pour chacune des évaluations. Les données pour  $^{235}\text{U}$  sont beaucoup moins dispersées que celles de  $^{233}\text{U}$ . Ces écarts varient entre 0.15 % et 6.7 % pour  $^{235}\text{U}$  tandis qu'ils varient de 1.3 % à 27 % pour  $^{233}\text{U}$ . Cela confirme que le rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  est mieux connu que celui de  $^{233}\text{U}$ .

Il est cependant très difficile de conclure sur les précisions des données. Nous ne connaissons pas les incertitudes des différentes évaluations, comme c'est également le cas pour les évaluations du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ . Par conséquent, nous ne savons pas si elles sont cohérentes entre elles. Par contre, contrairement au rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ , les deux bases de données suivantes fournissent des incertitudes sur leurs évaluations : JENDL-3.3 et une version préliminaire de ENDF/B-VII.

Estimer les incertitudes d'une évaluation est très complexe, d'autant plus que nous avons vu que les incertitudes expérimentales sont souvent mal indiquées. Effectuer à nouveau une mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  permettrait de contraindre à la fois l'évaluation du rapport  $\alpha$  mais aussi et surtout, les incertitudes sur ce rapport.

Base de données	ENDF/B-VI	JENDL-3.3	JEFF-31	EFF-31A
1 eV ; 10 keV	0.1357	0.1077	0.1080	0.1192
$1.10^{-5}$ eV ; 20 MeV	0.0556	0.0690	0.0687	0.0895
Ecart par rapport à la moyenne	ENDF/B-VI	JENDL-3.3	JEFF-31	JEFF-31A
1 eV ; 10 keV	15.3 %	8.46 %	8.20 %	1.32 %
$1.10^{-5}$ eV ; 20 MeV	21.4 %	2.40 %	2.83 %	26.6 %

TAB. 2.5 – Récapitulatif des valeurs moyennes du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  pour les différentes bases de données, ce pour deux plages en énergie. L'écart-type relatif, calculé comme étant l'écart-type divisé par la moyenne, est également mentionné.

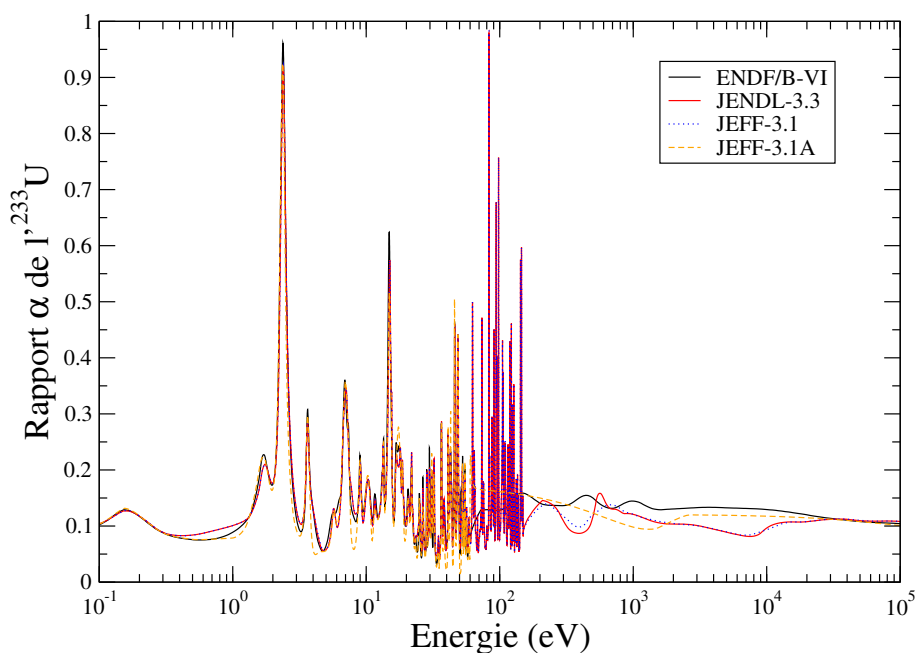


FIG. 2.8 – Comparaison entre les différentes bases de données disponibles du rapport  $\alpha$  de  $1^{233}\text{U}$ .

### L'évaluation JEFF-3.1

Cette évaluation prend pour données de base les évaluations de JENDL-3.3 et de ENDF/B-VI. Ceci explique la ressemblance entre ces évaluations sur la figure 2.8.

### L'évaluation ENDF/B

Les évaluations s'appuient sur les mesures de la section efficace de fission et de capture de  $1^{233}\text{U}$ . En ce qui concerne la fission, l'évaluation ENDF/B-VII s'appuie sur plus de quarante jeux de données. Malheureusement ils ne sont pas encore accessibles.

Quant à la capture, très peu de mesures expérimentales sont prises en compte, même pour l'évaluation la plus récente (ENDF/B-VII.b1). Seules les quatre mesures suivantes ont été prises comme référence : les trois mesures différentielles du rapport  $\alpha$  de Weston et al. (1968 [WES68])<sup>3</sup>, de Brooks et al. (1966 [BRO66235bis]) et d'Hopkins et al. (1962 [HOP61]), ainsi que la mesure intégrale de la section efficace de capture par Cabell et al. (1971 [CAB71]). L'incertitude sur la section efficace de capture reste donc très forte. Les mesures différentielles sont complémentaires puisque les plages en énergie de chacune ne se recouvrent pas. A partir de 60 eV, l'évaluation utilise un modèle dans lequel les résonances ne sont plus résolues. Plus l'énergie est importante, plus les résonances sont serrées. De plus, plus l'énergie est élevée, plus l'erreur absolue sur la mesure de l'énergie est élevée. Ainsi, résoudre les résonances à plus haute énergie (entre 100 eV et 10 keV) nécessiterait des mesures en énergie très précises.

<sup>3</sup>Seules les données inférieures à 30 eV ont été validées et sont par conséquent utilisées.

Plage en énergie (eV)	Wagem [WAG88]	Deruy [DER74]	Weston [WES]	Blons [BLO73]	JEFF-31	JENDL-3	ENDF6	JEF-2
0.021 ; 0.031	525.6	526.7	526.8	-	526.5	528.8	523.9	520.6
0.031 ; 0.082	362.9	363.5	363.9	-	361.7	363.9	361.9	359.7
0.082 ; 1.000	151.3	150.9	150.6	-	150.1	149.4	149.0	148.6
1.000 ; 2.100	388.8	387.7	391.7	-	387.9	383.0	378.9	382.1
2.100 ; 2.750	204.4	204.6	207.5	-	204.6	205.9	198.1	198.8
2.750 ; 3.000	50.1	53.4	51.9	-	50.2	52.9	50.6	50.8
3.000 ; 15.00	106.2	105.6	104.9	-	104.3	103.6	101.2	101.5
0.021 ; 15.00	134.2	133.5	133.5	-	132.5	131.7	129.1	129.5
15.00 ; 30.00	-	-	95.03	94.60	95.51	96.49	91.80	92.69
30.00 ; 50.00	-	-	40.13	40.30	40.27	40.19	38.85	39.16
50.00 ; 75.00	-	-	40.66	40.49	40.53	40.79	35.80	39.90
75.00 ; 100.0	-	-	35.57	36.70	36.03	36.58	33.36	32.74
100.0 ; 125.0	-	-	36.84	36.89	36.97	31.78	29.94	28.94
125.0 ; 150.0	-	-	21.29	20.29	20.78	16.30	22.10	26.25
15.00 ; 150.0	-	-	41.39	41.48	41.45	39.91	38.49	40.05
0.5 eV ; 150 eV	-	-	-	-	710.34	710.53	691.08	697.18
150 eV ; 20 MeV	-	-	-	-	-	64.25	63.34	65.29
0.5 eV ; 20 MeV	-	-	-	-	-	774.79	129.5	762.47

TAB. 2.6 – Comparaison de la section efficace moyenne de fission de  $^{233}\text{U}$ , pour différentes expériences et pour les différentes bases d'évaluation [23].

Dans cette évaluation, l'intégrale des sections efficaces de capture et de fission dans la zone des résonances sont respectivement de 776.64 et 139.66 barns. Ceci donne un rapport  $\alpha$  égal à 0.180. Aucune valeur de l'erreur n'est encore accessible. Nous ne connaissons que les données de l'évaluation précédente ENDF/B-VI :  $760 \pm 17$  barns (soit 2.2 %) pour la fission et  $137 \pm 6$  barns (soit 4.4 %) pour la capture.

La figure 2.9 représente la différence entre l'ancienne évaluation ENDF/B du rapport  $\alpha$  et la plus récente sur une plage en énergie de [0.001 eV ; 600 eV]. Nous pouvons déjà remarquer des différences non négligeables. Par exemple, nous remarquons une différence d'un facteur 2 pour la plage en énergie comprise entre 75 eV et 100 eV. C'est la section efficace de capture qui a été revue à la hausse.

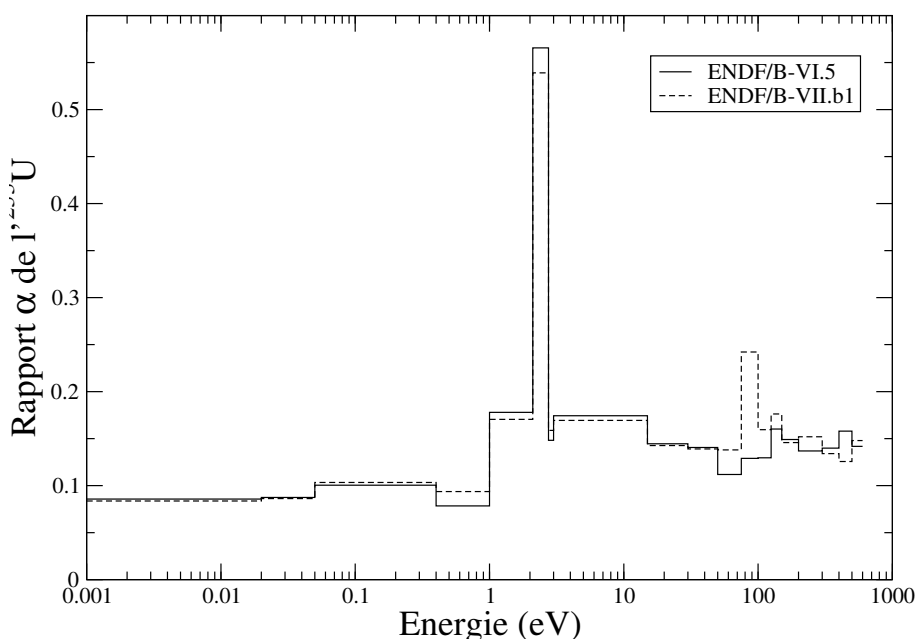


FIG. 2.9 – Comparaison entre la librairie ENDF/B-VI.5 (2001) et sa nouvelle version ENDF/B-VII.b1 (2006), pour le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ .

### Comparaison entre les différentes évaluations

Les évaluateurs ont comparé les différentes évaluations de capture et de fission de l' $^{233}\text{U}$  pour différentes plages en énergie (cf tableaux 2.7 et 2.6). Les données expérimentales de Weston et al. sont citées par les évaluateurs et sont indiquées dans ces tableaux. Nous les avons comparées avec les valeurs expérimentales d'EXFOR et celles provenant directement des publications de Weston et al. Les données précisées par les évaluateurs et les données indiquées sous EXFOR ne coïncident pas. En effet, les données expérimentales de Weston ont été corrigées a posteriori. Les valeurs mesurées ont été augmentées lors d'une correction du bruit de fond suite à l'évaluation de Reynolds et al. [REY73].

Plage en énergie (eV)	Weston	JEFF-31	JENDL-3	ENDF6	JEF-2
0.021 ; 0.031	45.17	44.90	44.82	45.40	45.54
0.031 ; 0.082	32.51	32.57	32.45	32.58	32.68
0.082 ; 1.000	14.06	14.44	13.99	13.24	13.13
1.000 ; 2.100	66.83	66.54	70.54	67.46	67.31
2.100 ; 2.750	111.83	110.67	106.25	112.04	110.80
2.750 ; 3.000	7.50	8.25	8.85	7.53	5.74
3.000 ; 15.00	17.43	17.61	19.51	17.66	17.02
0.021 ; 15.00	24.85	24.97	26.57	24.22	24.43
15.00 ; 30.00	13.25	13.97	11.92	13.27	12.67
30.00 ; 50.00	5.21	5.81	4.85	5.47	5.00
50.00 ; 75.00	4.91	5.38	4.42	3.80	5.25
75.00 ; 100.0	8.71	9.07	5.39	4.30	5.33
100.0 ; 125.0	5.37	6.01	3.55	3.88	4.63
125.0 ; 150.0	3.38	3.78	2.12	3.54	4.12
15.00 ; 150.0	6.39	6.90	4.91	5.16	5.73
0.5 eV ; 150 eV	-	131.92	131.77	128.79	127.51
150 eV ; 20 MeV	-	-	6.65	7.58	7.24
0.5 eV ; 20 MeV	-	-	138.42	136.37	134.75

TAB. 2.7 – Comparaison de la section efficace moyenne de capture de l' $^{233}\text{U}$ , pour l'expérience de Weston et pour les différentes bases d'évaluation.

### Evaluations des incertitudes

La figure 2.10 indique les incertitudes pour les sections efficaces de fission et de capture de l' $^{233}\text{U}$ , pour la base de données JENDL-3.3. Sur la plage en énergie de notre mesure [1 eV ; 10 keV], les incertitudes ne sont mentionnées qu'à partir de 100 eV et sont de l'ordre de 5 % pour les deux sections efficaces. Des résultats préliminaires des incertitudes de la section efficace de capture pour l'évaluation ENDF/B-VII sont représentés sur la figure 2.11. L'incertitude sur la capture est de 1 % sur la plage en énergie de notre mesure.

La référence [KAW99] nous donne une estimation supplémentaire des incertitudes. Pour la section efficace de capture, elles sont comprises entre 1.8 % et 5.5 %. Pour la section efficace de fission, elles varient entre 0.4 % et 4.6 %. Enfin, Palmiotti et al. [31] cite une incertitude sur le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  de 10 %.



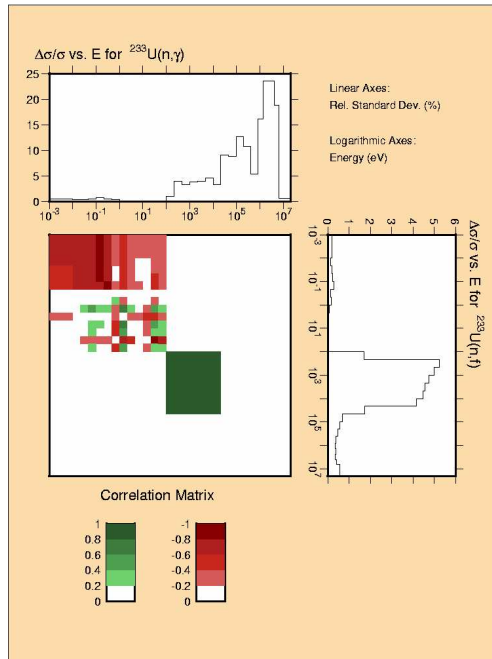


FIG. 2.10 – Incertitude et corrélations des sections efficaces de fission et de capture de  $^{233}\text{U}$  disponible dans JENDL3.3.

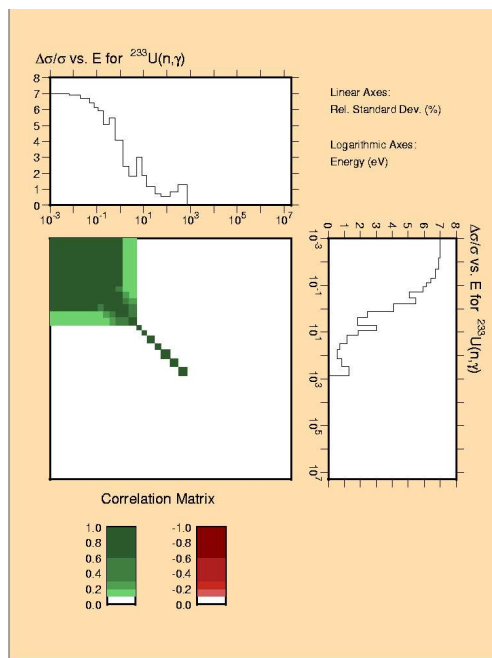


FIG. 2.11 – Incertitude et corrélations des sections efficaces de fission et de capture de  $^{233}\text{U}$  disponible dans ENDF/B-VII. Les résultats sont préliminaires.

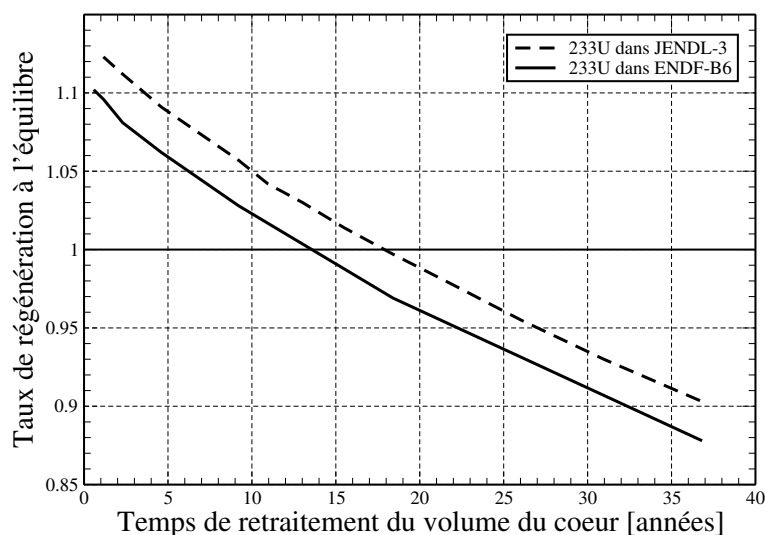


FIG. 2.12 – Comparaison des taux de régénération à l'équilibre en fonction du temps de retraitement du volume du coeur, en fonction de l'évaluation utilisé pour l' $^{233}\text{U}$ .

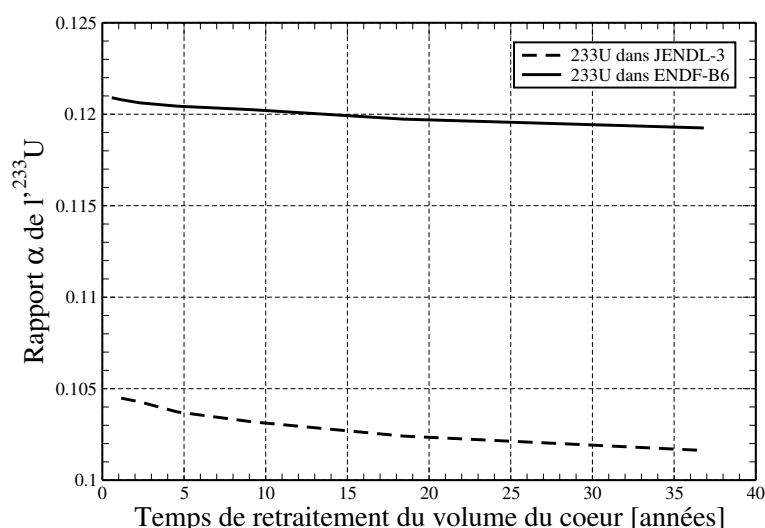


FIG. 2.13 – Comparaison du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  en fonction du temps de retraitement du volume du coeur, et en fonction de l'évaluation utilisé pour l' $^{233}\text{U}$ .

### 2.3.4.3 Influence des différentes évaluations dans les simulations

Le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est une donnée cruciale pour le calcul de la régénération des réacteurs basés sur la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . En effet, le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est la contribution majoritaire de l'incertitude sur la régénération à l'équilibre. Elle représente plus des trois quarts de l'incertitude, le chiffre précis étant fonction du spectre en énergie des neutrons. Or, les incertitudes actuelles sur la régénération sont de l'ordre de grandeur des marges que l'on peut obtenir en changeant la stratégie de retraitement ou en doublant sa vitesse. Il est donc indispensable de mesurer à nouveau ce rapport afin d'affiner les

résultats de simulation.

Pour quantifier l'influence du choix de l'évaluation pour l' $^{233}\text{U}$ , des simulations de réacteurs à sels fondus ont été effectuées. Elles utilisent soit l'évaluation ENDF/B-VI, soit JENDL-3. pour les données concernant l' $^{233}\text{U}$ . Les figures 2.12 et 2.13 montrent le taux de régénération, ainsi que le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , en fonction du temps de retraitement pour les deux évaluations de l' $^{233}\text{U}$  choisies. Dans le cas d'un réacteur régénérateur, le temps de retraitement varie de 30 % selon l'évaluation choisie. Dans ce cas, le rapport  $\alpha$  est égal à 0.120 pour ENDF/B-VI et à 0.102 pour JENDL-3, soit une variation de 15 %. Si nous souhaitons un taux de régénération égal à 1.05, alors le temps de retraitement (ou la taille de l'unité de retraitement) varie de 60 % d'une évaluation à l'autre, tandis que le rapport  $\alpha$  varie de 15 %. De plus, une variation très faible du rapport  $\alpha$ , issue d'un changement du spectre en énergie des neutrons, modifie nettement le temps de retraitement du coeur.

De plus, un travail de thèse [33] portant sur des analyses de sensibilités et d'incertitude de données nucléaires, a permis de mieux définir les besoins de nouvelles données, tout particulièrement pour le concept de réacteurs à sels fondus. Il a montré que la section efficace de capture de l' $^{233}\text{U}$  n'intervient que sous la forme du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  c'est-à-dire qu'il n'est pas nécessaire de connaître les sections efficaces de façon absolue. Ces résultats ont été confirmés par la suite [32]. Il a été montré que le gain de régénération est très sensible au nombre moyen  $\bar{\nu}$  de neutrons émis par fission. Ce terme est connu avec une excellente précision. Le deuxième terme auquel le gain de régénération est sensible est le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ . La sensibilité du gain de régénération à l'équilibre à la variation de la section efficace de capture de l' $^{233}\text{U}$  (resp. de fission) est de  $-0.128 \frac{\%}{\%}$  (resp.  $+0.141 \frac{\%}{\%}$ ). Il est donc nécessaire de connaître le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  avec une précision excellente pour les calculs de simulation.

### 2.3.5 Conclusions sur les données actuelles disponibles

Effectuer une nouvelle mesure permettrait à la fois de simuler avec plus de précision les réacteurs basés sur la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  et de contraindre l'évaluation sur la capture qui ne prend actuellement que quatre mesures de référence. Cela aura pour effet principal de diminuer les incertitudes systématiques qui pourraient alors être mieux comprises lors de ces nouvelles mesures.

Pour les données expérimentales du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , nous avons répertorié seulement les mesures du rapport  $\alpha$  lui-même et non pas les mesures de la section efficace de fission et celles de capture, bien que ces dernières passent généralement par la mesure du rapport  $\alpha$ . Pour l' $^{235}\text{U}$ , nous décomposons un ensemble de 229 mesures pour la section efficace de fission et de 15 mesures pour la section efficace de capture. Pour l' $^{233}\text{U}$ , nous dénombrons seulement 77 mesures pour la section efficace de fission et 6 mesures pour section efficace de capture. Les évaluateurs ont donc accès à environ trois fois moins de mesures pour l' $^{233}\text{U}$  que pour l' $^{235}\text{U}$ . De plus, les données sur l' $^{235}\text{U}$  sont beaucoup

plus complètes, par exemple en ce qui concerne les informations sur l'incertitude des données.

Bien que la précision du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  mérite encore d'être affinée pour améliorer les simulations, nous utiliserons cette donnée comme référence afin de comprendre et quantifier les caractéristiques de notre dispositif expérimental. Cela est justifié par les arguments suivants.  $^{235}\text{U}$  ayant une période 4 400 fois plus grande que celle de  $^{233}\text{U}$ , la mesure de la section efficace de fission s'avérera plus aisée. En effet, le bruit de fond attendu, provenant des particules  $\alpha$  de la radioactivité naturel de l'uranium, sera plus faible. En outre, le rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  est de l'ordre de 0.4 contre 0.12 pour  $^{233}\text{U}$ . La mesure de la capture s'avère plus facile.

Notre analyse est a fortiori dépendante de l'évaluation du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ . Par conséquent, une réévaluation du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ , devra être prise en compte dans nos résultats. De plus, notre mesure n'étant pas absolue, nous cumulerons les erreurs systématiques. Nous ne pourrions pas obtenir une précision inférieure à celle de l'évaluation du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ .

La section "données nucléaires" de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) coordonne un projet de recherche intitulé : "Evaluations des données nucléaires pour le cycle de combustible Thorium-Uranium" [34]. En août 1999, l'AIEA a émis des recommandations quant à la précision nécessaire sur certaines sections efficaces pour l'étude des réacteurs de quatrième génération. Elle a ainsi spécifié que la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$  doit être connue à 1 % près et celle de capture à 3 % près. Lors de la dernière réunion de collaboration, ayant lieu du 30 janvier au 2 février 2006, une préférence a été exprimée en faveur du fichier évalué ENDF/B-VII [30]. Ces nouvelles données évaluées avec l'estimation des incertitudes n'est pas encore accessible sur la base NNDC (National Nuclear Data Center [23]). Une demande spécifique concernant la ré-évaluation du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  et de son incertitude a été écrite en 2007 [33].

Pour conclure, fort de la constatation du besoin d'améliorer la précision du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$ , nous avons décidé d'effectuer cette mesure de façon différentielle et directe.

Afin de pouvoir effectuer une mesure différentielle, c'est-à-dire en fonction de l'énergie du neutron incident, nous utilisons la plate-forme PEREN. Cette plateforme expérimentale, composée d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb couplé à une source de neutrons pulsée, sera décrite au chapitre 3. Nous y expliquerons comment il est possible de faire un lien entre le temps de ralentissement des neutrons dans le bloc de plomb et l'énergie du neutron incident.

De plus, nous avons choisi d'effectuer une mesure directe du taux de réaction de capture et de celui de fission. Dans le chapitre 4, nous détaillerons le dispositif expérimental choisi pour mesurer à la fois la section efficace de fission et celle de capture du rapport  $\alpha$ .



# Chapitre 3

## Description de la plateforme PEREN

Les mesures réalisées dans le cadre de cette thèse ont lieu sur la plateforme PEREN (Plateforme d'Etudes et Recherche pour l'Energie Nucléaire) située au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie de Grenoble. C'est grâce à cet environnement expérimental que nous espérons réaliser une mesure différentielle du rapport  $\alpha$ , c'est-à-dire en fonction de l'énergie du neutron incident.

Cette plateforme expérimentale est composée d'un générateur de neutrons pulsé développé au LPSC, nommé GENEPI 2 (Générateur de Neutrons Pulsé Intense) et associé à divers massifs ralentisseurs pour la diffusion des neutrons (plomb, graphite, téflon, lithium). Cette plateforme s'inscrit dans le cadre d'un programme de validation de données nucléaires manquantes ou qui n'ont pas la précision nécessaire pour l'étude des réacteurs à sels fondus. Elle a déjà été utilisée dans le cadre de deux thèses au sein du LPSC pour la mesure de sections efficaces de capture de matériaux présents dans les coeurs de réacteurs (Th, U, Tc) ou présents dans les structures de réacteurs nucléaires (W, Mo, Ni, Mn) [35], et la mesure de sections efficaces de diffusion élastique (C, F) [36].

Toutes les mesures de sections efficaces effectuées sur cette plateforme sont basées sur un même principe : la thermalisation des neutrons à l'intérieur d'un massif ralentisseur.

Un modèle théorique développé au paragraphe 3.1 montre qu'il est possible de faire un lien entre l'énergie moyenne des neutrons et leur temps de ralentissement (temps moyen de diffusion) si les neutrons se ralentissent dans un milieu peu absorbant, et de section efficace de diffusion élastique constante correspondant à la contribution majoritaire de la section efficace totale. La relation s'écrit alors :

$$E \sim \frac{K}{t^2} \quad (3.1)$$

avec  $K$ , caractéristique du milieu ralentisseur par l'intermédiaire, entre autres, de sa section efficace de diffusion élastique.

Mesurer le temps de ralentissement du neutron lorsqu'il interagit permet alors de remonter à l'énergie incidente du neutron grâce à la relation 3.1. Il est donc indispensable de connaître l'instant de création du neutron. C'est pour cela que nous utilisons la source de neutrons pulsée construite au LPSC : GENEPI 2. Des neutrons ayant une énergie initiale donnée sont créés quasiment au centre

d'un massif ralentisseur, dont la taille a été optimisée afin d'avoir le moins de fuites de neutrons possibles pour une quantité de matière minimale.

Avec un tel système, deux types de mesures sont possibles :

– Mesure de sections efficaces de diffusion élastique :

La mesure précise des caractéristiques du massif ralentisseur nous permet d'en déduire la section efficace de diffusion de ce milieu. Le choix du bloc ralentisseur est donc déterminé par l'élément dont on veut mesurer la section efficace.

Un système de détection de photons gamma (scintillateur et photomultiplicateur associé) est disposé à l'intérieur du massif. Une cible mince d'un élément ayant une résonance de la réaction de capture neutronique intense, isolée et dont l'énergie est connue avec grande précision, est placée devant le scintillateur. Au temps relatif à l'impulsion de neutrons correspondant à l'énergie de la résonance, une grande quantité de photons gamma sera alors émise par capture des neutrons sur la cible et donc détectée. C'est la détermination précise de ce temps de résonance, pour plusieurs cibles minces connues, qui permettra de remonter aux caractéristiques du milieu ralentisseur et donc à la section efficace de diffusion élastique du bloc ralentisseur.

Une thèse précédente [36] a ainsi permis de déterminer la section efficace du carbone puis du fluor grâce à deux massifs ralentisseurs : le premier en graphite, le deuxième en téflon (CF<sub>2</sub>). Toute une méthodologie a été mise en place pour remonter à la section efficace de diffusion des éléments composant le massif ralentisseur. A terme, un massif comportant du fluorure de lithium 7 permettra de mesurer la section efficace de diffusion élastique du <sup>7</sup>Li.

– Mesure de section efficace de capture et/ou de fission :

Contrairement aux mesures précédentes, la mesure s'effectue dans un massif ralentisseur dont la relation énergie-temps est très bien connue. Dans la plateforme PEREN, il s'agit plus particulièrement d'un bloc de plomb ultra-pur qui a déjà été caractérisé lors d'une thèse précédente [35]. Nous pourrons alors effectuer une mesure des sections efficaces de capture et/ou de fission, en fonction du temps d'interaction et donc de l'énergie du neutron incident, grâce à des détecteurs adaptés. C'est dans ce cadre que s'inscrit mon travail de thèse.

Des travaux portant sur la mesure de la section efficace de capture d'éléments non fissiles ont déjà été effectués [35]. Cependant, c'est la première fois que nous nous proposons de mesurer la fission et la capture d'éléments fissiles (<sup>235</sup>U et <sup>233</sup>U) dans un tel dispositif expérimental.

### 3.1 Physique du spectromètre à temps de ralentissement : relation Energie - Temps

En 1944, E.L. Feinberg lors d'un séminaire à l'académie des sciences russe a exposé qu'en se ralentissant sous l'effet des chocs élastiques dans un milieu de nombre de masse  $A$  très grand, les neutrons se groupent suivant une gamme de vitesse peu étendue. Une relation existe alors entre l'énergie et le temps de ralentissement des neutrons. Nous nous proposons dans ce paragraphe de l'établir.

La diffusion élastique d'un neutron d'énergie inférieure à quelques MeV est décrite par la mécanique classique. Nous pouvons donc calculer l'énergie  $E$  du neutron après un choc sur un noyau de nombre de masse  $A$  en fonction de son énergie initiale  $E_{(0)}$  et de l'angle  $\theta$  (déviation du neutron dans le repère du centre de masse). En effet, si on écrit la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, on obtient au final :

$$E = E_{(0)} \left( \frac{A^2 + 1}{(A + 1)^2} + \frac{2A}{(A + 1)^2} \cos \theta \right) \quad (3.2)$$

Si on pose  $\eta = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$ , on a alors :

$$E = \frac{E_{(0)}}{2} (1 + \eta + (1 - \eta) \cos \theta) \quad (3.3)$$

L'énergie moyenne après un choc sera donc égale à :

$$\bar{E}_{(1)} = \frac{E_{(0)}}{2} (1 + \eta) \quad (3.4)$$

On en déduit facilement l'énergie moyenne du neutron après  $n$  chocs<sup>1</sup> :

$$\bar{E}_{(n)} = E_{(0)} \left( \frac{1 + \eta}{2} \right)^n \quad (3.5)$$

Afin de simplifier les expressions, on notera par la suite :

$$\bar{E} = \frac{1}{\beta^2} E_{(0)} \quad (3.6)$$

Des expressions précédentes, on tire :

$$\beta^2 = \frac{(A + 1)^2}{A^2 + 1} \quad (3.7)$$

On peut désormais exprimer la vitesse moyenne du neutron après  $n$  chocs :

---

<sup>1</sup>Attention à ne pas confondre la notation  $\bar{E}_{(n)}$ , énergie moyenne du neutron après  $n$  chocs, et la notation  $E_n$  utilisée dans tout le reste de la thèse et faisant référence à l'énergie du neutron incident.



$$\bar{v}_{(n)} = v_{(0)} \left( \frac{1}{\beta} \right)^n \quad (3.8)$$

Si on note  $N$  la densité atomique du milieu, alors la distance moyenne que parcourt le neutron entre deux diffusions<sup>2</sup> s'écrit :  $\lambda_{n, \text{élastique}}(E) = \frac{1}{N\sigma_{\text{élastique}}}$ . On en déduit alors le temps moyen pour que le neutron atteigne la vitesse  $v_{(n)}$  :

$$\bar{t} = \sum_{i=0}^{i=n-1} \bar{t}_{(i)} = \Sigma \frac{\lambda_{n, \text{élastique}}(E)}{\bar{v}_{(i)}} = \Sigma \frac{\lambda_{n, \text{élastique}}(E)}{v_{(0)}} \beta_{(i)} \quad (3.9)$$

Or, si la section efficace de diffusion du milieu ralentisseur peut être supposée au premier ordre constante sur une gamme d'énergie donnée, le libre parcours moyen  $\lambda$  sera donc constant sur cette même gamme d'énergie. Ceci entraîne :

$$\bar{t} = \frac{\lambda_{(n), \text{élastique}}(E)}{\beta - 1} \left( \frac{1}{\bar{v}} - \frac{1}{v_{(0)}} \right) \quad (3.10)$$

Avec  $\bar{v}_{(n)} = \sqrt{\frac{2\bar{E}_{(n)}}{m}}$  et  $v_{(0)} = \sqrt{\frac{2E_{(0)}}{m}}$ ,  $m$  étant la masse du neutron, on obtient alors la relation énergie-temps :

$$\boxed{E = \frac{K}{(t + t_0)^2}} \quad (3.11)$$

où  $K$  et  $t_0$  sont des paramètres caractéristiques du milieu ralentisseur. En effet, ils s'écrivent :

$$\boxed{K = \frac{\lambda^2 m}{2(\beta - 1)^2}} \quad (3.12)$$

et

$$\boxed{t_0 = \sqrt{\frac{m}{2E_{(0)}}} \frac{\lambda}{\beta - 1}} \quad (3.13)$$

On note que  $K$  ne dépend que du milieu ralentisseur, tandis que  $t_0$  dépend à la fois du milieu ralentisseur et de l'énergie incidente du neutron. La présence du terme  $t_0$  prend en compte le fait que cette énergie ne peut pas tendre vers l'infini quand  $t$  tend vers zéro.

### 3.1.1 Application au massif de Plomb

Les hypothèses du calcul de Feinberg sont bien vérifiées pour le plomb. Elles sont au nombre de trois : section efficace de diffusion élastique constante et correspondant à la contribution majoritaire de la section efficace totale et milieu peu absorbant. Nous remarquons sur la figure 3.1 du haut que, en dessous de 600 keV (seuil de la diffusion inélastique du neutron dans le plomb), la section efficace de diffusion du plomb peut être supposée au premier ordre constante sur la gamme d'énergie 0.1 eV -

<sup>2</sup>Une des hypothèses du calcul de Feinberg est que la section efficace de diffusion élastique est un processus dominant par rapport aux autres. Ainsi,  $\sigma_{\text{tot}} = \sigma_{\text{élastique}}$  en première approximation.

100 keV. Elle a pour valeur moyenne 11.1 barns. De plus, si nous traçons le rapport de la section efficace de diffusion élastique sur la section efficace totale (cf figure 3.1 du bas), nous remarquons qu'il est compris entre 0.9 et 1. La section efficace de diffusion élastique correspond donc bien à la contribution majoritaire de la section efficace totale. Enfin, le plomb est un matériau peu capturant comme le montre la figure 3.2.

Nous pouvons connaître la relation énergie-temps du bloc de plomb en traçant la distribution des neutrons en fonction de l'énergie cinétique et du temps de ralentissement des neutrons, à l'endroit des mesures dans le bloc de plomb. La figure 3.3 représente une simulation numérique de cette distribution. Celle-ci est bornée par un maximum en énergie de 14 MeV, équivalent à un minimum en temps de  $10^{-2} \mu s$ . Cette limitation correspond aux neutrons provenant directement de la source de neutrons et traversant le plomb jusqu'aux détecteurs sans interagir auparavant. Lorsque les neutrons commencent à interagir, ils ont une énergie importante. Les interactions possibles sont la diffusion élastique, la diffusion inélastique et la réaction (n, 2n). Ces deux dernières induisent un élargissement de la distribution puisque le neutron perd beaucoup d'énergie lors de telles réactions. Lorsque les neutrons ont une énergie en deçà du seuil de diffusion inélastique, la distribution se resserre : les neutrons n'interagissent plus que par diffusion élastique. On atteint la plage en énergie où la relation énergie-temps décrite ci-dessus est valable.

Avec  $\rho_{Pb} = 11.34 \text{ g/cm}^3$  et  $A_{Pb} = 207.2 \text{ g/mol}$ , il vient  $\lambda_{total} = \lambda_{n, \text{élastique}} = 2.73 \text{ cm}$ . On peut alors donner les valeurs théoriques de  $K$  et  $t_0$  pour le plomb naturel :

$$K = 166\,400 \text{ eV} \cdot \mu s^2 \quad (3.14)$$

$$t_0 = 0.11 \mu s \quad (3.15)$$

Ces paramètres ont été déterminés expérimentalement [35] :

$$\boxed{K = (168\,000 \pm 3\,000) \text{ eV} \cdot \mu s^2} \quad (3.16)$$

$$\boxed{t_0 = (0.53 \pm 0.1) \mu s} \quad (3.17)$$

Ce sont ces dernières valeurs qui seront utilisées dans toute la suite de notre étude.

Nous constatons un bon accord entre les valeurs théorique et expérimentale pour le facteur  $K$ . Ceci n'est pas le cas pour  $t_0$ . Nous pouvons interpréter le terme  $t_0$  dans cette relation : A partir de 14 MeV, les premiers processus physiques auxquels le neutron est confronté ne sont pas d'origine purement élastique (la section efficace élastique ne domine qu'au dessous de 600 keV, seuil de la section efficace de diffusion inélastique). Il est alors possible de considérer cette énergie de 600 keV comme

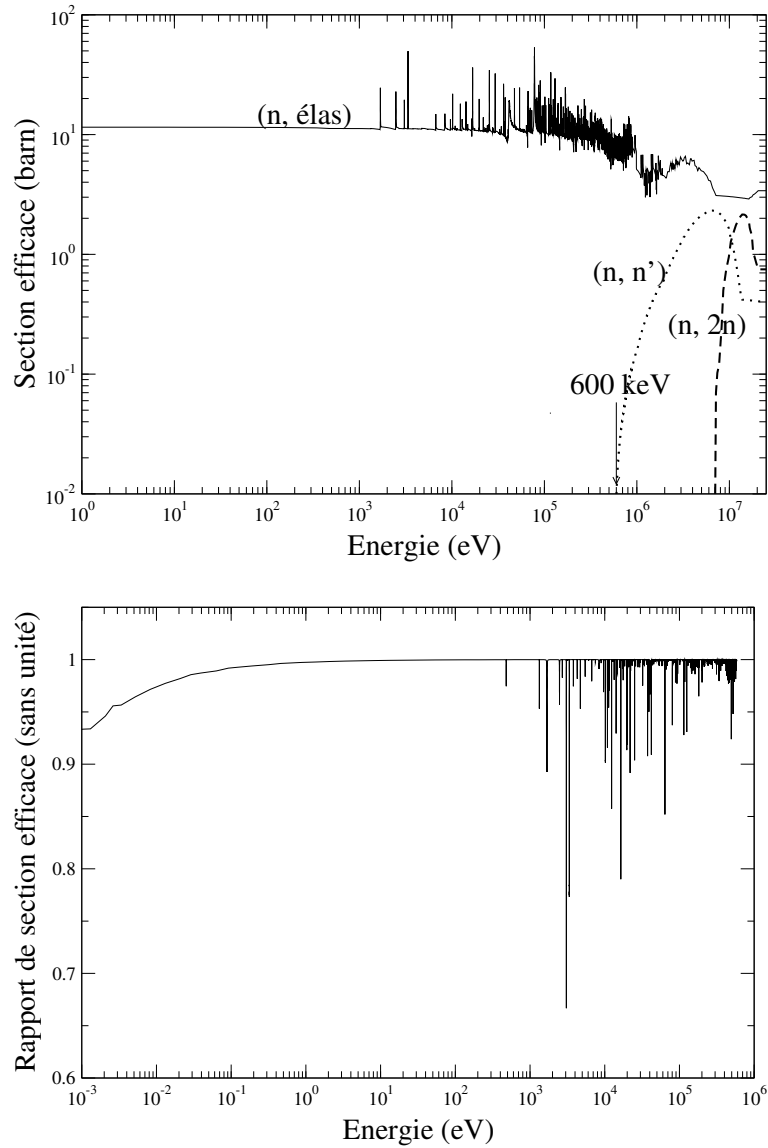


FIG. 3.1 – En haut, section efficace de diffusion élastique, inélastique et section efficace de la réaction  $(n, 2n)$  du plomb. En bas, rapport de la section efficace de diffusion élastique sur la section efficace totale du plomb.

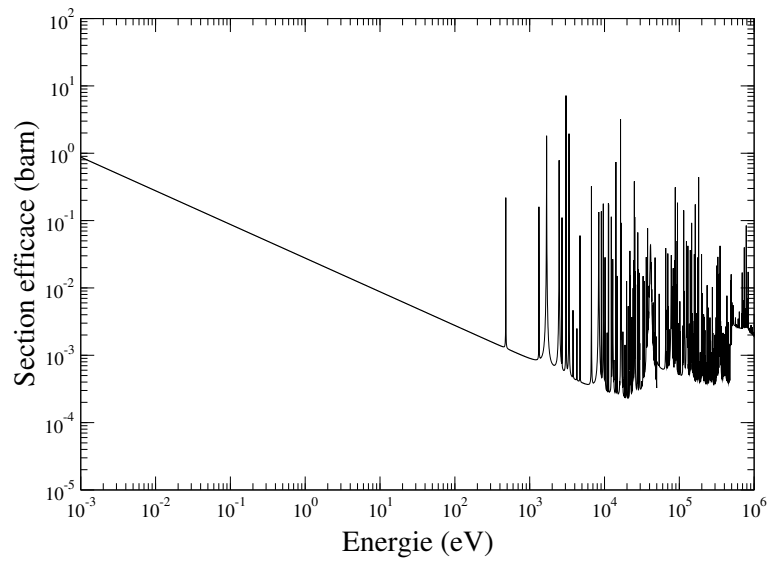


FIG. 3.2 – Section efficace de capture du plomb (évaluation JENDL-3.3).

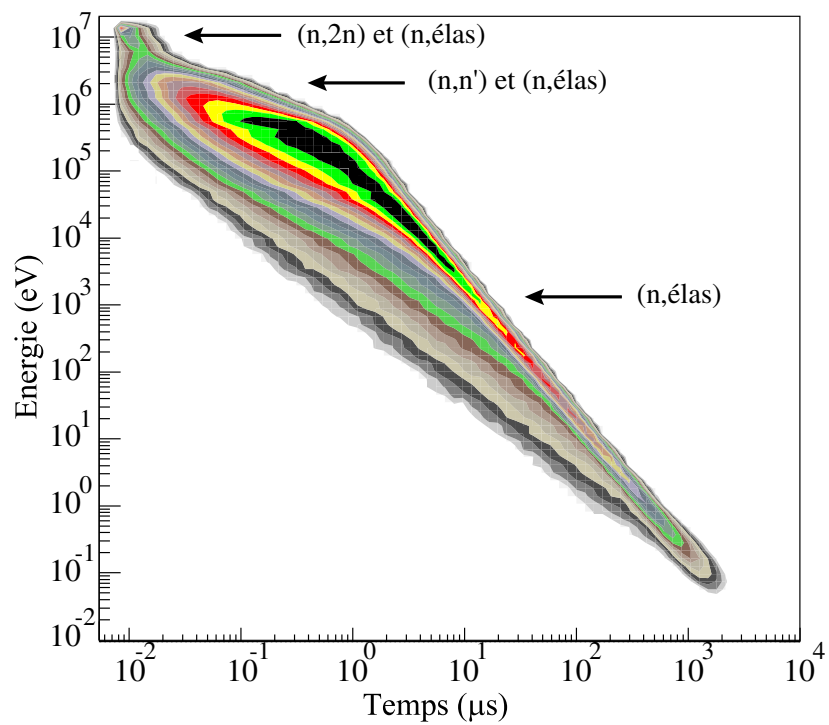


FIG. 3.3 – Corrélation Energie-Temps dans le bloc de plomb, obtenue grâce à une simulation numérique.

la “vraie” source de neutrons où ceux-ci ne subiront plus que des diffusions élastiques. On peut alors considérer  $t_0$  comme le temps nécessaire au neutron pour passer de l'énergie initiale avec laquelle il est émis au seuil des diffusions inélastiques. Ceci explique la différence entre la valeur théorique et la valeur expérimentale.

### 3.2 Le spectromètre à temps de ralentissement au plomb

Pour mesurer le rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$ , nous nous plaçons dans le bloc de plomb plutôt que dans le bloc de graphite. En effet, le ralentissement des neutrons est 10 fois plus lent qu'avec le bloc de graphite. Nous avons donc moins de contrainte de rapidité de mesure du temps. La plage en énergie de la mesure s'étend de 0.3 eV à la dizaine de keV ce qui correspond à une plage en temps allant de 4  $\mu\text{s}$  à 800  $\mu\text{s}$ .

Enfin, la résolution en énergie dans le bloc de plomb est meilleure que dans des massifs de masse atomique plus faible. Cela s'explique par le plus grand nombre de diffusions pour ralentir les neutrons.

**Résolution en énergie :** On peut montrer [35] que la résolution d'un massif ralentisseur de masse atomique  $A$  peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\frac{8}{3A}} * \sqrt{1 + \frac{3AkT}{8E}} \quad (3.18)$$

avec  $k$  constante de Boltzmann et  $T$  température du milieu.

Cette résolution augmente lorsque  $E$  diminue. De plus, plus la masse atomique du massif ralentisseur est élevée, plus la résolution diminue. Cette amélioration s'explique par l'augmentation du nombre de diffusions : plus le massif a une masse atomique élevée, plus le nombre de collisions nécessaires pour passer de l'énergie du neutron initiale à une énergie donnée va être important. Par exemple, il faut en moyenne 2 000 chocs pour amener un neutron de 14 MeV à l'énergie 0.025 eV dans le bloc de plomb, tandis qu'il faut seulement 130 collisions dans le bloc de graphite.

Pour le bloc de plomb, on a plus particulièrement :

$$\frac{\Delta E}{E} = 0.1134 * \sqrt{1 + \frac{1.96}{E}} \quad (3.19)$$

$\frac{\Delta E}{E}$  vaut 19.5 % pour  $E = 1$  eV et 27 % pour  $E = 11.3$  keV.  $\frac{\Delta E}{E}$  sera toujours supérieur à 11 % quelle que soit l'énergie du neutron incident. Par conséquent, la résolution du bloc de plomb ne nous permettra pas de résoudre les résonances des sections efficaces de capture et de fission. Nous parlerons alors d'une mesure semi-intégrale.

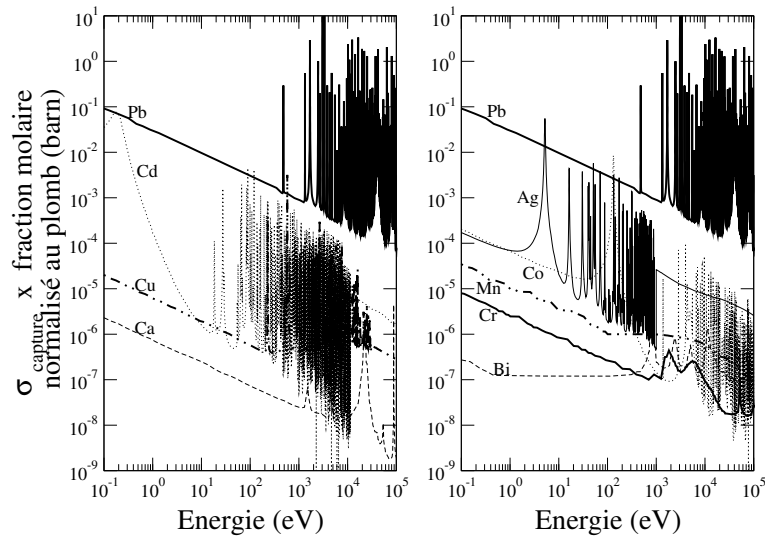


FIG. 3.4 – Sections efficaces de capture des impuretés présentes dans le bloc de plomb. Pour pouvoir les comparer, elles ont été multipliées par le rapport du nombre d’atomes de l’impureté en question par le nombre d’atomes de plomb. Pour plus de visibilité, ces sections efficaces ont été représentées sur deux graphiques.

Le bloc de plomb est formé de 8 sous-éléments cubiques, chacun de 80 cm de côté. Des canaux de mesure de 10 cm par 10 cm ont été prévus afin de placer les détecteurs dans le massif de plomb, ainsi que le doigt de gant amenant la cible de production de neutrons à une vingtaine de centimètres du centre du bloc de plomb. Les détecteurs sont placés de façon à être légèrement décalés par rapport à l’arrivée du faisceau, afin de ne pas être “éblouis” par les neutrons de 14 MeV. Tous les canaux non utilisés sont remplis de briques de plomb de  $20 * 10 * 5 \text{ cm}^3$ , de même pureté que le bloc, la présence de canaux remplis d’air pouvant modifier la relation énergie-temps.

Eléments	Fraction molaire (ppm)	Eléments	Fraction molaire (ppm)
Argent $_{47}\text{Ag}$	5.0	Calcium $_{20}\text{Ca}$	< 10.0
Bismuth $_{83}\text{Bi}$	15	Cobalt $_{27}\text{Co}$	< 10.0
Cadmium $_{48}\text{Cd}$	< 10.0	Cuivre $_{29}\text{Cu}$	< 10.0
Chrome $_{24}\text{Cr}$	< 5.0	Manganèse $_{25}\text{Mn}$	< 5.0

TAB. 3.1 – Impuretés présentes dans le bloc de plomb.

La masse totale du bloc de plomb est de 46.5 tonnes. Le plomb est pur à 99.99 %. Cependant, certaines impuretés existent et seront pénalisantes pour nos mesures. Nous étudierons plus en détail le bruit de fond induit par ces éléments. Le tableau 3.1 résume les principales impuretés. Par exemple, la section efficace de capture de l’ $^{109}\text{Ag}$  présente une résonance de 11 000 barns à 5.2 eV. Cela signifie que le bruit de fond sera localement augmenté. Le graphique 3.4 représente les sections efficaces de capture du plomb et de chacune de ces impuretés, normalisées à leur fraction molaire. Nous faisons

ce traitement afin de pouvoir comparer directement les sources de bruit de fond provenant de ce bloc de plomb. Sur ce graphique, nous remarquons que la section efficace de l'argent est bien prépondérante à 5.2 eV, par exemple.

### 3.3 Le faisceau de neutrons

Un premier générateur de neutrons, nommé GENEPI 1, a été construit au LPSC par le Service Accélérateurs. Ce générateur a été utilisé au LPSC en 1999 pour la validation de bases de données de sections efficaces grâce au spectromètre à temps de ralentissement au plomb, avant d'être transféré au CEA Cadarache. Il a été couplé au réacteur de recherche MASURCA dans le cadre du programme expérimental MUSE 4 (MUltiplication de Source Externe). Un deuxième générateur, GENEPI 2 [37], a alors été construit au LPSC sur les mêmes principes que GENEPI 1. Il a été exploité dès septembre 2003 pour poursuivre la validation de bases de données de sections efficaces.

#### 3.3.1 Description du Générateur de Neutrons Pulsé Intense

Ce générateur produit des neutrons par bombardement d'ions deutérium sur des cibles de noyaux légers (tritium ou deutérium). Le faisceau d'ions deutérium est obtenu à partir d'une source duoplasmatron qui permet de transformer une partie du gaz deutérium qui lui est injecté en ions  $D^+$  et en ions  $D_2^+$ . Les ions sont extraits de la source à une énergie de 40 keV. Puis ils sont focalisés et guidés grâce à un champ électrostatique dans un tube accélérateur, jusqu'à atteindre une énergie cinétique de 250 keV. Les ions  $D_2^+$  sont alors éliminés grâce à un aimant spectromètre de  $45^\circ$ . En effet, étant moins accélérés, les ions  $D_2^+$  arriveraient après les ions  $D^+$  sur la cible de production des neutrons. Or, comme la source est pulsée, la durée de l'impulsion des neutrons serait dégradée. Les ions  $D^+$  seulement sont ensuite focalisés et guidés jusqu'à la cible de noyaux légers.

Afin de pouvoir s'adapter aux différentes configurations expérimentales, un "doigt de gant" est utilisé. C'est un tube sous vide qui permet de transporter le faisceau sur une distance de deux à trois mètres malgré la forte répulsion coulombienne entre les ions  $D^+$ . Il permet d'amener le faisceau à l'intérieur du massif ralentisseur. La cible d'ions légers est située au bout de ce doigt de gant. Il existe deux configurations possibles choisies de façon très pragmatique : le bloc de plomb pesant 46.5 tonnes, il est hors de question de le déplacer. Il a donc été installé de façon à ce qu'un autre massif ralentisseur (graphite, téflon ou  $^7\text{LiF}$ ) puisse être intercalé entre le bloc de plomb et le faisceau. Un doigt de gant dit "long" est ainsi utilisé pour le spectromètre à temps de ralentissement en plomb, tandis qu'un doigt de gant court est nécessaire pour les autres massifs. Le schéma 3.5 montre l'ensemble du dispositif expérimental.

## GENEPI 2 – PEREN

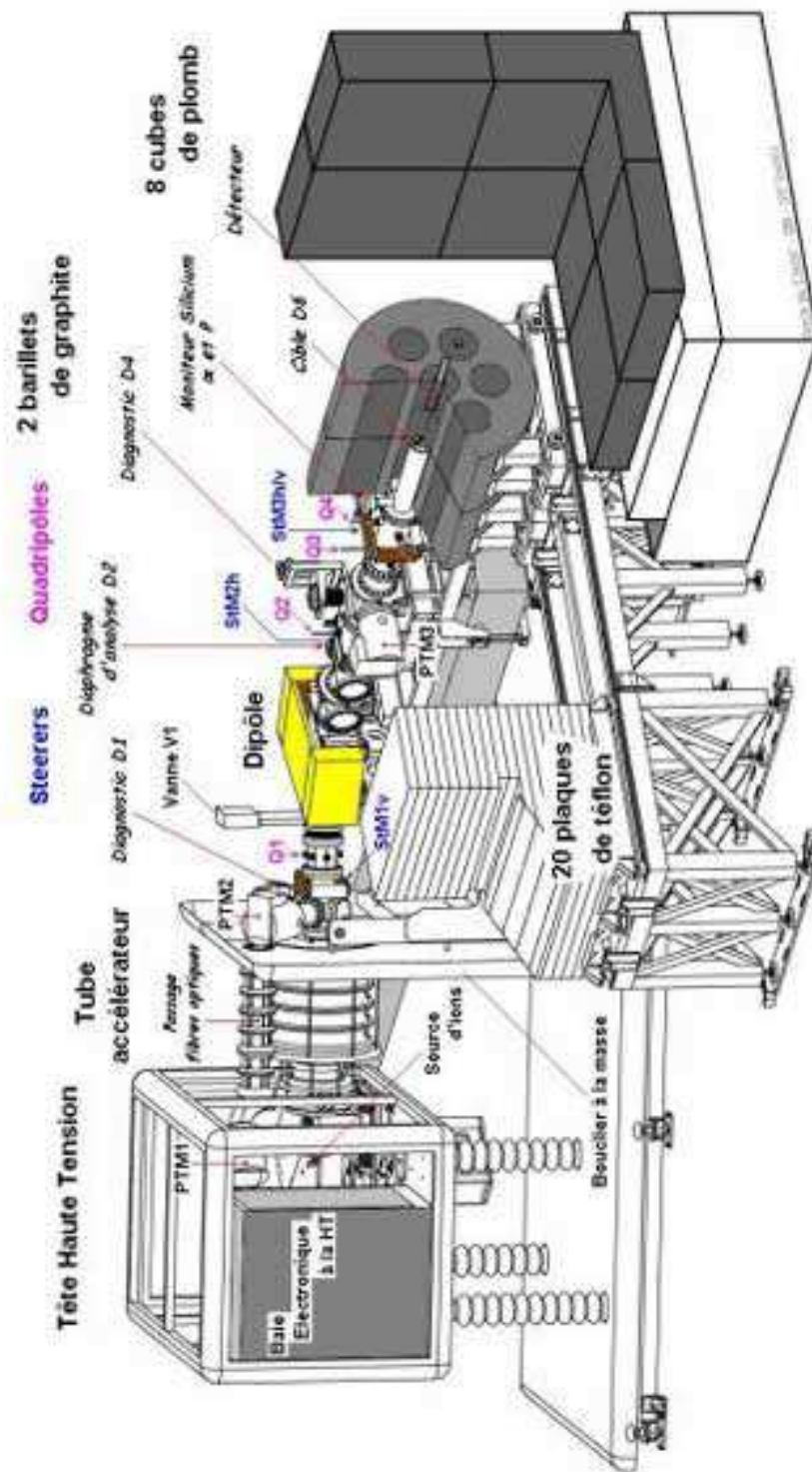


FIG. 3.5 – Schéma de l’environnement expérimental utilisé avec le faisceau GENEPI 2 et les divers massifs ralentisseurs.



La durée de l'impulsion de neutrons a une largeur d'environ une microseconde (cf figure 3.6). La fréquence des impulsions peut être imposée entre quelques Hertz et 4 kHz. Deux cibles peuvent être utilisées pour la production de neutrons : tritium ou deutérium. Les cibles sont fournies par la société SODERN. Elles sont constituées d'un support en cuivre sur lequel est déposé du titane. C'est sur ce dépôt qu'est adsorbé le tritium ou le deutérium.

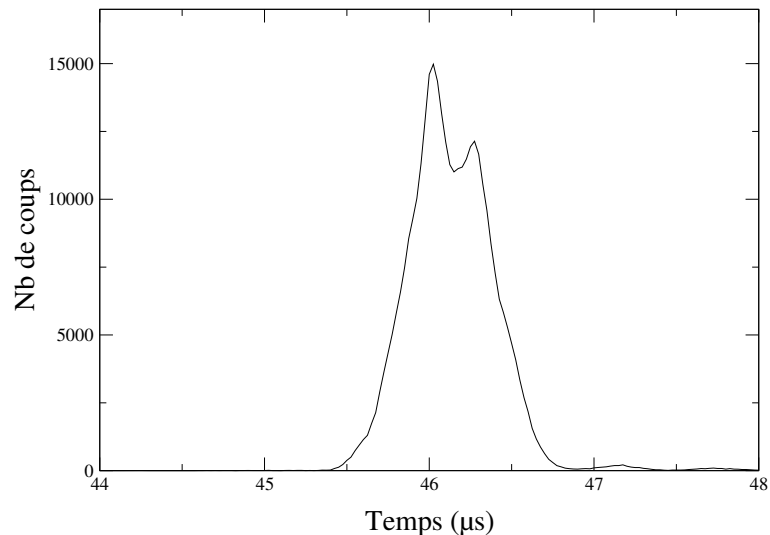


FIG. 3.6 – Distribution temporelle de l'impulsion GENEPI (fréquence 500 Hz, intensité bobine maximale)

### 3.3.1.1 Cible de tritium (TiT)

Les neutrons sont créés via la réaction :



Les neutrons ainsi créés ont une énergie de l'ordre de 14 MeV. La figure 3.7 montre la section efficace de cette réaction. Elle varie avec l'énergie des deutons incidents et est maximale pour des deutons d'énergie 125 keV. L'énergie des deutons diminue lors de leur parcours dans la cible. Par conséquent, le taux de production des neutrons varie en fonction de la profondeur de cible où a lieu la réaction 3.20. De plus, pour cette réaction, la production de neutrons est quasi-isotrope. En effet, pour une énergie moyenne de deutons de 125 keV dans la cible au moment de la réaction, la section efficace différentielle vaut 375 millibarns/sr pour des neutrons émis vers l'avant de la cible. Elle vaut 336 millibarns/sr à 180° pour des neutrons émis vers l'arrière de la cible.

Pour des raisons de statut du laboratoire qui est répertorié comme étant une ICPE (installation classée pour la protection de l'environnement) et non pas une INB (installation nucléaire de base), la cible ne peut pas dépasser une activité de 1 Ci.

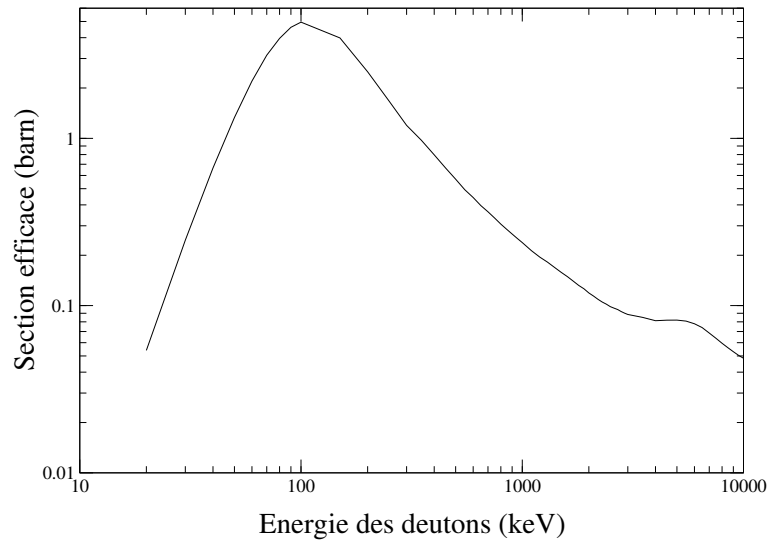


FIG. 3.7 – Section efficace de la réaction  $T(d,n)\alpha$  [38].

### 3.3.1.2 Cible de deutérium (TiD)

Deux réactions quasi-équiprobables ont lieu :



Les neutrons ainsi créés ont une énergie moyenne de 2.5 MeV. Par contre, la réaction produisant les neutrons induit une distribution spatiale des neutrons non isotrope. En effet, pour une énergie moyenne des deutons de 125 keV dans la cible au moment de la réaction, la section efficace différentielle de la réaction 3.21 vaut 3.11 millibarns/sr pour des neutrons émis vers l’avant de la cible et 2.25 millibarns/sr pour des neutrons émis vers l’arrière de la cible.

Le choix de la cible dépend de la mesure que l’on veut effectuer. Pour la mesure de rapport  $\alpha$  de  ${}^{233}\text{U}$ , il est impératif d’avoir une statistique suffisante. Or, il y a un rapport 100 entre la section efficace de production des neutrons pour la cible de tritium et celle de la cible de deutérium. C’est pourquoi nous avons choisi d’utiliser la source de tritium.

Le changement de cible demande beaucoup de manipulations (rompre le vide dans le doigt de gant, changer le doigt de gant, remettre sous vide). Plusieurs jours sont nécessaires pour ces opérations. Les changements de cibles sont donc peu fréquents. Il n’est effectué que lorsqu’une mesure dans un massif donnée est terminée.

Par la suite, une bouffée de neutrons induite par l’interaction des deutons sur la cible de tritium TiT sera appelée “burst”.

### 3.3.2 Choix de la fréquence de fonctionnement

Plusieurs paramètres sont accessibles pour adapter les caractéristiques du faisceau de neutrons à notre mesure. Tout d'abord, comme nous venons de le voir, nous pouvons choisir la cible pour une mesure donnée. Nous choisissons ainsi l'énergie des neutrons émis et le taux de comptage. Deux autres paramètres sont accessibles. Ils permettent de choisir l'intensité du faisceau. Ce sont le courant de la bobine et la fréquence des impulsions. Ces deux derniers paramètres, contrairement au choix de la cible, peuvent varier facilement entre deux prises de données. Le choix de la fréquence des impulsions GENEPI peut donc être adaptée au mieux pour la mesure.

Il existe des neutrons qui fuient du bloc de plomb et qui reviennent interagir sur les cibles d'uranium. Ces neutrons n'ont plus une relation énergie-temps valable puisqu'ils se sont thermalisés sur les éléments en béton de la salle (socle et plafond essentiellement). Or, il n'est pas possible de supprimer ces événements qui viennent se superposer à ceux du burst suivant. Plus la fréquence de fonctionnement est élevée, plus ces événements seront nombreux dans le spectre. Il vaut mieux utiliser une faible fréquence pour éviter ce bruit de fond. Par contre, plus la fréquence est faible, plus le taux de comptage le sera aussi. Il est donc préférable de ne pas utiliser une fréquence trop faible pour garder un temps de comptage raisonnable.

Lors des premières mesures avec l' $^{235}\text{U}$ , nous avons effectué une acquisition volontairement à basse fréquence (100 Hz) afin de quantifier la part de fissions provenant de ces neutrons. On en déduit que la part d'événements de fission n'ayant pas la bonne relation énergie-temps est estimée à 1.15 % si l'on fonctionne à 500 Hz et à 4.07 % si l'on fonctionne à 1 000 Hz. De plus, le taux de comptage à 100 Hz est seulement de 13.7 fissions/seconde tandis qu'il est de 70.3 fissions/seconde à 500 Hz et 148 fissions/seconde à 1 000 Hz. La fréquence des impulsions GENEPI pour notre mesure a finalement été choisie à 500 Hz, bon compromis entre limitation du bruit de fond et taux de comptage.

### 3.3.3 Mesure du flux de neutrons par un détecteur Silicium

#### 3.3.3.1 Description du détecteur

Pour pouvoir comparer des spectres d'une acquisition à l'autre, il est indispensable de les renormaliser. Or, le temps d'acquisition n'est pas une donnée suffisante puisque les conditions de faisceau (intensité, fréquence ...) varient. Il est préférable de connaître le nombre de neutrons émis au niveau de la cible de production de neutrons. Pour effectuer ainsi un monitoring absolu, un détecteur semi-conducteur Silicium est utilisé. Il est situé dans le doigt de gant en amont de la cible (cf figure 3.9 et 3.8). Ce détecteur est utilisé quelle que soit la source. Il est basé sur la détection de particules dont l'émission est corrélée à celle des neutrons. Dans le cas de la source TiT, ce sont les particules  $\alpha$  émises qui sont détectées tandis que dans le cas de la source TiD, ce sont les protons. Ces particules ont des énergies moyennes de l'ordre de 3 MeV et peuvent donc sortir de la cible TiT ou TiD. L'angle solide de détection est volontairement faible (de l'ordre de  $10^{-7}$  sr) de façon à ne pas endommager trop rapidement le détecteur et limiter les empilements.



FIG. 3.8 – Photo du dispositif expérimental. On peut distinguer le guide du faisceau GENEPI situé à droite devant le bloc de plomb, ainsi que le dispositif utilisé pour insérer le détecteur Silicium dans le doigt de gant avec le préamplificateur associé.

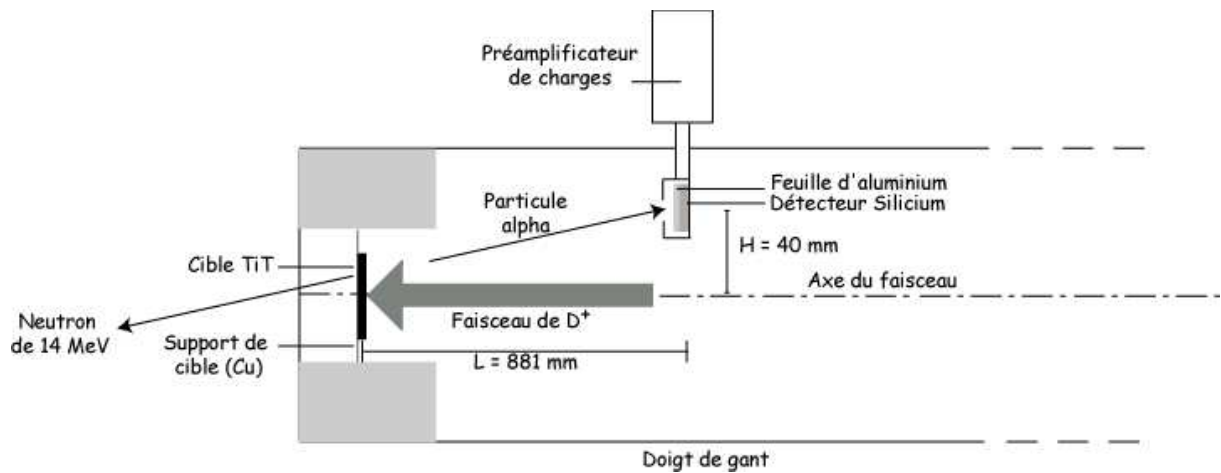


FIG. 3.9 – Schéma simplifié du monitoring grâce au détecteur semi-conducteur Silicium (échelle non respectée).

Un collimateur de 3.19 mm de diamètre est placé devant le carré de silicium de 1 cm de côté dont on peut voir une photo en figure 3.10. De plus, une feuille d'aluminium de quelques micromètres d'épaisseur est positionnée sur la face avant du détecteur Silicium. Elle permet de stopper la plupart des rayons X, produits en grande quantité lors du burst. Seules les particules  $\alpha$  ou les protons pourront être détectés.

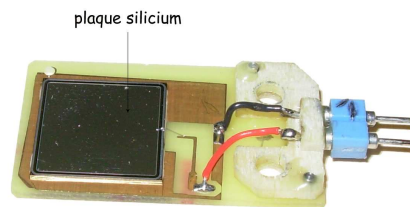


FIG. 3.10 – Photo du détecteur Silicium.

### 3.3.3.2 Spectres en énergie typiques du détecteur Silicium

Un spectre en énergie typique du détecteur Silicium obtenu avec la source TiT est représenté figure 3.11 à gauche. Cependant pour pouvoir l'interpréter, il est judicieux de tracer le spectre bidimensionnel énergie-temps (cf figure 3.12). Sur la figure du haut représentée en échelle linéaire en z, nous pouvons voir les contributions essentielles dans le détecteur. Un premier pic basse énergie apparaît pour des énergies comprises entre les canaux 0 et 200. Il correspond au bruit de fond : le seuil du discriminateur à fraction constante est réglé assez bas et laisse passer une partie de ce bruit basse énergie. Nous remarquons un pic principal pour des énergies comprises entre les canaux 600 et 1400. En échelle logarithmique (cf figure 3.12 en bas), nous voyons apparaître des contributions supplé-

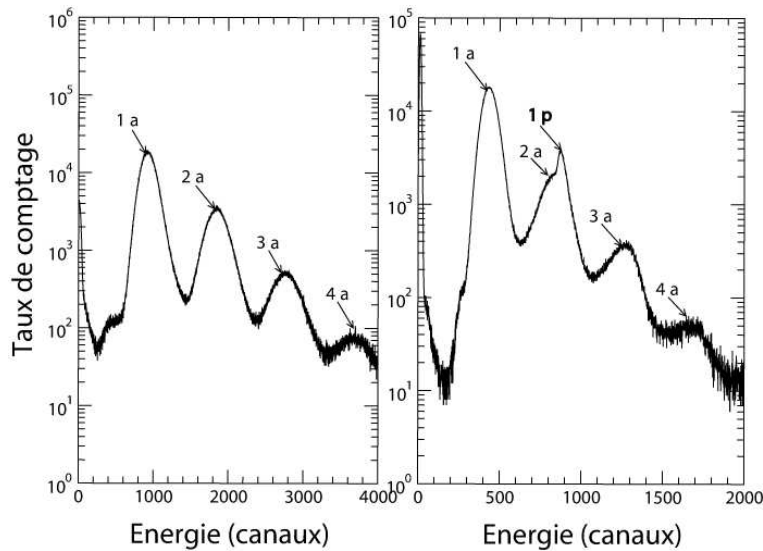


FIG. 3.11 – Exemple de spectres en énergie du détecteur Silicium dans le cas initial avec une source de TiT neuve (à gauche), et dans le cas où, après plusieurs acquisitions, du deutérium s’est implémenté dans la cible de TiT (à droite).

mentaires : situées au même temps que le pic signal principal, mais correspondant à des énergies plus élevées. Il a été montré que les pics successifs correspondent à la détection de 1 particule  $\alpha$  pour le premier pic, de 2 particules  $\alpha$  pour le second pic, etc,... ([35], page 37 et suivantes et [36], page 76 et suivantes).

### Exemple de normalisation pour la source TiT

Il est possible de déduire du spectre en énergie du détecteur silicium le nombre de neutrons émis par burst. En effet, le spectre, représenté en figure 3.11 à gauche, donne le nombre de particules comptées lors de l’acquisition. Les différents dépôts d’énergie dus au passage de plusieurs de ces particules sont visibles. Le nombre de particules  $\alpha$  qui ont effectivement été produites est calculé comme suit :

$$\text{nombre de particules } \alpha = 1 \cdot \text{intégrale du premier pic} + 2 \cdot \text{intégrale du deuxième pic} + \text{etc} \quad (3.23)$$

et :

$$\text{nombre de neutrons par burst} = \frac{\text{nombre de particules } \alpha}{\text{nombre de burst}} \cdot \frac{1}{\varepsilon} \quad (3.24)$$

avec  $\varepsilon$  l’efficacité de détection.

Il est nécessaire d’évaluer l’efficacité de détection  $\varepsilon$ . Elle est égale au produit de l’efficacité de détection intrinsèque du détecteur Silicium (prise égale à 100 %) et à l’efficacité de détection géométrique. Un calcul géométrique nous mène à :

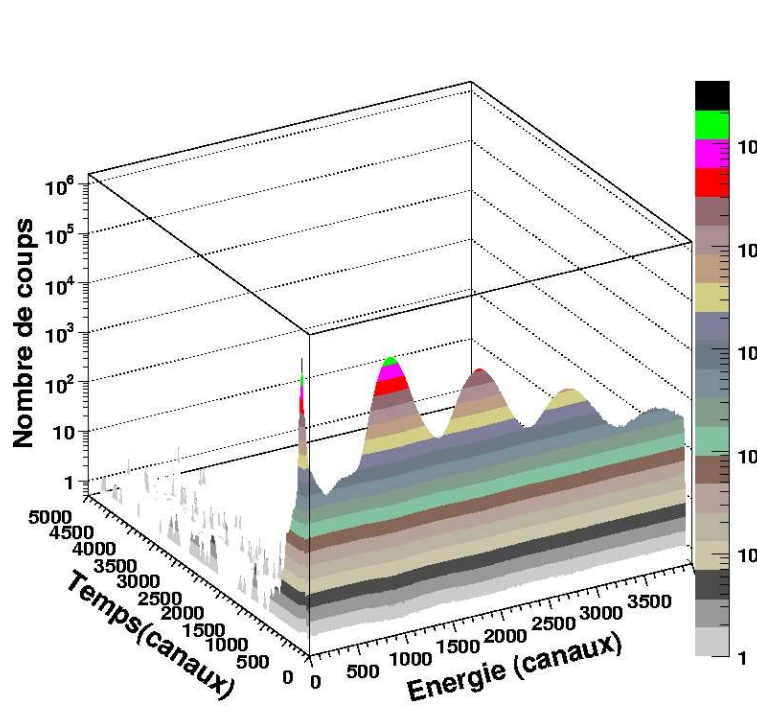
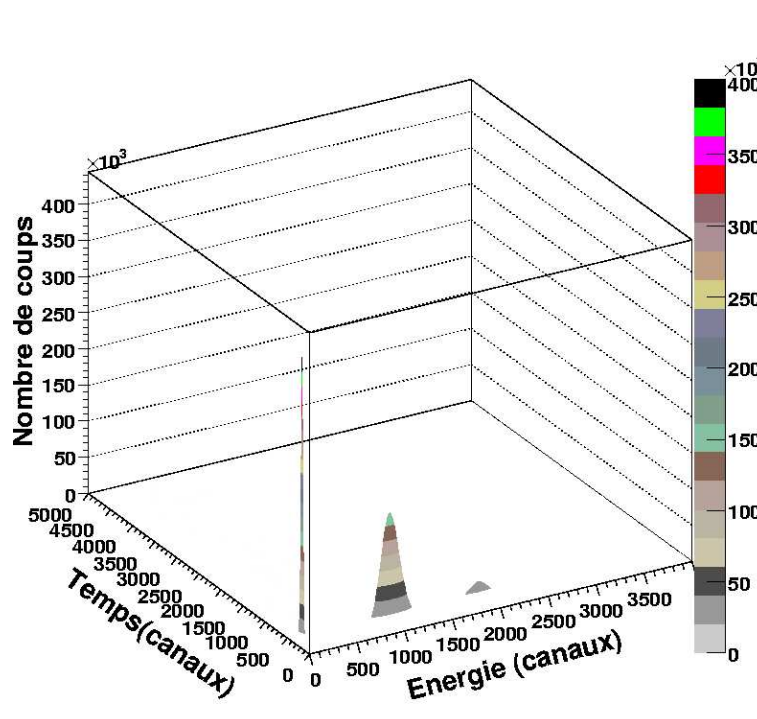


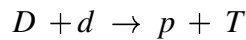
FIG. 3.12 – Signal du détecteur Silicium pour une acquisition réalisée dans le massif de plomb avec la cible TiT. La figure du haut est représentée en échelle linéaire en z, tandis que la figure du bas est représentée en échelle logarithmique en z.

$$\boxed{\varepsilon = \varepsilon_{\text{géométrique}} = 8.187 \cdot 10^{-7}} \quad (3.25)$$

L'incertitude provient de la méconnaissance sur les données de distances.

Le spectre n'est pas exactement une somme de gaussiennes dues seulement aux particules  $\alpha$ . Les effets suivants expliquent cette observation :

- Au fur et à mesure de l'acquisition, la cible se charge en deutérium. La réaction suivante se produit :



Des protons sont alors émis et sont détectés par le détecteur silicium. Cependant, comme ils perdent moins d'énergie dans la feuille en aluminium, la gaussienne correspondant au pic centré sur l'énergie d'un proton sera plus étroite. Nous pouvons distinguer cette contribution dans le deuxième pic du spectre sur la figure 3.11 à droite. Le pic correspondant à la détection simultanée de 2 protons se situe au niveau du pic "4  $\alpha$ ". De même, celui correspondant à la détection simultanée d'un proton et d'un  $\alpha$  se trouve au niveau du pic "3  $\alpha$ ". La quantité de protons vus par rapport aux  $\alpha$  peut être de l'ordre de 5 %.

- Un bruit de fond provenant de la présence du faisceau se superpose aux gaussiennes qu'il déforme. Il peut être dû à des effets non-linéaires dans la chaîne électronique.

L'amplificateur spectrométrique présente un gain qui varie parfois entre les acquisitions : les bornes d'intégration entre les différents pics pour calculer le nombre de particules  $\alpha$  détectées doivent donc être adaptées pour chaque acquisition et non pas fixées définitivement. Il se peut aussi (très rarement cependant) que le gain de l'amplificateur varie lors d'une même acquisition. Ces variations de gain peuvent être de l'ordre du simple au double. Le spectre n'est donc pas interprétable directement. Pour pallier ce comportement anormal de l'amplificateur, nous devons alors considérer des spectres en énergie sur des plages en temps courtes telles que le gain de l'amplificateur n'ait pas trop dérivé.

En conclusion, nous ne nous contentons pas de normaliser en intégrant les gaussiennes du spectre en énergie du détecteur silicium. Lors d'une interprétation précise, nous devons tenir compte de ces paramètres. Nous avons donc un programme, nommé FitterSi et basé sur un algorithme génétique, qui permet de prendre en compte ces contributions afin de pouvoir normaliser au mieux. En effet, nous verrons par la suite que la normalisation doit être faite avec une grande précision.

Un exemple d'ajustement obtenu par ce programme FitterSi est représenté sur la figure 3.13. Nous avons représenté sur cette figure les différentes séries de gaussiennes correspondant à la détection des particules  $\alpha$  (1  $\alpha$ , 2  $\alpha$ , etc) et à celle des protons (1 p, 2 p, etc) ainsi qu'aux détections simultanées de 1  $\alpha$  + 1 p, 1  $\alpha$  + 2 p, etc. Le spectre expérimental est assez bien reproduit par la fonction d'ajustement totale.



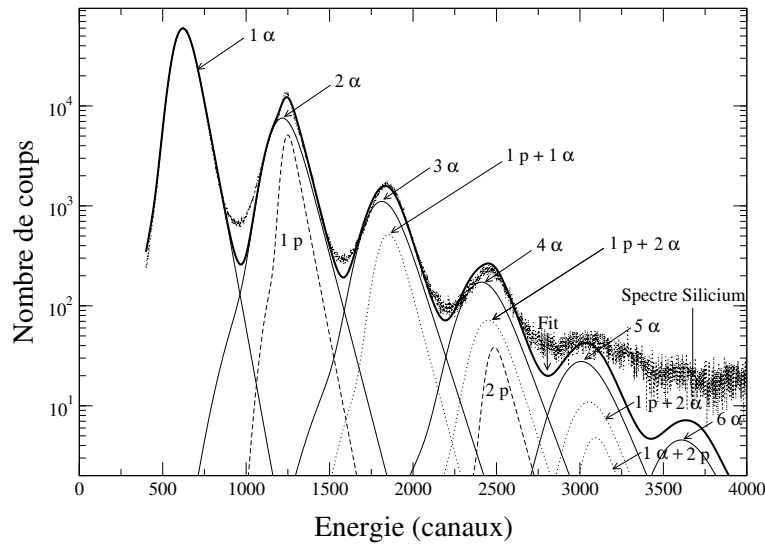


FIG. 3.13 – Exemple d’ajustement obtenu avec l’algorithme génétique, comparé au spectre en énergie du détecteur Silicium. Les différentes contributions de l’ajustement sont représentées.

Dans l’exemple étudié, après une heure et demie de calcul et 2335 générations<sup>3</sup>, nous obtenons un nombre de particules  $\alpha$  égal à  $1.415 \cdot 10^7$  ainsi que  $7.025 \cdot 10^5$  protons. Si l’on poursuit le calcul afin d’atteindre 10 000 générations (sept heures CPU), le nombre de particules  $\alpha$  est de  $1.420 \cdot 10^7$  et le nombre de protons de  $6.783 \cdot 10^5$ . L’amélioration apportée sur le nombre de particules  $\alpha$  est seulement de 0.35 % tandis que celle des protons est de 3.6 %. Le calcul converge rapidement et donne une valeur du nombre de particules  $\alpha$  avec une précision inférieure au pourcent.

Par comparaison, le nombre de particules  $\alpha$ , obtenu par intégration des deux principales gaussiennes, vaut  $1.392 \cdot 10^7$  particules, soit un écart de 2 %. En ajoutant la contribution du troisième pic,  $1.516 \cdot 10^7$  particules  $\alpha$  sont comptées. Cela représente un écart de 6.8 % par rapport au nombre de particules  $\alpha$  calculé par l’ajustement. Ces différences proviennent essentiellement du fait que l’on ne sépare pas la contribution des protons dans le spectre. L’utilisation du programme FitterSi est indispensable pour connaître le nombre de particules  $\alpha$  avec une erreur inférieure au pourcent.

### **Autre méthode pour évaluer le nombre de particules $\alpha$ et estimation de l’incertitude sur cette normalisation**

Si on note  $N_\alpha$  le nombre de particules  $\alpha$  émises lors d’une impulsion, alors la probabilité de détecter une et une seule particule  $\alpha$  s’écrit :

$$P(1 \text{ particule } \alpha) = P1 = N_\alpha \varepsilon (1 - \varepsilon)^{N_\alpha - 1} \quad (3.26)$$

avec  $\varepsilon$  l’efficacité de détection du détecteur Silicium.

<sup>3</sup>Le critère d’arrêt est défini par un nombre de génération donné. Un test de  $\chi^2$  permet de s’assurer de la cohérence du résultat donné.

Nous pouvons alors en déduire la probabilité de détecter  $n$  particules  $\alpha$  :

$$P(n \text{ particules } \alpha) = P_n = C_{N_\alpha}^n \varepsilon^n (1 - \varepsilon)^{N_\alpha - n} \quad (3.27)$$

avec la définition habituelle de  $C_{N_\alpha}^n = \frac{N_\alpha!}{n! (N_\alpha - n)!}$ .

Nous pouvons donc en déduire  $N_\alpha$  pour chaque rapport d'amplitude d'un pic secondaire par rapport au pic principal. Le tableau 3.2 résume les valeurs obtenues. Ces dernières sont cohérentes. Ceci confirme donc que les pics observés sont bien relatifs à la détection d'une particule  $\alpha$ , de deux particules  $\alpha$ , etc. Nous pouvons également en déduire un ordre de grandeur des neutrons générés avec la cible TiT :  $1.1 \cdot 10^6$  neutrons par impulsion GENEPI. Cependant, cette valeur peut être très fluctuante en fonction de l'état de la cible TiT (cf. paragraphe 3.3.4). Les incertitudes sur le nombre de neutrons émis proviennent de l'incertitude sur l'efficacité de détection du détecteur Silicium, et de l'erreur statistique sur les mesures des intégrales P1, P2, P3 et P4. La connaissance de ce nombre de neutrons va conditionner la précision sur la normalisation entre les différentes acquisitions.

Acquisition n°468

	Mesures	Probabilités	Valeurs déduites de $N_\alpha$ ( $\times 10^3$ )
$\frac{P2}{P1}$	$(46.83 \pm 0.06) \%$	$\frac{(N_\alpha - 1)}{2} \cdot \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon}\right)$	$1144.0 \pm 1.5$
$\frac{P3}{P1}$	$(14.53 \pm 0.03) \%$	$\frac{(N_\alpha - 1) \cdot (N_\alpha - 2)}{6} \cdot \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon}\right)^2$	$1140.4 \pm 1.2$
$\frac{P4}{P1}$	$(3.45 \pm 0.01) \%$	$\frac{(N_\alpha - 1) \cdot (N_\alpha - 2) \cdot (N_\alpha - 3)}{24} \cdot \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon}\right)^3$	$1146.8 \pm 1.1$

TAB. 3.2 – Vérification de la loi de probabilité de détection des particules  $\alpha$  de la réaction  $d + T \rightarrow \alpha + n$  pour la prise de données n°468 (durée 18195 s, soit 5h 03min 15s).

Acquisition n°464

	Mesures	Probabilités	Valeurs déduites de $N_\alpha$ ( $\times 10^3$ )
$\frac{P2}{P1}$	$(26.3 \pm 0.04) \%$	$\frac{(N_\alpha - 1)}{2} * \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon}\right)$	$666.0 \pm 1.1$
$\frac{P3}{P1}$	$(5.10 \pm 0.01) \%$	$\frac{(N_\alpha - 1) * (N_\alpha - 2)}{6} * \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon}\right)^2$	$701.2 \pm 0.9$
$\frac{P4}{P1}$	$(1.031 \pm 0.005) \%$	$\frac{(N_\alpha - 1) * (N_\alpha - 2) * (N_\alpha - 3)}{24} * \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon}\right)^3$	$795.1 \pm 1.3$

TAB. 3.3 – Vérification de la loi de probabilité de détection des particules  $\alpha$  de la réaction  $d + T \rightarrow \alpha + n$  pour la prise de données n°464 (18441s, soit 5h 5min 21s).

Nous avons comparé la stabilité de cette méthode pour différentes prises de données. Le tableau 3.3 récapitule le nombre de particules  $\alpha$  détectées pour une acquisition effectuée dans des conditions identiques à l'acquisition 468 (cf tableau 3.2). Le nombre de particules  $\alpha$  obtenu présente

un écart-type relatif de 7 %. Cette dispersion peut s'expliquer pour différentes raisons : vieillissement du détecteur, sous-estimation des bruits de fond, ... Par conséquent, cette méthode ne pourra pas nous permettre de connaître le facteur de normalisation avec une excellente précision.

### 3.3.4 Etude de la stabilité de la source de neutrons

Grâce à l'algorithme génétique décrit dans le paragraphe précédent, nous pouvons connaître l'évolution de l'émission des neutrons par la source TiT au cours des acquisitions successives. Nous pouvons constater que l'intensité de la source n'est pas stable d'une acquisition à l'autre : le nombre moyen de neutrons par burst diminue au cours du temps (cf. figure 3.14). La période caractéristique de cette décroissance est de l'ordre de 45.5 jours. Or, la période radioactive du tritium est de 12 ans. Elle ne peut donc pas expliquer une telle perte. L'utilisation elle-même de la cible est un facteur non négligeable dans la perte de tritium. De plus, les conditions de stockage n'étant pas optimales, la cible a perdu du tritium par dégazage. Son activité est donc diminuée par ces trois phénomènes.

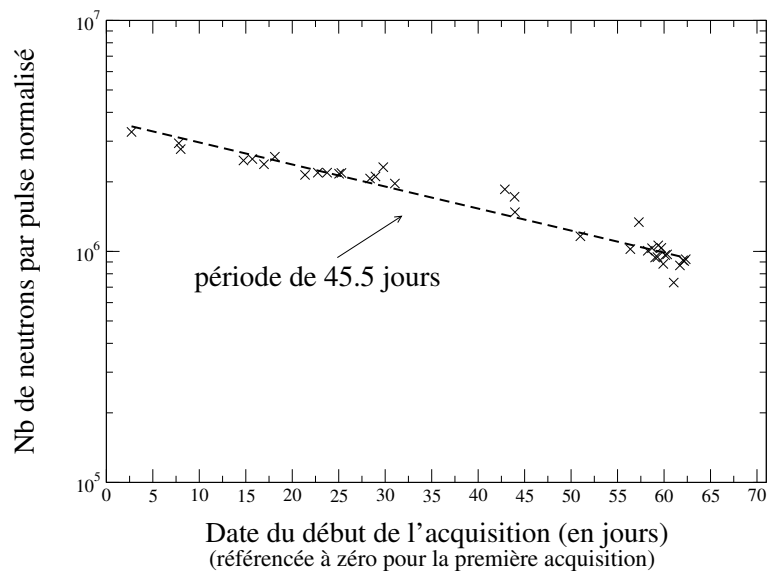


FIG. 3.14 – Usure de la cible de tritium pour les mesures de juillet à octobre 2006. Remarquez qu'afin d'obtenir des valeurs comparables, nous avons ramené le nombre de neutrons par burst pour toutes les acquisitions effectuées à une même intensité faisceau (intensité optimale correspondant à  $I_{bobine} = 6 A$  et surtout à une même intensité de faisceau en sortie de ligne  $I = 20 \mu A$ ).

Pour effectuer la mesure du rapport  $\alpha$ , nous avons installé début juin 2006 une première cible de tritium neuve. Cette nouvelle cible avait alors une activité de 1 Ci. Lors des premiers essais en juin 2006, nous avons estimé à  $3.5 \cdot 10^6$  le nombre de neutrons émis par impulsion GENEPI pour une intensité faisceau maximale. En raison de ces pertes en tritium, le nombre de neutrons a décliné jusqu'à  $7 \cdot 10^5$  neutrons par pulse dans les conditions optimales de fonctionnement. Il a donc été nécessaire de changer de cible en janvier 2007. Avec cette nouvelle cible, le nombre de neutrons par impulsion GENEPI a été augmenté d'un facteur 5, nous permettant d'avoir un meilleur taux de comptage. Les

résultats obtenus sont cohérents avec ceux de la thèse [35]. Il est indiqué qu'une cible de 0.5 Ci de tritium permet d'obtenir  $1.7 \cdot 10^6$  neutrons par impulsion GENEPI.

Notez toutefois que le faisceau n'a pas toujours pu fonctionner dans les conditions maximales. En effet, du fait de la chaleur en été, les sécurités thermiques s'actionnaient. Il a donc parfois fallu travailler avec des intensités faisceau moindres. De plus, il nous est toujours possible d'adapter, si nécessaire, le taux de comptage en modulant l'intensité du faisceau.



# Chapitre 4

## Description du système de détection pour la mesure du rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$ et de l' $^{233}\text{U}$

Comme nous l'avons vu à la fin du chapitre 2, nous avons choisi d'effectuer une mesure différentielle directe. Nous avons vu, dans le chapitre précédent, comment mesurer le rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  en fonction de l'énergie du neutron incident. Dans ce chapitre, nous détaillerons le dispositif expérimental choisi pour mesurer à la fois la section efficace de fission et celle de capture du rapport  $\alpha$ .

### 4.1 Principe de la mesure

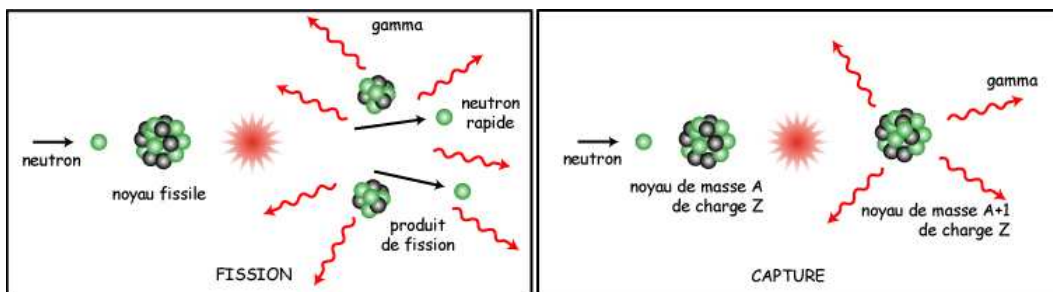


FIG. 4.1 – Schéma de la fission d'un noyau d' $^{235}\text{U}$  à gauche et de la capture neutronique sur un noyau d' $^{233}\text{U}$  à droite.

Rappelons brièvement les caractéristiques de la fission et de la capture avant d'exposer notre choix de détecteurs :

**Fission :** La fission d'un noyau d' $^{235}\text{U}$  libère deux fragments de fission. Ces derniers émettent alors des photons gamma et des neutrons (cf figure 4.1, à gauche). Au total, lors d'une fission, 2.5 neutrons rapides sont émis en moyenne ainsi que 7 photons ayant chacun une énergie de l'ordre du MeV.

**Capture :** Lors d'une capture d'un neutron par un noyau d' $^{233}\text{U}$ , il y a en moyenne 4 photons gamma émis ayant chacun une énergie de l'ordre du MeV (cf figure 4.1, à droite).

Nous mesurons la section efficace de fission grâce à une chambre à fission. Elle présente l'avantage de pouvoir servir à la fois de détecteur et de cible. Grâce à cette dernière, nous détecterons les produits de fission pour avoir le taux de réaction de fission.

Pour obtenir la section efficace de capture directement, nous ne pouvons détecter que les photons gamma émis. Pour cela, nous utiliserons des scintillateurs entourant la chambre à fission. Cependant, il est capital de remarquer que ces scintillateurs détecteront à la fois les photons gamma provenant de la capture sur  $^{233}\text{U}$  et ceux provenant de la fission. Afin d'obtenir seulement la contribution provenant de la capture, il est nécessaire de supprimer celle de fission connue par ailleurs grâce à la chambre à fission.

De plus, précisons que nous avons choisi d'effectuer une mesure directe mais aussi simultanée du taux de réaction de capture et de celui de fission. En effet, comme le taux de réaction est égal à la section efficace multipliée par le flux de neutrons, une mesure simultanée nous permet de nous affranchir du flux de neutrons et donc de l'incertitude sur celui-ci pour le rapport  $\alpha$  :

$$\frac{\text{Taux de capture}(En)}{\text{Taux de fission}(En)} = \frac{\sigma_{\text{capture}}(En) * \Phi(En)}{\sigma_{\text{fission}}(En) * \Phi(En)} = \frac{\sigma_{\text{capture}}(En)}{\sigma_{\text{fission}}(En)} = \alpha(En)$$

Avant de décrire les détecteurs utilisés plus en détail pour effectuer cette mesure directe et simultanée, il est important de souligner les difficultés propres à cette mesure. En effet, le choix des détecteurs ne peut pas passer outre certaines considérations que nous allons voir au paragraphe suivant.

## 4.2 Difficultés inhérentes à la mesure

Comme le montre la figure 4.2, les sections efficaces de fission et de capture de  $^{233}\text{U}$  sont distinctes d'un ordre de grandeur environ. La valeur moyenne du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  est donc attendue autour de 0.12 ; elle est localement plus élevée dans la région des résonances. La mesure de la capture est donc la plus difficile à effectuer.

Deux principaux bruits de fond vont gêner fortement la mesure des photons gamma de capture dans les scintillateurs : les photons gamma provenant de la fission de  $^{233}\text{U}$  ainsi que les photons gamma de bruit de fond provenant essentiellement de capture sur les éléments du dispositif expérimental.

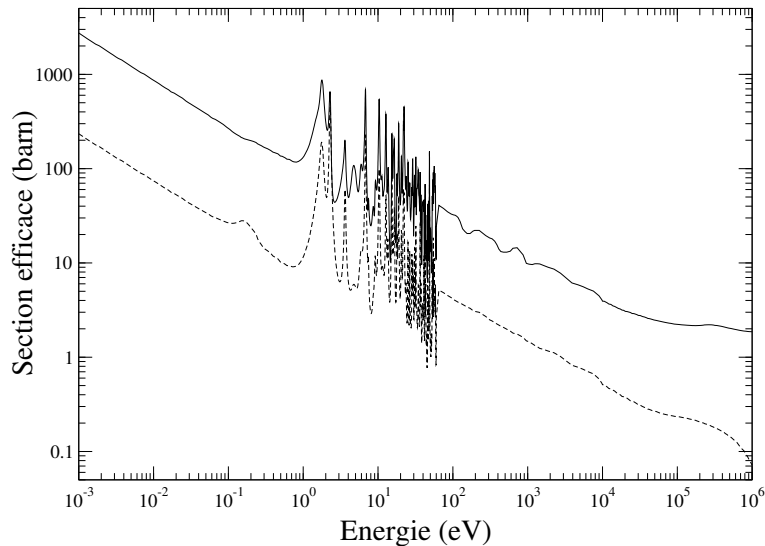


FIG. 4.2 – Comparaison entre la section efficace de fission (courbe pleine) et section efficace de capture (courbe pointillée) de la base de données ENDF/B-IV.

#### 4.2.1 Efficacité de détection de la fission

Les photons émis lors de la fission sur l' $^{233}\text{U}$  présentent en nombre et en énergie des caractéristiques proches de ceux émis par capture. On ne peut pas les distinguer avec les détecteurs de photons gamma que l'on utilise (scintillateurs YAP). En effet, les scintillateurs ont une résolution en énergie de l'ordre de 10 % au mieux.

Le signal provenant uniquement des photons gamma de fission dans les scintillateurs est environ 10 fois plus important que celui provenant des photons gamma de capture (sans tenir compte de la différence de multiplicité). Il est alors capital de connaître l'efficacité de détection de la fission dans la chambre à fission avec la plus grande précision possible afin de supprimer correctement les événements de fission. Tous les événements non supprimés, c'est-à-dire en anti-coïncidence avec la chambre à fission, seront assimilés à des événements de capture. Or, une très faible erreur sur l'efficacité de détection de fission induit une erreur importante sur la mesure de la section efficace de capture du fait de ce facteur  $\sim 10$  entre les deux sections efficaces que l'on veut mesurer.

Prenons un exemple pour mieux comprendre cet "effet de levier". Pour simplifier le raisonnement, nous allons supposer que l'efficacité de détection totale dans les scintillateurs est égale pour les photons gamma de fission et ceux de capture. Ainsi, nous pouvons raisonner uniquement en nombre d'événements :

Imaginons que l'on ait 100 fissions. Pour un rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  égal à 0.12, on a alors 12 captures. De plus, imaginons que l'on estime l'efficacité de détection de fission à  $97 \pm 1$  %. Nous mesurons donc dans les scintillateurs 97 fissions sur les 100 fissions réellement présentes dans la chambre à fission. Les 3 autres fissions sont assimilées à des événements de capture. Comme l'erreur sur



l'efficacité de détection de la fission est connue à 1 %, nous devons supprimer  $3 \pm 1$  événements assimilés à des événements de capture. Or, comme il y a au total 12 événements de capture qui ont réellement eu lieu, nous faisons une erreur d'1 événement sur 12. Ainsi, une erreur de seulement 1 % sur l'efficacité de détection de la fission induirait une erreur de plus de 8 % sur la capture.

Il faut donc effectuer une mesure très précise de la fission pour pouvoir mesurer correctement la capture. Cela sous-entend qu'il faut connaître parfaitement l'efficacité de détection de fission, celle-ci étant limitée par les produits de fission ne sortant pas de la cible et par la non collection des produits de fission trop éloignés des fils de l'électrode centrale. Un code de transport de produits de fission a ainsi été développé pour pouvoir l'estimer (cf chapitre 5). De plus, afin de limiter l'incertitude sur la mesure de la capture, il est préférable de maximiser cette efficacité de détection de fission, point déterminant dans le choix de l'épaisseur des cibles d'uranium. Il est aussi très important de bien recouvrir la cible pour essayer de maximiser le taux de comptage des événements de fission et de capture.

## 4.2.2 Bruit de fond dû aux photons gamma

Il existe deux types de sources de photons gamma de bruit de fond :

- En premier lieu, les nombreuses captures dans le bloc de plomb, sur les impuretés du plomb présentant localement des sections efficaces de capture élevées, ainsi que sur les matériaux constituant le dispositif de détection, induisent des photons supplémentaires perturbant la mesure. L'utilisation de plusieurs détecteurs de photons gamma et la mise en place d'une mesure en coïncidence entre ces détecteurs doit permettre de diminuer largement ce bruit de fond. En effet, la coïncidence permettra de limiter considérablement la part des photons gamma de capture ayant lieu loin des détecteurs c'est-à-dire essentiellement provenant du plomb puisque la probabilité de détecter, en coïncidence, 2 photons gamma émis d'une même capture parasite est proportionnelle au carré de l'angle solide. Par contre, le bruit de fond provenant des captures sur les éléments proches des scintillateurs YAP sera moins diminué puisque l'angle solide est plus grand. C'est pourquoi une très grande attention a été continuellement portée lors de la fabrication des détecteurs dans le choix des matériaux utilisés. Par exemple, bien que plus difficile à tisser, les fils de l'électrode centrale de la chambre à fission ont été choisis en acier inoxydable plutôt qu'en tungstène doré. Le tungstène et l'or présentent en effet de très importantes résonances de capture dans notre plage de mesures en énergie (résonance à 27 000 barns pour l'or à 4.9 eV ; plusieurs résonances allant jusqu'à 4 300 barns pour le tungstène). Notez que le taux de comptage du bruit de fond induit par des captures sur les matériaux environnants ne varie pas au cours du temps d'acquisition. Cependant, il présente une structure dans les spectres en fonction de l'énergie incidente des neutrons.
- Le second bruit de fond dû aux photons gamma provient de l'activation. C'est un bruit de fond blanc sur les spectres en fonction de l'énergie incidente du neutron. Par contre, la contribution

de ce bruit de fond varie au cours de la mesure. Cette contribution constante devra être systématiquement estimée puis soustraite afin d'obtenir des acquisitions comparables. Le bruit de fond provenant de l'activation est beaucoup moins pénalisant que le bruit de fond provenant des captures sur des matériaux autres que  $^{233}\text{U}$  (ou  $^{235}\text{U}$ ). Sa structure de bruit de fond blanc permet une modélisation très simple pour sa soustraction et induisant peu d'erreur. De plus, nous pouvons mesurer l'activation et quantifier son évolution au cours du temps par une acquisition effectuée sans neutrons (cf chapitre 7).

### 4.3 Dispositif de détection et protocole expérimental

Connaissant les difficultés que nous allons rencontrer, nous avons choisi le dispositif de mesure suivant :

- une chambre à fission carrée, qui contient 2 cibles d'uranium. Elle permet de mesurer la fission par la détection des produits de fission.
- 8 scintillateurs YAP. Ils sont regroupés en deux systèmes composés de 4 YAP chacun, placés de part et d'autre de la chambre à fission. Ils détectent les photons gamma émis par la fission et la capture de l'uranium.

La figure 4.3 permet de visualiser la position des détecteurs les uns par rapport aux autres.

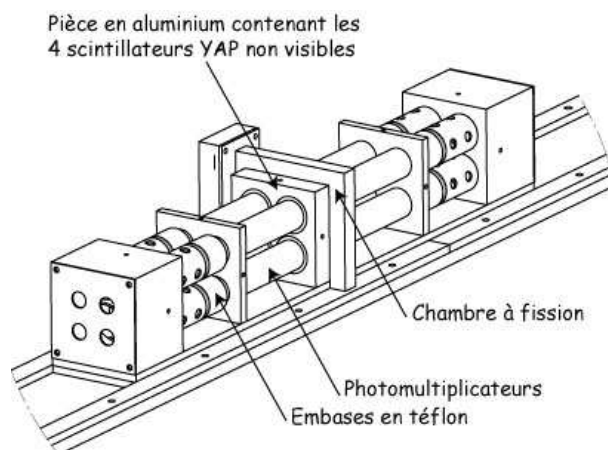


FIG. 4.3 – Disposition des scintillateurs YAP avec leur photomultiplicateur associé par rapport à la chambre à fission dans le cas où les scintillateurs sont rapprochés au maximum des cibles.

Au vu du caractère original et de la difficulté de la mesure, la première étape consiste en la mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  et non pas de  $^{233}\text{U}$ . Cette mesure sert à comprendre et caractériser le plus précisément possible le dispositif expérimental : test des détecteurs, mesures des caractéristiques de ceux-ci, étude du fonctionnement de la chambre à fission, détermination du rapport signal sur bruit,

évaluation des différentes contributions du bruit de fond, etc. En fonction des premiers résultats obtenus et des objectifs que nous voulons atteindre, nous nous autorisons à modifier, dans la mesure du possible, le dispositif pour essayer d'améliorer ses performances. Il s'est avéré que certaines modifications ont été nécessaires, comme par exemple, le choix de l'épaisseur des scintillateurs. Cette première étape permet de s'assurer que la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  est faisable avec une précision intéressante. Le cas échéant, nous pourrions effectuer réellement les mesures pour cet isotope. Sinon, nous estimerons de combien nous devons améliorer le rapport signal sur bruit pour effectuer la mesure.

Pour la mesure du rapport  $\alpha$  d'un noyau fissile donné, deux séries d'acquisitions sont indispensables :

- Mesure du signal avec la chambre à fission contenant les cibles de l'isotope fissile choisi.
- Mesure du bruit de fond avec une chambre à fission similaire en tout point à celle utilisée pour la mesure du signal mais sans les cibles. Notez que, dans la chambre à fission utilisée pour l'estimation du bruit de fond, les fils composant l'électrode centrale ainsi que le gaz argon-méthane ne sont pas présents volontairement, leurs contributions dans le bruit de fond étant parfaitement négligeables.

Lors de ces deux séries de mesures, tout le reste du dispositif expérimental (décrit dans le chapitre 4) est rigoureusement identique.

Il est très important de remarquer que deux types de coïncidences sont utiles pour la mesure, mais n'ont pas le même but recherché :

- La coïncidence entre les différents scintillateurs YAP : elle est indispensable pour améliorer le rapport signal sur bruit. Comme nous venons de le voir dans le paragraphe précédent, cette coïncidence permet de diminuer la probabilité de détection de photons gamma de capture provenant de sources éloignées du dispositif expérimental. En effet, cette probabilité est fonction de l'angle solide au carré pour une coïncidence double, au cube pour une coïncidence triple, etc. Cependant, il est très important de remarquer que le bruit de fond provenant des photons de capture sur le dispositif expérimental (c'est-à-dire entre les scintillateurs YAP) n'est hélas pas diminué pas cette coïncidence.
- La coïncidence entre les scintillateurs et la chambre à fission : elle permet d'obtenir le spectre des photons gamma de fission dans les scintillateurs, à l'efficacité de détection de la chambre à fission près. Cette donnée est capitale puisqu'il faudra la soustraire au signal obtenu dans les scintillateurs pour obtenir le signal des photons gamma de capture.

Pour résumer, le signal de capture s'obtient par plusieurs étapes successives :

- Nous commençons par déterminer le signal de fission en coïncidence dans les scintillateurs YAP. Pour cela, nous imposons une coïncidence entre la chambre à fission et la coïncidence des scintillateurs YAP.
- Le bruit de fond d'activation est déduit des acquisitions de signal (respectivement, de bruit de fond) obtenues avec la chambre à fission avec les cibles (respectivement, sans cibles) en coïncidence dans les scintillateurs YAP. Puis, nous soustrayons les acquisitions de bruit de fond en coïncidence dans les scintillateurs YAP, aux acquisitions de signal en coïncidence dans les scintillateurs YAP. Nous n'obtenons plus que les événements de capture et de fission dans les scintillateurs.
- Puis, nous déduisons le signal de fission en coïncidence dans les scintillateurs YAP. C'est lors de cette étape qu'intervient le problème de la bonne connaissance de l'efficacité de détection de fission.

Nous pouvons aussi obtenir le signal de capture en imposant directement, lors de l'analyse, une anti-coïncidence YAP/chambre à fission après déduction du bruit de fond. En effet, les photons gamma qui ne correspondent pas à des photons de bruit de fond proviennent soit de la capture soit de la fission. Dans ce dernier cas, la détection des gamma de fission est simultanément associée à la détection des produits de fission dans la chambre à fission, à l'efficacité de détection de fission près. Les photons gamma ne coïncidant pas avec une détection de produits de fission sont soit des événements de fission non accompagnés de signal dans la chambre à fission, soit les événements de capture qui nous intéressent.

Des acquisitions supplémentaires sont requises pour effectuer l'analyse. Certaines par exemple nous permettront de mieux comprendre le rapport signal sur bruit. Nous verrons plus précisément quelles sont elles dans les chapitres suivants.

Dans la suite de ce chapitre, nous décrirons chacun des détecteurs et leurs caractéristiques. Nous montrerons comment et où ils sont insérés dans le bloc de plomb. Puis, le montage électronique sera expliqué en détails tout comme le système d'acquisition. Nous finirons par la description du programme d'analyse de données.

## 4.4 Les détecteurs de photons gamma

Comme déjà précisé, les photons émis par capture ou fission de neutron sur l'uranium sont détectés grâce à huit cristaux scintillateurs YAP ( $\text{YAlO}_3$ ) dopés au Cérium et disposés autour de la chambre à fission contenant l'uranium. Ce sont des scintillateurs inorganiques alliant plusieurs qualités utiles à notre expérience :

- faible temps de réponse (25 ns)
- résistants aux radiations
- bon rendement lumineux. En effet, le constructeur (CRYTUR, République Tchèque) indique un rendement lumineux pour chacun des YAP variant de 77 % pour les meilleurs à 50 % pour les moins bons scintillateurs.

Nos détecteurs étant directement dans le flux de neutrons, ils peuvent induire eux-mêmes du bruit de fond gamma par capture neutronique. Ce bruit de fond est directement lié à la section efficace de capture des éléments composant le scintillateur et leur abondance. Les scintillateurs YAP présentent l'avantage d'être composés d'éléments ayant des sections efficaces de capture assez faibles (cf figure 4.4). En effet, l'oxygène présente une section efficace inférieure à celle de la capture de l' $^{233}\text{U}$  de plus de 5 ordres de grandeur, l'aluminium de plus de 2 ordres de grandeur. L'yttrium peut s'avérer être l'élément le plus pénalisant : seulement un facteur 20 sépare la section efficace de capture de l'yttrium de celle de l' $^{233}\text{U}$ . De plus, les quantités apportées ne sont pas négligeables en regard de la quantité d'uranium (cf chapitre 9). Une analyse signal sur bruit nous a amené à utiliser plusieurs tailles de scintillateurs. Nous utilisons plus précisément deux séries de scintillateurs composant ainsi deux systèmes de détection de photons gamma : le premier système est composé de 8 scintillateurs ayant un rayon de 10 mm et une épaisseur de 10 mm, tandis que le deuxième système comporte 8 scintillateurs de même rayon que les scintillateurs précédents mais ayant une épaisseur de 2 mm.

Une seule face des scintillateurs est polie. C'est celle sur laquelle nous avons déposé la graisse optique afin d'assurer une bonne transmission de la lumière entre le scintillateur et son photomultiplicateur associé. Les autres faces sont dépolies ce qui permet de mieux rediffuser la lumière dans le scintillateur. Les scintillateurs sont glissés dans un capot en aluminium. Ce dernier sert alors de surface réfléchissante. De plus, il sert de protection contre la lumière ambiante.

Ces scintillateurs sont couplés à des photomultiplicateurs à embase en téflon afin de limiter les captures parasites sur des éléments trop perturbateurs (comme par exemple l'hydrogène). Les photomultiplicateurs utilisés proviennent de l'entreprise PHOTONIS. Les scintillateurs YAP émettant dans l'UV (370 nm selon le constructeur), nous avons porté notre choix sur des PM XP 1918 [39], munis d'une fenêtre transparente aux UV.

#### 4.4.1 Montage expérimental

Huit scintillateurs YAP sont disposés en deux carrés autour de la chambre à fission afin de couvrir au mieux les cibles d'uranium. Ils sont placés dans une boîte en dural. En effet, afin de rendre ces systèmes étanches à la lumière, la solution courante d'entourer le scintillateur et son photomultiplicateur associé de scotch noir a été évitée. Cela apporte beaucoup d'hydrogène très près des détecteurs. Or l'hydrogène thermalise les neutrons très rapidement. La relation énergie-temps ne serait alors plus respectée ([35], pages 108 et suivantes). Disposer 4 scintillateurs et photomultiplicateurs associés dans une boîte en dural permet de limiter la quantité de scotch puisqu'il suffit d'en mettre uniquement pour

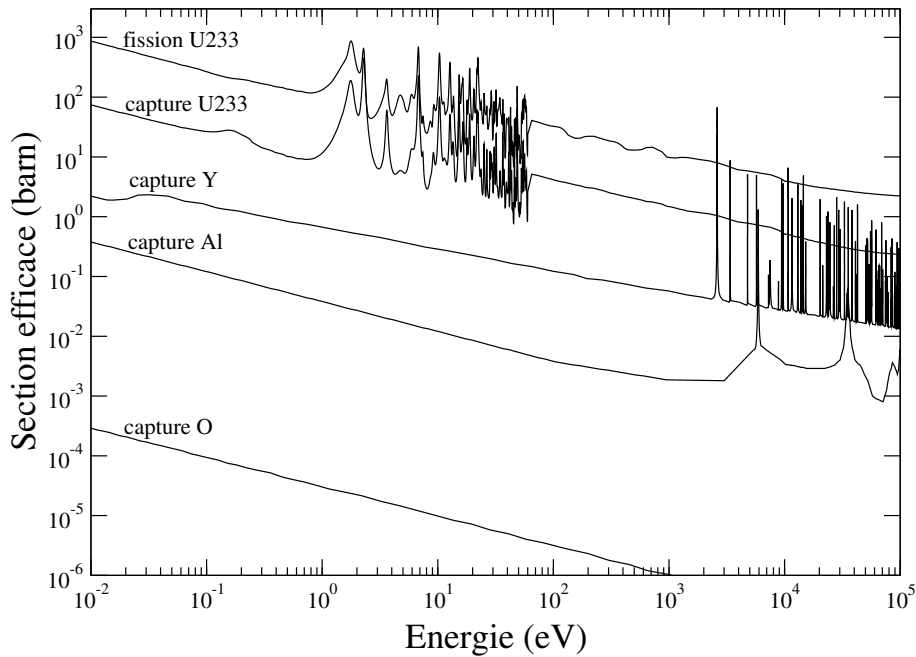


FIG. 4.4 – Sections efficaces de capture des différents éléments composant les scintillateurs YAP comparées aux sections efficaces de capture et de fission de l'<sup>233</sup>U.

servir de joint et ce, assez loin des détecteurs. Un autre matériau, du Silastic [40], avait été proposé pour remplacer le scotch. Cependant, il n'a pas été choisi bien qu'une mesure ait permis de montrer qu'il contenait moins d'hydrogène que le scotch pour la même masse utilisée. En effet, ce silicone une fois sec est très difficile à enlever. S'en servir de joint nous privait de la possibilité de démonter un sous-ensemble avec facilité.

Les photos 4.5 et 4.6 montrent le montage d'un dispositif contenant au total 4 scintillateurs et photomultiplicateurs associés. Les scintillateurs YAP sont fixés par un support en aluminium et grâce à la pression exercée par les scintillateurs et les embases. La position des scintillateurs entre eux et des scintillateurs par rapport à la chambre à fission est bien définie : tout le montage est symétrique. Les centres des scintillateurs d'un même ensemble sont tous écartés de 25 mm et centrés sur la cible d'uranium de la chambre à fission. Enfin, le dispositif complet est installé sur un rail coulissant sur lequel est fixée la chambre à fission. Cela permet de s'assurer de la reproductibilité de l'expérience (distance scintillateurs YAP à la chambre à fission).

#### 4.4.2 Efficacité/résolution des scintillateurs

Nous avons caractérisé ces 2 séries de détecteurs de photons gamma à l'aide d'une source de <sup>137</sup>Cs. Cet élément est un émetteur gamma mono-énergétique d'énergie  $E_\gamma = 662$  keV, avec une période associée de 30.07 ans. Cette source avait une activité de 3.2 kBq en avril 2006. L'épaisseur du scintillateur influe beaucoup sur la forme du spectre. Ce dernier est montré sur la figure 4.7. Pour des

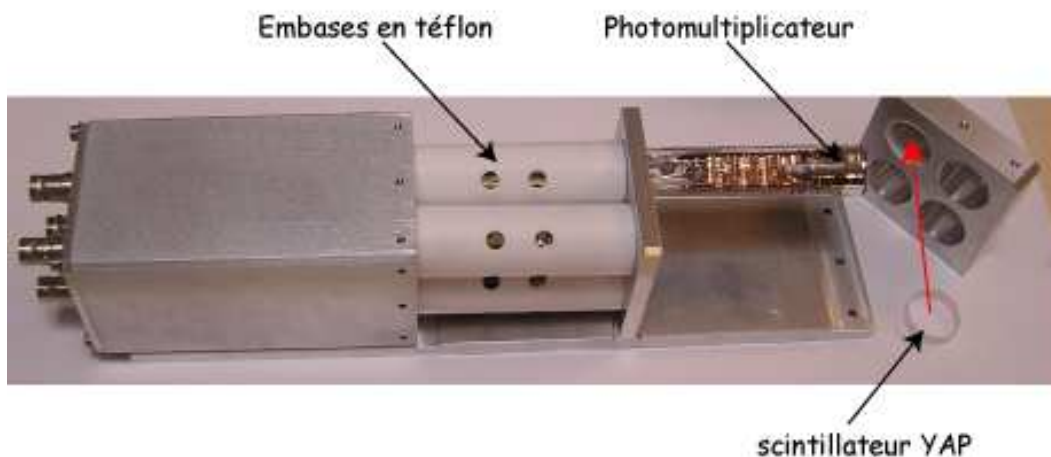


FIG. 4.5 – Dispositif expérimental contenant 4 photomultiplicateurs et scintillateurs associés. Sur cette photo, les quatre embases en téflon sont installées. Seul un photomultiplicateur est mis en place.



FIG. 4.6 – Dispositif expérimental contenant 4 photomultiplicateurs et scintillateurs associés. Sur la photo de gauche, les quatre ensembles scintillateur/photomultiplicateur/ embase sont installés. Il ne reste plus que le capot à mettre pour fermer la boîte en dural afin d'assurer l'étanchéité à la lumière. Sur la photo de droite, le dispositif est complètement monté et prêt à être utilisé pour les mesures. On notera la très faible quantité de scotch nécessaire pour l'étanchéité à la lumière.

scintillateurs de 10 mm, le pic photo-électrique est visible, ainsi que le front Compton et le pic de rétro-diffusion. Au contraire, pour des scintillateurs très fins (2 mm), le front Compton reste bien visible et le pic photoélectrique a pratiquement disparu. La proportion des événements dans le pic photoélectrique par rapport aux événements dans le front Compton passe de 24.4 % à seulement 9 % lorsque l'on diminue l'épaisseur de 10 mm à 2 mm.

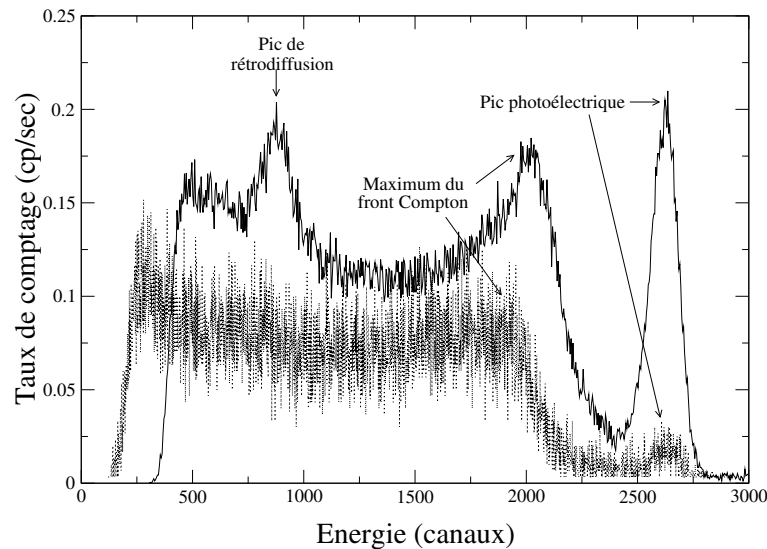


FIG. 4.7 – Spectres en énergie obtenus avec une source de  $^{137}\text{Cs}$  pour un scintillateur YAP de 10 mm d'épaisseur (courbe pleine), pour un scintillateur de 2 mm d'épaisseur (courbe pointillée). On notera que les seuils des discriminateurs n'ont pas été fixés à la même valeur lors des deux acquisitions.

#### 4.4.2.1 Résolution

Pour mesurer la résolution en énergie des 2\*4 scintillateurs, on place la source de  $^{137}\text{Cs}$  le plus précisément possible devant un scintillateur et on acquiert le spectre en énergie pour ce scintillateur. On répète l'opération pour chacun des scintillateurs. Les 2\*4 courbes sont montrées sur la figure 4.8. Nous pouvons calculer la résolution  $R = \frac{\Delta E}{E}$  de chacun de nos détecteurs de photons gamma sur le pic photoélectrique.

Les valeurs obtenues sont résumées dans les tableaux 4.1 et 4.2. La figure 4.9 indique la disposition géographique des scintillateurs YAP. Le système comprenant les scintillateurs 5 à 8 est celui qui est placé le plus près de la cible TiT dans le bloc de plomb. Cette numérotation sera la même pour toute la suite de la thèse.

Pour vérifier nos résultats, la résolution est comparée au rendement photoélectrique de chacun des scintillateurs mesuré par le constructeur. Les résultats sont référencés au scintillateur YAG<sup>1</sup>. Les résultats obtenus sont cohérents. Plus le scintillateur a un rendement photoélectrique faible et moins

<sup>1</sup>Notez que les scintillateurs YAG sont des scintillateurs de formule  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  et dopés au Cérium. Par rapport au scintillateur NaI, le rendement lumineux des scintillateurs YAG est de 40 % tandis que celui des scintillateurs YAP est de 70 %.



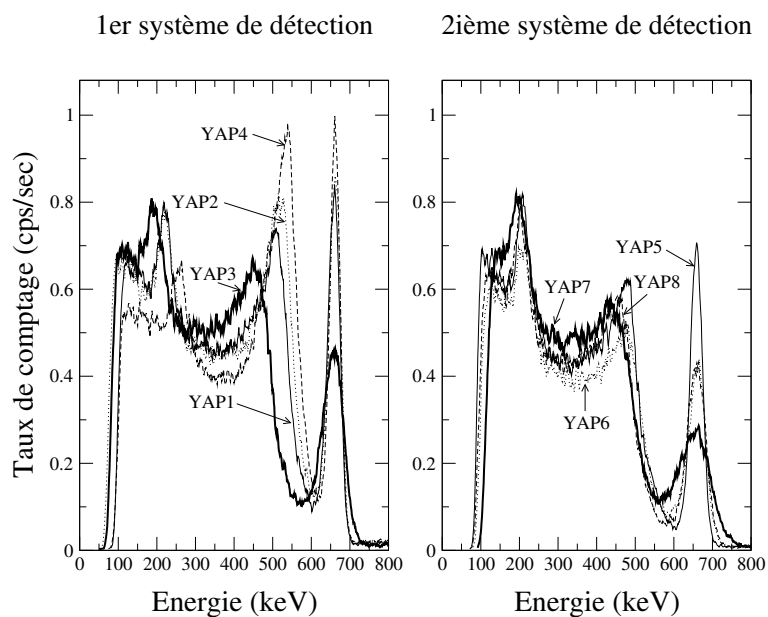


FIG. 4.8 – Spectre en énergie des 8 scintillateurs YAP obtenu avec une source de  $^{137}\text{Cs}$  placé devant chacun des scintillateurs de 10 mm. Tous les spectres ont été étalonnés en énergie grâce au pic photoélectrique.

N° du scintillateur 10 mm	Résolution en énergie (%) mesurée	Rendement lumineux (%) (référéncé au YAG) (données constructeur)
1	$8 \pm 2$	70
2	$9 \pm 2$	68
3	$14 \pm 3$	52
4	$7 \pm 2$	71
5	$8 \pm 2$	77
6	$12 \pm 3$	50
7	$18 \pm 4$	55
8	$12 \pm 3$	71

TAB. 4.1 – Lien entre la résolution du détecteur scintillateur et son rendement photoélectrique, pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur. Les erreurs indiquées sont purement statistiques.

N° du scintillateur 2 mm	Résolution en énergie mesurée (%)	Rendement lumineux (%) (référéncé au YAG) (données constructeur)
1	$9 \pm 1$	150
2	$17 \pm 2$	153
3	$10 \pm 1$	136
4	$14 \pm 2$	133
5	$11 \pm 2$	133
6	$8 \pm 1$	134
7	$15 \pm 2$	133
8	$17 \pm 2$	145

TAB. 4.2 – Lien entre la résolution du détecteur scintillateur et son rendement photoélectrique, pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur. Les erreurs indiquées sont purement statistiques.

sa résolution est bonne. Cependant, les valeurs pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur ne sont qu'indicatives, les mesures étant assez grossières.

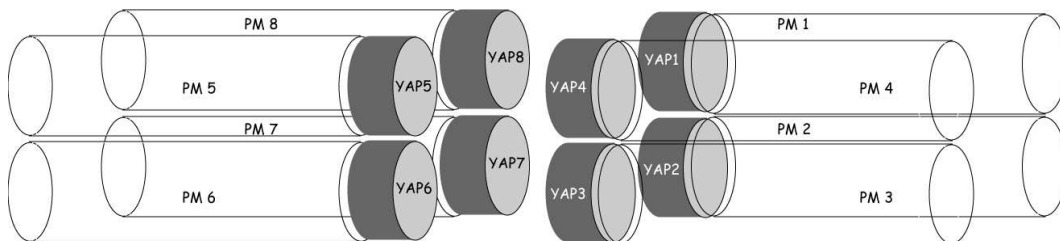


FIG. 4.9 – Schéma montrant la position des scintillateurs YAP avec leur numérotation respective.

#### 4.4.2.2 Efficacité

Le fabricant nous a fourni l'efficacité de détection en fonction de l'énergie et de l'épaisseur du YAP. Cette efficacité est très bonne à basse énergie comme le montre la figure 4.10. En diminuant l'épaisseur du scintillateur, l'efficacité totale de celui-ci diminue. Réduire l'épaisseur de ces détecteurs est cependant indispensable pour limiter la quantité de matière apportée par les détecteurs, source de bruit de fond. Il est donc important de comparer la perte d'efficacité au gain induit sur le bruit de fond provenant des scintillateurs eux-mêmes.

Une mesure de l'efficacité totale de nos détecteurs a été effectuée grâce à la source de  $^{137}\text{Cs}$ . Elle est présentée sur la figure 4.8. Afin d'avoir des mesures comparables entre tous les scintillateurs YAP quelle que soit leur épaisseur, nous avons effectué un rapide étalonnage en énergie grâce au pic photoélectrique. L'efficacité de détection est ensuite déduite du spectre en énergie obtenu avec la source de  $^{137}\text{Cs}$ . Elle est calculée à partir de l'intégrale du spectre entre 200 keV et la fin du pic photoélectrique. La borne inférieure a été choisie pour s'affranchir des effets de seuil des détecteurs. La moyenne des efficacités totales pour les scintillateurs YAP de 10 mm est de 6.6 %, tandis que

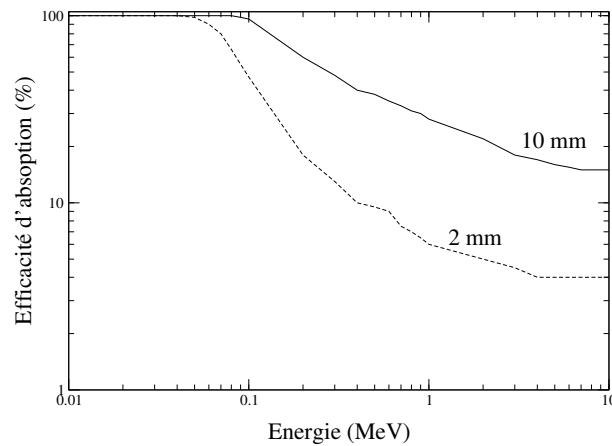


FIG. 4.10 – Données constructeur des efficacités d'absorption pour un scintillateur YAP en fonction de l'énergie, pour un YAP d'épaisseur 1 cm (courbe pleine) et pour un YAP d'épaisseur 2 mm (courbe pointillée).

celle des YAP de 2 mm est de 3.5 %. Ces efficacités sont résumées dans le tableau 4.3. L'efficacité totale pour des scintillateurs cinq fois moins épais n'est diminuée que d'un facteur 2. Or on s'attend à une amélioration du bruit de fond induit par les scintillateur d'un facteur 5. Il semble a priori plus avantageux d'utiliser les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur.

Néanmoins, les efficacités obtenues sont assez différentes ce qui est pénalisant pour l'analyse des spectres en coïncidence. Pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur, les mesures présentent une dispersion (écart-type relatif) de 12 %. De plus, le deuxième système (YAP 5 à 8) semble légèrement moins efficace. Pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur, la dispersion est moindre puisque l'écart-type relatif vaut 6.0 %.

Il est probable que nous soyons sensibles à la position de la cible. En effet, malgré tous nos soins, nous estimons ne pouvoir la centrer qu'à 1 ou 2 mm près. Afin de réduire cette erreur, une solution serait d'éloigner la source. Mais celle-ci est trop peu active et le bruit de fond devient prépondérant. Afin d'être moins sensible à la position de la source, nous avons réalisé une autre mesure avec la source de  $^{137}\text{Cs}$ . Cette fois-ci, elle est placée au centre des 8 scintillateurs YAP. Une seule mesure est alors nécessaire pour une série de scintillateurs de même épaisseur. Ils devraient avoir un taux de comptage similaire. Les mesures sont présentées dans le tableau 4.4. Elles montrent une dispersion de 11 % pour les scintillateurs de 10 mm, et de 20 % pour les scintillateurs de 2 mm. Cette deuxième mesure nous permet de confirmer l'importance de la sensibilité de la mesure à la position de la source. En effet, d'après le schéma 4.9, nous remarquons que les scintillateurs situés face à face présentent des taux de comptage similaire. Nous pouvons donc en déduire très grossièrement l'écart de position de la cible par rapport à la position centrale. En nous basant seulement sur la différence d'angle géométrique, nous pouvons déduire que la cible est positionnée à environ 4.6 mm du centre dans la direction des scintillateurs YAP 4 et 5. Cette erreur est possible puisque nous ne connaissons pas la

position réelle de la matière radioactive dans la source, de 1 cm de rayon. Ce calcul ne prend pas en compte véritablement la géométrie du montage (épaisseur des scintillateurs, différence d'épaisseur d'aluminium vue, etc). Pour conclure, notre mesure d'efficacité est peu précise de par cette erreur systématique.

	<b>YAP de 10 mm</b>	<b>YAP de 2 mm</b>
N° du scintillateur	Efficacité (%)	Efficacité (%)
1	7.28 ± 0.02	3.30 ± 0.01
2	7.30 ± 0.02	3.24 ± 0.01
3	6.80 ± 0.02	3.63 ± 0.01
4	7.75 ± 0.02	3.42 ± 0.01
5	6.05 ± 0.02	3.46 ± 0.01
6	5.64 ± 0.02	3.92 ± 0.01
7	5.86 ± 0.02	3.44 ± 0.01
8	5.72 ± 0.02	3.30 ± 0.01

TAB. 4.3 – Efficacités totales de détection des ensembles {scintillateur YAP - photomultiplicateur associé} pour les deux séries de scintillateurs d'épaisseurs différentes. Les incertitudes citées sont purement statistiques.

	<b>YAP de 10 mm</b>	<b>YAP de 2 mm</b>
N° du scintillateur	Taux de comptage (coups.s <sup>-1</sup> )	Taux de comptage (coups.s <sup>-1</sup> )
1	54.2 ± 0.3	12.21 ± 0.14
2	60.3 ± 0.3	8.58 ± 0.12
3	69.0 ± 0.3	11.59 ± 0.14
4	70.5 ± 0.3	15.56 ± 0.16
5	60.7 ± 0.3	14.51 ± 0.16
6	65.8 ± 0.3	12.26 ± 0.14
7	54.1 ± 0.3	8.42 ± 0.12
8	50.7 ± 0.3	10.88 ± 0.13

TAB. 4.4 – Taux de comptage des ensembles {scintillateur YAP - photomultiplicateur associé} pour les deux séries de scintillateurs d'épaisseurs différentes. Ils ont été obtenus avec la source de <sup>137</sup>Cs placée au centre du dispositif. Les incertitudes citées sont purement statistiques.

## 4.5 La chambre à fission

### 4.5.1 Descriptif

Le schéma de la figure 4.11 et les photos de la figure 4.12 nous montrant la chambre à fission lors du montage et dans la configuration définitive, permettent de visualiser la chambre à fission utilisée.

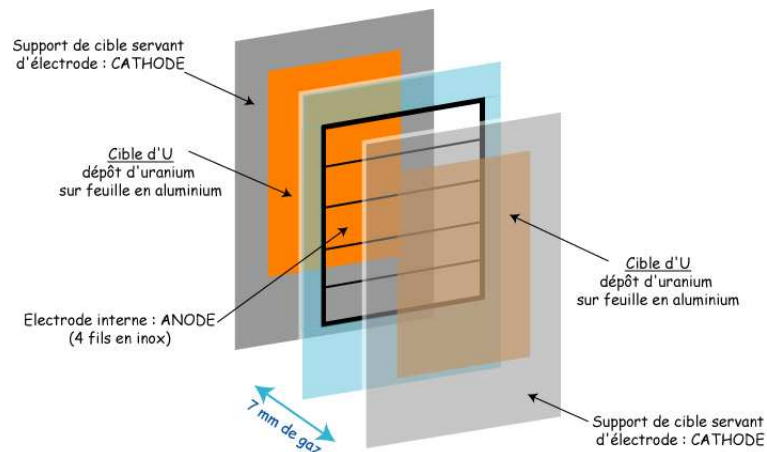


FIG. 4.11 – Schéma éclaté très simplifié de la chambre à fission utilisée.

La chambre à fission devant être insérée dans un canal du bloc de plomb, nous avons une contrainte géométrique forte sur la taille de cette chambre (longueur et largeur inférieures à 110 mm).

La distance de gaz entre les cibles est de 7 mm (3.5 mm entre une cible et l'électrode interne). Le gaz utilisé est un mélange d'argon et de méthane, respectivement en proportion 90 % - 10 %. Il n'est pas renouvelé lors des différentes mesures effectuées pour la mesure du rapport  $\alpha$ . Nous fonctionnons à 0.5 bar afin d'éviter toute contamination en cas de rupture d'étanchéité de la chambre à fission. Le choix de cette pression et de la distance entre les deux électrodes externes s'explique par la nécessité de bien séparer sur le spectre "énergie" la contribution des fissions de celle des particules  $\alpha$  émises par l'uranium (cf chapitre 5). Notez toutefois, qu'il est possible d'effectuer d'autres mesures avec des pressions différentes, ces mesures pouvant être utiles pour obtenir une meilleure estimation de l'efficacité de détection de fission. Le remplissage du gaz est adaptable grâce à la présence d'une vanne. Nous pouvons donc modifier assez facilement la pression et le gaz de la chambre à fission. En effet, il suffit de réinstaller la chambre à fission sur un banc de pompage afin de refaire le vide avant de mettre le gaz voulu à la pression choisie. Le premier pompage pour chaque chambre à fission est assez long (plusieurs jours) de façon à ce que tous les éléments dégazent au mieux.

Les scintillateurs doivent être les plus éloignés possible entre eux pour limiter le bruit de fond provenant de la diaphonie (cf chapitre 6). Ils doivent aussi être très proches de la chambre à fission pour améliorer le rapport signal sur bruit, en augmentant au maximum l'angle solide de détection des

photons gamma provenant des cibles. C'est pourquoi l'épaisseur de la chambre doit être de l'ordre du centimètre. L'épaisseur de l'enceinte (ou chaussette) contenant le système d'électrodes doit donc être minimale. Cette chaussette doit rester étanche malgré les changements de pression. Pour respecter les contraintes de faisabilité mécanique, l'épaisseur de ses parois a été définie à 0.8 mm. La version définitive de la chambre à fission est un parallélépipède de 100 mm par 100 mm et d'épaisseur 11.6 mm. Les scintillateurs, situés face à face, seront donc séparés au minimum de 12.6 mm.

En ce qui concerne les deux cibles d'uranium insérées dans les chambres à fission (matériau, dimensions, caractérisation, etc), la section 4.6 leur est dédiée. Les cibles d'uranium étant très radiotoxiques, il est préférable de les manipuler le moins possible. De plus, elles sont très fragiles. De l'uranium peut se détacher assez facilement au risque d'induire une contamination. Afin de limiter les manipulations et d'éviter tout choc, il a été choisi de maintenir les cibles par un système de glissière : les cibles n'ont ainsi qu'à être glissées dans un rail. Une cale en aluminium insérée ensuite permet de maintenir les cibles. Le contact électrique se fait alors parfaitement.

Le système d'électrodes ainsi que la chaussette sont en aluminium. Par contre le bouchon, bien que massif, est en acier inoxydable. La vanne permettant le remplissage gazeux de la chambre à fission a été éloignée de la chambre à fission pour un problème d'encombrement. En outre, cela permet d'éviter un apport de matière important proche des détecteurs. Cette vanne est entièrement métallique (aucun apport de pièce hydrogénée). Pour les mêmes raisons, le connecteur amenant la haute tension et transportant le signal a été déporté au niveau de la vanne.

## 4.5.2 Choix de l'électrode interne

Toute la conception a été faite de façon à se garder la possibilité de pouvoir fonctionner, en plus du régime chambre d'ionisation, en régime proportionnel. Ce dernier peut être intéressant pour améliorer la séparation des particules  $\alpha$  des produits de fission.

Les fils de l'électrode centrale doivent permettre la collection maximale des produits de fission. En effet, nous avons vu qu'il est capital d'avoir une efficacité de détection de fission la plus élevée possible pour obtenir une bonne précision sur la mesure. Les fils de l'électrode doivent donc couvrir au mieux la cible c'est-à-dire une surface de 5 cm par 5 cm. Cependant, les fils situés au bord de la chambre à fission ne doivent pas être trop proches des électrodes externes afin d'éviter tout claquage électrique. On s'est donc imposé, de façon arbitraire, la condition :  $d \geq 2h$ ,  $d$  et  $h$  étant définis sur le schéma de la figure 4.13.

Enfin, une dernière condition qui a contraint les choix pour la conception de l'électrode et de la chambre est que nous ne voulions pas faire de soudure pour relier les fils des électrodes au fil transportant le signal. En effet, une soudure apporte de l'étain mais aussi de nombreux éléments parfois non connus et pouvant capturer fortement les neutrons. Afin de s'affranchir d'une source de bruit de fond gamma supplémentaire extrêmement proche des détecteurs, les fils sont donc pincés entre une plaque en téflon (permettant l'isolation électrique entre les électrodes) et une cosse en aluminium. Le

fil transportant le signal électrique appuie lui aussi sur cette cosse métallique grâce à une vis.



FIG. 4.12 – Photos de la chambre à fission démontée.

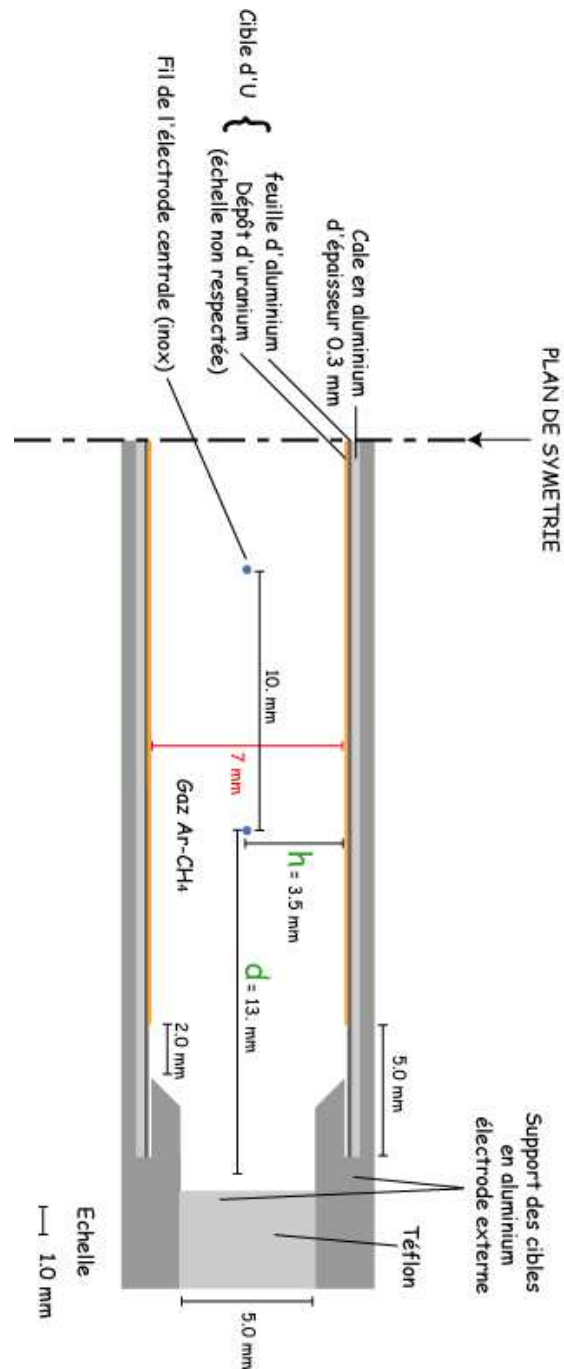


FIG. 4.13 – Schéma en coupe latérale de la chambre à fission. Seule la moitié a été représentée puisque la chambre à fission est symétrique.

Au final, l'électrode interne est constituée de quatre fils séparés de 1 cm chacun. Les fils de l'électrode devaient avoir un diamètre de  $30 \mu\text{m}$  afin de pouvoir atteindre des gains d'amplification importants. Cependant, pour les premiers tests, il a été jugé préférable de tisser avec des fils de  $50 \mu\text{m}$ . Ces derniers peuvent en effet plus facilement supporter des claquages lors des premières mises sous haute tension. Il s'est avéré que la chambre à fission fonctionnait parfaitement dans ces conditions (cf chapitre 5, partie 2). Le tissage pour la mesure définitive est donc de  $50 \mu\text{m}$  de diamètre.



Quatre chambres à fission identiques ont été construites au LPSC. La première sert pour les cibles d' $^{235}\text{U}$ , la deuxième sert pour les cibles d' $^{233}\text{U}$ . La troisième est vide (c'est-à-dire sans uranium) et permet de mesurer le bruit de fond induit par la chambre. La dernière a été construite pour servir de pièce de rechange.

## 4.6 Fabrication et caractérisation des cibles d' $^{235}\text{U}$ et d' $^{233}\text{U}$ insérées dans les chambres à fission

Les quatre cibles d'uranium insérées dans les chambres à fission ont été fabriquées par les radiochimistes de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (IPNO). Dans cette partie sont détaillées les caractéristiques de chacune des cibles : dimensions des cibles, choix du support, composition isotopique des oxydes d'uranium, ... De plus, il nous est indispensable de connaître au mieux la quantité de matière réellement déposée ainsi que les irrégularités des dépôts. Pour accéder à ces dernières, nous avons eu recours à une méthode de cartographie. Nous expliquerons dans ce chapitre quel dispositif expérimental a été utilisé pour obtenir ces informations, avant de présenter les résultats. Les détails concernant les cibles et le dispositif de détection permettant la caractérisation de celles-ci sont donnés en annexe F. Pour alléger la lecture, seules les données importantes sont citées dans cette partie.

### 4.6.1 Caractéristiques géométriques des cibles

Les caractéristiques finales des cibles sont récapitulées ici, et données à la figure H.1. Il a fallu les spécifier de manière très précise afin que les radiochimistes de l'IPNO puissent faire les dépôts. Les dimensions des cibles (support+dépôt) sont de 60 mm  $\times$  70 mm. Le support des cibles est composé d'aluminium pur à 99.99 %, et a une épaisseur de 0.09 mm. Le dépôt d' $\text{UO}_2$  a une taille importante (5 cm  $\times$  5 cm) et une épaisseur de 300  $\mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Dans la chambre à fission, les cibles sont éloignées de 7 mm, séparées par le gaz à 0.5 bar.

### 4.6.2 Caractéristiques du matériau utilisé

#### 4.6.2.1 L'uranium 233

L' $^{233}\text{U}$  a été acheté à l'IRMM (GEEL-Belgique). Il a été livré sous la forme d'une poudre d'oxyde  $\text{U}_3\text{O}_8$ . Il y en avait 33.35 mg, soit une activité  $\alpha$  de 11.9 MBq. La composition de l' $^{233}\text{U}$  indiquée par le fournisseur [54] est la suivante (en % molaire) :

- U-232 : 0
- U-233 : 99.94887
- U-234 : 0.05
- U-235 : 0.001
- U-236 : 0

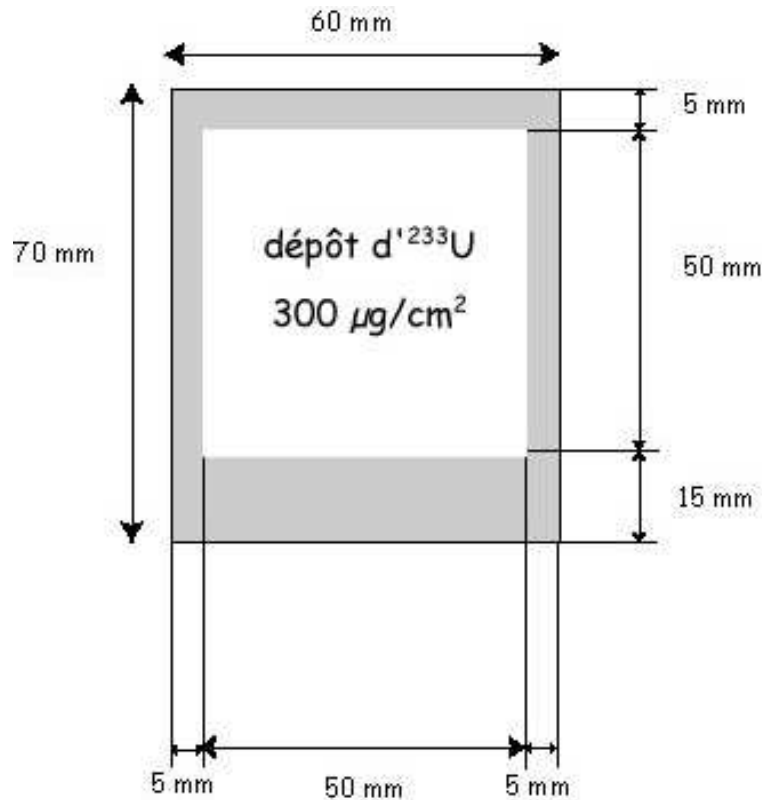


FIG. 4.14 – Caractéristiques géométriques des cibles utilisées.

– U-238 : 0.00013

Avant de transporter cet  $^{233}\text{U}$  vers l'IPNO pour faire fabriquer nos cibles, nous avons effectué au Laboratoire Basses Activités du LPSC une analyse isotopique par spectrométrie gamma. Cela a permis d'évaluer plus précisément la quantité d' $^{232}\text{U}$  présent. En effet, il est indispensable de quantifier le bruit de fond de photons gamma provenant de la cible elle-même. Or, ce bruit de fond est constitué essentiellement des photons gamma provenant de l' $^{232}\text{U}$  et de ses descendants, puisque la période de l' $^{232}\text{U}$  est 2300 fois plus courte que celle de l' $^{233}\text{U}$ .

Nous ne pouvons pas mesurer directement la quantité d' $^{232}\text{U}$  par les photons gamma des uraniums. En effet, les uraniums émettent très peu de photons gamma et, de plus, ceux-ci sont émis à basses énergies (inférieures à la centaine de keV). Les photons gamma de l' $^{232}\text{U}$  ne sont pas visibles sur le spectre. Nous nous intéressons donc de préférence à certains descendants de l' $^{232}\text{U}$  :  $^{208}\text{Tl}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  et à ceux de l' $^{233}\text{U}$  :  $^{229}\text{Th}$  et  $^{213}\text{Bi}$ . Nous mesurons ainsi une activité d'environ 12 MBq pour notre échantillon d' $^{233}\text{U}$ , très proche de celle donnée par le constructeur (11.9 MBq). Le dispositif mesure une activité de l' $^{232}\text{U}$  de 3 000 Bq, ce qui correspond à une quantité d' $^{232}\text{U}$  présent dans la poudre d' $^{233}\text{U}$  de 0.1 ppm. L'incertitude sur cette mesure est d'environ 20 % et provient de l'incertitude sur l'efficacité géométrique de détection. Ainsi, l'activité  $\alpha$  de la cible provenant de l' $^{232}\text{U}$  est donc

négligeable devant celle provenant de l' $^{233}\text{U}$ . Nous ne la prendrons pas en compte lors de la mesure précise de l'épaisseur des cibles par cartographie.

#### 4.6.2.2 L'uranium 235

L' $^{235}\text{U}$  utilisé pour fabriquer nos cibles provient d'anciennes cibles faites pour les mesures à n-ToF par le groupe Données Nucléaires de l'IPNO. La composition molaire des cibles d' $^{235}\text{U}$  a été mesurée par spectrométrie de masse. Elle est la suivante :

- $^{234}\text{U} / ^{235}\text{U}$  :  $0.007472 \pm 0.000015$
- $^{236}\text{U} / ^{235}\text{U}$  :  $0.002696 \pm 0.000005$
- $^{238}\text{U} / ^{235}\text{U}$  :  $0.06283 \pm 0.00006$

L'essentiel de l'activité de la cible est dû à l' $^{234}\text{U}$ . En effet, la période de l' $^{234}\text{U}$  est de  $2.455 \cdot 10^5$  années, soit 2900 fois plus petite que celle de l' $^{235}\text{U}$  ( $7.040 \cdot 10^8$  années). Lors de la cartographie des cibles d' $^{235}\text{U}$ , nous devons prendre en compte la proportion d' $^{234}\text{U}$  dans la cible.

Une fois les dépôts effectués, deux mesures sont requises. La première concerne la quantité réelle de matière fissile constituant chaque dépôt. La seconde consiste en une cartographie individuelle de chacune des cibles, afin de quantifier avec précision les irrégularités d'épaisseur, et donc l'efficacité de détection de fission.

### 4.6.3 Caractérisation expérimentale des cibles

#### 4.6.3.1 Dispositif expérimental

La mesure de la quantité totale de matière fissile déposée et la cartographie ont été effectuées avec le même dispositif expérimental. Celui-ci a été conçu et fabriqué entièrement par l'IPNO [56]. Il a servi à caractériser toutes les cibles utilisées pour des mesures de sections efficaces à n-ToF (CERN). Il consiste à mesurer la radioactivité  $\alpha$  des cibles.

Le système est composé d'un détecteur à semi-conducteur en silicium. Un ou deux collimateurs sont positionnés devant la jonction silicium afin de connaître précisément la surface par laquelle entrent les particules. Les collimateurs ont une épaisseur suffisante pour arrêter les particules  $\alpha$ . La cible et l'ensemble "collimateur - jonction silicium" sont placés dans une enceinte à vide, pour ne pas perdre des particules  $\alpha$ . De plus, l'ensemble "collimateur - jonction silicium" est fixé sur un moteur pas à pas. Ainsi le détecteur pourra se déplacer parallèlement à la cible. Les photos de la figure H.4 montrent le dispositif de détection utilisé.

#### 4.6.3.2 Calcul de l'angle solide de détection

Que ce soit pour la cartographie ou la mesure de la quantité totale de matière, il est indispensable de bien connaître l'angle solide de détection. L'angle solide vaut pour chaque point de la cible :



FIG. 4.15 – A gauche, vue d’ensemble du dispositif expérimental. On y distingue au centre, l’enceinte fermée ainsi que le PC d’acquisition. A droite, vue du système de détection à l’intérieur de l’enceinte. On peut y voir l’ensemble “collimateur - jonction silicium” installé pour la cartographie. Cet ensemble est situé à quelques millimètres seulement de la cible.

$\int \int_S \frac{d\vec{S} \cdot \vec{r}}{r^3}$ . Le calcul de l’angle solide est assez complexe et n’est pas résoluble analytiquement. Il existe alors deux méthodes pour le déterminer :

1. Un code Monte-Carlo donne le rapport du nombre de particules arrivant dans la jonction silicium sur le nombre de particules émises par la zone de cible “utile”. Les particules  $\alpha$ , émises de façon isotrope, sont transportées à partir d’un point quelconque de la cible. Il suffit alors de compter le nombre de particules qui passent ou non le(s) collimateur(s) et atteignent le détecteur Silicium. J’ai écrit ce code de façon à ce qu’on puisse choisir le nombre de collimateurs utilisés. L’erreur sur l’angle solide évalué selon cette méthode est liée à la statistique utilisée et sera considérée comme négligeable.
2. L’angle solide peut être obtenu par un autre procédé, utilisant la méthode d’intégration de Gauss-Legendre. Cette méthode a été développée par les membres du groupe Aval du Cycle de l’IPNO. Elle permet d’approcher numériquement la valeur d’une intégrale finie. L’annexe F donne plus de détails. L’erreur due à cette technique est négligée par la suite. Cette méthode permet d’obtenir des résultats plus rapidement que le calcul Monte-Carlo pour la même précision. Les résultats du calcul Monte-Carlo nous permettent alors de confirmer les résultats obtenus par l’intégration de Gauss-Legendre.

#### 4.6.3.3 Cartographie des cibles

##### Principe de la mesure pour la cartographie

Nous effectuons une mesure de l’activité  $\alpha$ . Pour cela, nous utilisons le dispositif décrit précédemment. Le détecteur est placé à courte distance afin de connaître l’activité pour une zone précise de la cible. Deux collimateurs sont nécessaires afin de ne prendre en compte que les particules provenant de la zone étudiée. Le schéma 4.16 donne les dimensions de ce montage. Toute la surface de la cible est balayée par le système pas à pas de façon automatique. Les temps de comptage ont été choisis afin que l’incertitude statistique soit négligeable.

## Résultats

Les figures 4.17 et 4.18 montrent les résultats obtenus pour les quatre cibles. Les bords présentent peu de comptage, à cause des effets de bords. Ceux-ci sont supprimés lors du calcul de la moyenne et de la dispersion des mesures.

Dans le tableau 4.5, nous reportons la moyenne des mesures ainsi que leur dispersion pour chacune des cibles. Les cibles d' $^{235}\text{U}$  ne sont pas tout à fait uniformes, la dispersion de l'épaisseur de cible étant respectivement de 15.5 % et 19.2 % pour les cibles 1 et 2. Sur la figure 4.18, nous apercevons que l'épaisseur du dépôt présente une baisse de 20 % sur un côté ( $x < 0, y > 0$  pour les deux cibles). Par contre, les cibles d' $^{233}\text{U}$  sont plus homogènes que celles d' $^{235}\text{U}$ , comme illustré sur la figure 4.17. Elles présentent une inhomogénéité de 8 % au maximum.

Afin d'obtenir la masse des cibles à partir de la valeur moyenne du taux de comptage, il est nécessaire de connaître l'angle solide de détection. Les méthodes détaillées dans la section précédente donnent :  $\Omega \cdot S_{visible} = 4.064 \text{ mm}^2 \cdot \text{sr}$ . Il est difficile de connaître précisément l'angle solide réel. Il s'agit en effet de mesures proches : les incertitudes sur les dimensions des collimateurs et sur la distance entre la cible et le collimateur sont importantes. En particulier, la distance entre la cible et le premier collimateur peut varier de 0.3 mm à 2.5 mm. Le diamètre du collimateur de 3.5 mm est assez mal connu puisqu'aucune mesure de son diamètre n'a été effectuée. Or, une erreur de 1 % sur celui-ci entraîne une erreur de 2.3 % sur  $\Omega \cdot S_{visible}$  et donc sur la masse des cibles. Il faut également rajouter l'erreur statistique (1 %) et l'erreur sur les dimensions des cibles (0.33 %).

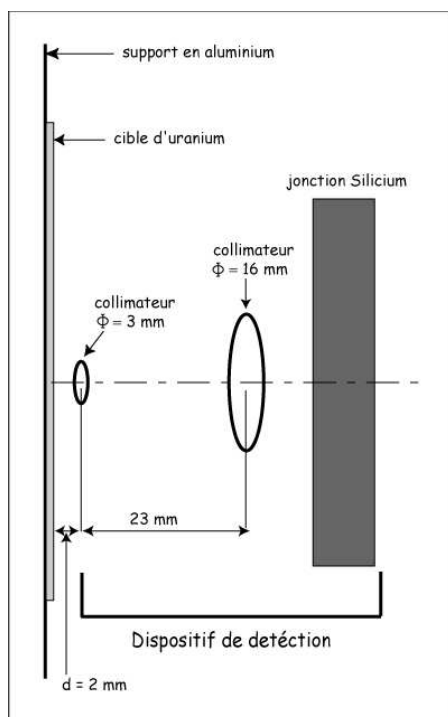


FIG. 4.16 – Schéma du dispositif de détection pour la cartographie des cibles.

Nous pouvons donc conclure que, de par la forte incertitude sur l'angle solide de détection et les diamètres des collimateurs, la cartographie seule ne suffit pas pour caractériser complètement les cibles. Elle donne des valeurs relatives entre elles mais elle reste assez imprécise en valeur absolue. C'est pourquoi il est indispensable d'effectuer une mesure complémentaire, avec l'ensemble "collimateur - jonction silicium" placé de façon à avoir un grand angle solide. Ainsi, nous pourrions mesurer avec précision la quantité de matière totale.

Cible	Nombre moyen de coups (coups.s <sup>-1</sup> )	Dispersion (%)
U235_1	1.566	15.5
U235_2	1.518	19.2
U233_1	336.2	5.17
U233_2	328.2	8.01

TAB. 4.5 – Moyenne du taux de comptage pour une cible et dispersion des valeurs.

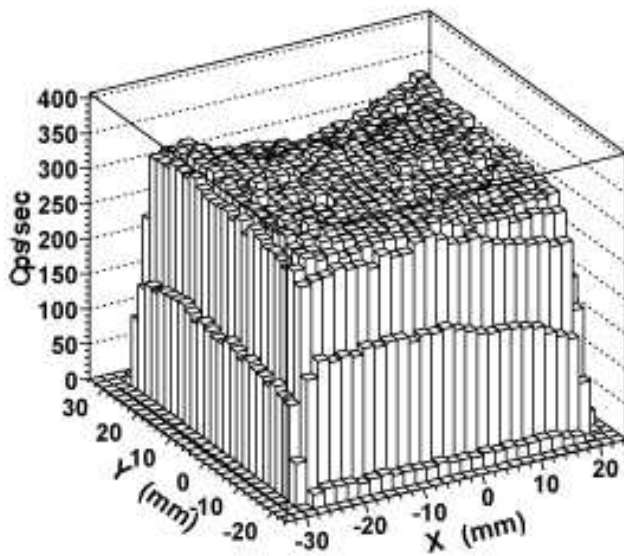
Cible	Epaisseur moyenne (mg · cm <sup>-2</sup> )	Masse d'U (mg)
U235_1	0.2700	6.75
U235_2	0.2618	6.54
U233_1	0.2915	7.29
U233_2	0.2846	7.11

TAB. 4.6 – Quantité totale de matériau fissile déposée pour chacune des cibles à partir de la cartographie.

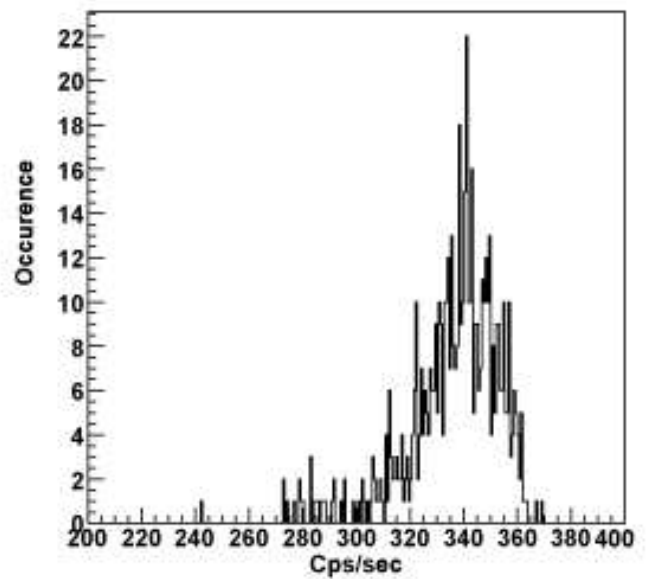
#### 4.6.3.4 Mesure de la quantité totale de matière pour chacune des cibles

Nous faisons une mesure de l'activité totale  $\alpha$  de chacune des cibles à grande distance. Le fait de s'éloigner permet de mesurer avec plus de précision la distance entre l'ensemble "collimateur - jonction silicium" et la cible, et donc l'angle solide. L'erreur induite par un éventuel défaut de parallélisme entre la cible et cet ensemble sur l'angle solide devient moindre à grande distance. Pour ces mesures à longue distance, il a été montré [56] que les incertitudes sur les dimensions de la cible et du diamètre du collimateur sont complètement négligeables devant l'incertitude sur la distance entre la cible et le collimateur. Pour effectuer cette mesure, nous utilisons le système précédent mais avec un seul collimateur, positionné entre la jonction et la cible. Le diamètre de ce collimateur a été mesuré par l'IPNO, grâce à un microscope, à  $15.963 \pm 0.003$  mm. Le dispositif de détection est positionné de façon à visualiser toute la cible tout en gardant un taux de comptage raisonnable. Le collimateur est ainsi placé à  $143.6_{-0.5}^{+0}$  mm de la première cible étudiée (cible n° 1 d'<sup>235</sup>U).

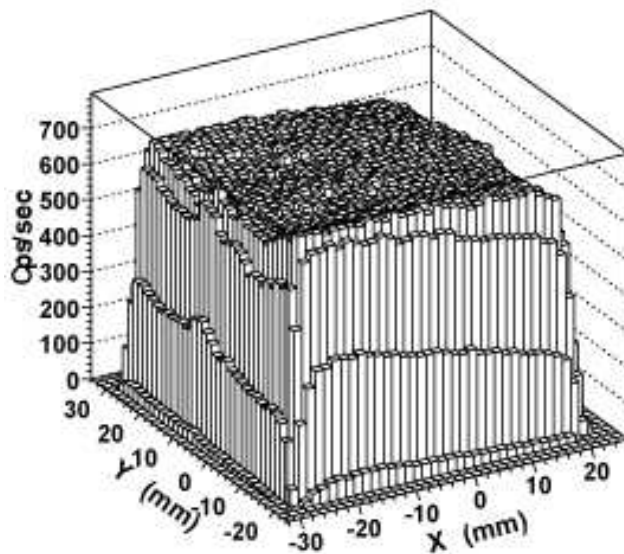
Cartographie des cibles : U233\_1



Spectre sans les effets de bords : U233\_1



Cartographie des cibles : U233\_2



Spectre sans les effets de bords : U233\_2

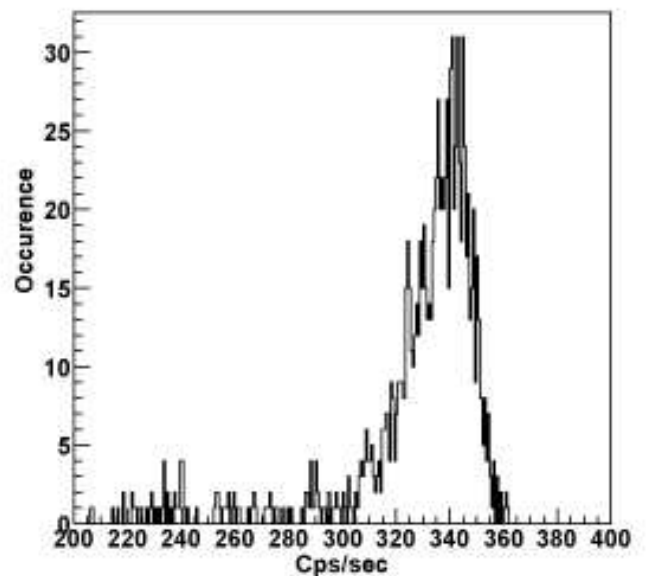
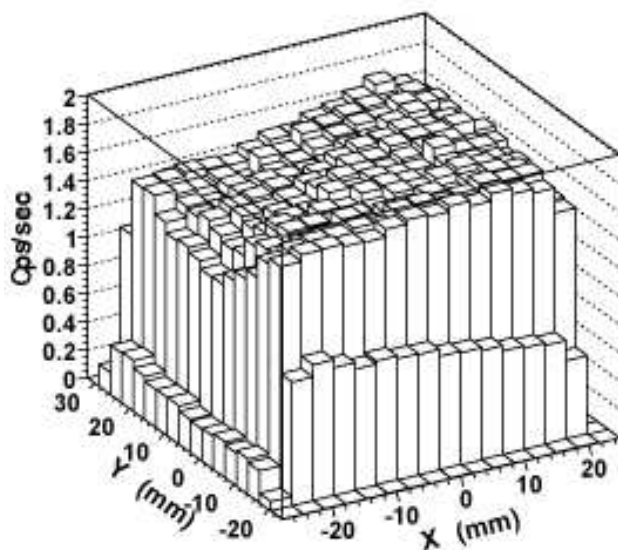
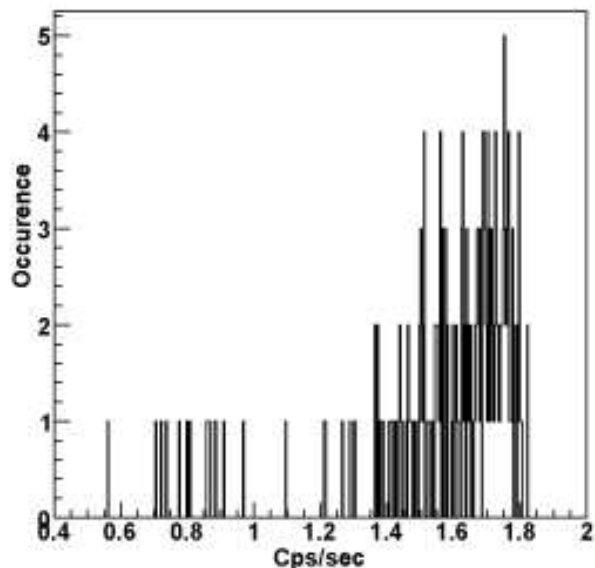


FIG. 4.17 – En haut à gauche, cartographie de la cible n°1 d' $^{233}\text{U}$  non normalisée à la quantité totale de matière évaluée par la mesure à grande distance (pas en x et en y de 2 mm). En haut à droite, spectre du comptage sans les effets de bord de la cible n°1 d' $^{233}\text{U}$ . En bas à gauche, cartographie de la cible n°2 d' $^{233}\text{U}$  non normalisée à la quantité totale de matière évaluée par la mesure à grande distance (pas en x et en y de 1.5 mm). En bas à droite, spectre du comptage sans les effets de bord de la cible n°2 d' $^{233}\text{U}$ .

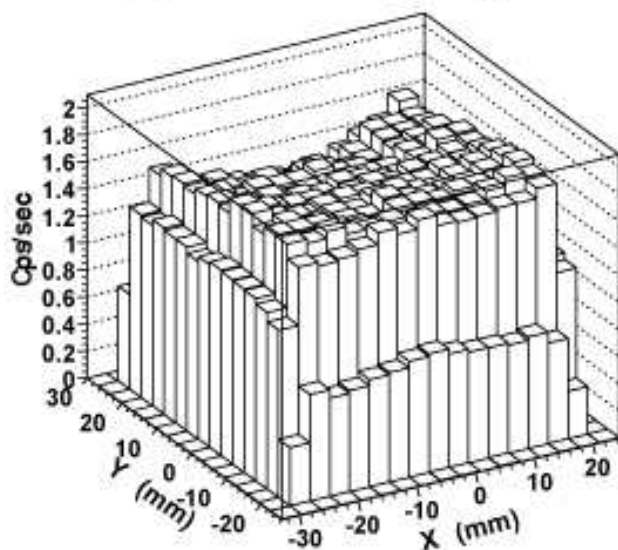
Cartographie des cibles : U235\_1



Spectre sans les effets de bords : U235\_1



Cartographie des cibles : U235\_2



Spectre sans les effets de bords : U235\_2

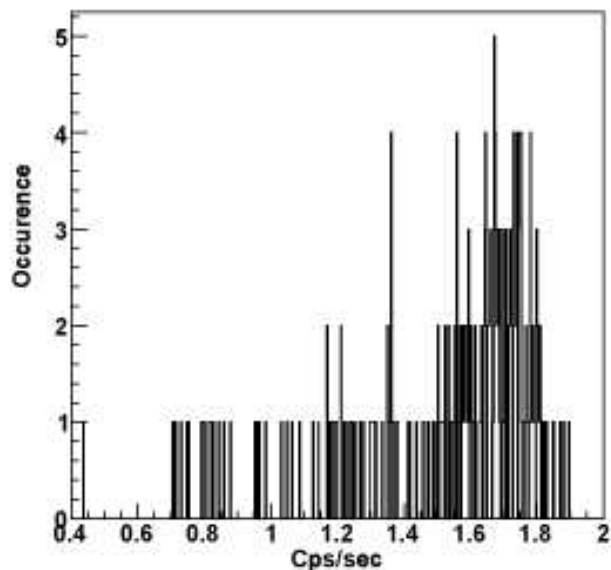


FIG. 4.18 – En haut à gauche, cartographie de la cible n°1 d' $^{235}\text{U}$  non normalisée à la quantité totale de matière évaluée par la mesure à grande distance (pas en x de 3.4 mm et en y de 3.5 mm). En haut à droite, spectre du comptage sans les effets de bord de la cible n°1 d' $^{235}\text{U}$ . En bas à gauche, cartographie de la cible n°2 d' $^{235}\text{U}$  non normalisée à la quantité totale de matière évaluée par la mesure à grande distance (pas en x et en y de 3.5 mm). En bas à droite, spectre du comptage sans les effets de bord de la cible n°2 d' $^{235}\text{U}$ .



Cible	distance de la cible au collimateur (mm)	$\Omega$ normalisé calculé par intégration de Gauss-Legendre (sr)	$\Omega$ normalisé calculé par Monte Carlo (sr)
U235 n°1	143.6 ± 0.5	7.48e-4 (± 0.70 %)	7.46e-04 (± 1.16 %)
U235 n°2	142.5 ± 0.5	7.59e-4 (± 0.70 %)	7.59e-04 (± 1.15 %)
U233 n°1	327.4 ± 0.5	1.480e-4 (± 0.30 %)	1.49e-04 (± 2.59 %)
U233 n°2	327.4 ± 0.5	1.480e-4 (± 0.30 %)	1.49e-04 (± 2.59 %)

TAB. 4.7 – Calcul de l’angle solide normalisé à  $4\pi$  pour chacune des cibles, le diamètre du collimateur étant de 15.98 mm.

Pour cette mesure, il s’agit de relever le nombre de particules  $\alpha$  détectées par la jonction ainsi que le temps d’acquisition. Pour  $^{235}\text{U}$ , le système de détection est placé à 143 mm de la cible. Nous nous attendons à  $\frac{1}{4\pi} * \frac{8^2 * \pi}{143^2} * 12\,000\text{ Bq} = 10$  coups par seconde. Une brève mesure pour vérifier le taux de comptage nous indique  $9.4 \pm 0.4$  coups  $\cdot \text{s}^{-1}$ . De plus, nous savons que le rapport du taux de comptage entre la cible d’ $^{233}\text{U}$  et celle de  $^{235}\text{U}$  vaut environ 200 (en raison de la quantité d’ $^{234}\text{U}$  dans les cibles d’ $^{235}\text{U}$ ). Afin de limiter le temps mort, l’ensemble “collimateur - jonction silicium” est reculé pour les mesures avec les cibles d’ $^{233}\text{U}$ . La distance change de 143 mm à 327 mm, nous nous attendons donc à mesurer  $10 \text{ coups} \cdot \text{s}^{-1} * 200 * \frac{143^2}{327^2} = 380$  coups  $\cdot \text{s}^{-1}$ , soit un coup toutes les 2.6 ms. Il est alors important de vérifier si nous avons un problème de temps mort. Pour cela nous regardons la largeur temporelle du signal induit par une particule  $\alpha$  : 4  $\mu\text{s}$ . Nous nous attendons donc à avoir approximativement  $4/2600 = 0.15\%$  de correction à faire due au temps mort.

Afin de connaître la quantité exacte d’ $^{235}\text{U}$  de la cible, une correction est indispensable. En effet, pour la cible d’ $^{235}\text{U}$ , le principal émetteur  $\alpha$  provient des 0.7472 % d’ $^{234}\text{U}$  contenue dans la cible. L’activité  $\alpha$  de ce matériau n’est donc pas de 80 Bq/mg mais de 1.78 kBq/mg. De plus, nous devons corriger de l’angle solide. Les valeurs calculées sont répertoriées dans le tableau 4.7. Les incertitudes données sur  $\Omega$  calculé par intégration de Gauss-Legendre sont les incertitudes provenant de la distance entre la cible et le collimateur tandis que celles précisées pour les valeurs d’angle solide calculée par Monte Carlo correspondent aux erreurs statistiques qui dominent très largement les incertitudes induites par l’erreur sur la distance cible-collimateur.

Le tableau 4.8 résume les masses totales des cibles. L’incertitude totale donnée sur la masse des cibles provient de l’incertitude statistique (0.31 % pour les cibles d’ $^{235}\text{U}$  et de 0.29 % pour celles d’ $^{233}\text{U}$ ) et de l’incertitude sur l’angle solide. De même pour l’incertitude sur l’épaisseur moyenne, nous ajoutons l’incertitude sur la dimension des cibles à celles calculées précédemment. Les incertitudes sont plus faibles que celles provenant de la cartographie. Nous pouvons alors renormaliser cette dernière avec cette nouvelle mesure globale plus précise.

Pour résumer, la quantité de matière des cibles d’un même isotope présente 0.7 % d’écart pour  $^{233}\text{U}$  et 0.4 % d’écart pour  $^{235}\text{U}$ . Par contre, les cibles d’ $^{235}\text{U}$  et d’ $^{233}\text{U}$  présentent des quantités de matière différentes : il y a en moyenne 3 % de moins d’ $^{235}\text{U}$  que d’ $^{233}\text{U}$ . Cet écart est dû au fait que

Cible	Nombre de coups	Temps de comptage (s)	Taux de comptage (coup/s)	$\Omega$ (normalisé) (sr/4 $\pi$ sr)	Masse de matière fissile (mg)	Épaisseur moyenne ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )
U235 n° 1	105 768	10 800	9.79	$7.48 \cdot 10^{-4}$ ( $\pm 0.7\%$ )	7.35 ( $\pm 1\%$ )	293 ( $\pm 1.3\%$ )
U235 n° 2	106 880	10 800	9.90	$7.59 \cdot 10^{-4}$ ( $\pm 0.7\%$ )	7.32 ( $\pm 1\%$ )	293 ( $\pm 1.3\%$ )
U233 n° 1	119 721	300	399	$1.480 \cdot 10^{-4}$ ( $\pm 0.3\%$ )	7.56 ( $\pm 0.6\%$ )	302 ( $\pm 0.9\%$ )
U233 n° 2	118 890	300	396	$1.480 \cdot 10^{-4}$ ( $\pm 0.3\%$ )	7.51 ( $\pm 0.6\%$ )	300 ( $\pm 0.9\%$ )

TAB. 4.8 – Calcul de la quantité totale de matériau fissile déposée pour chacune des cibles. Les angles solides présentés ici sont ceux donnés par la méthode d'intégration de Gauss-Legendre. Les incertitudes citées sont les erreurs relatives.

$^{235}\text{U}$  a dû être récupéré sur des cibles déjà existantes, opération complexe dont il est très difficile de connaître l'efficacité.

## 4.7 Dispositif expérimental complet

Le schéma 4.3 montre la disposition des scintillateurs et photomultiplicateurs par rapport à la chambre à fission. Ils ont été disposés afin de couvrir au mieux les cibles d'uranium.

Les deux sous-ensembles contenant chacun 4 scintillateurs et leur photomultiplicateur associé, ainsi que la chambre à fission, sont insérés dans le canal central du bloc de plomb. Un système de rail en dural a été fabriqué. La chambre à fission est fixée dessus tandis que les deux sous-ensembles contenant les détecteurs de photons gamma sont fixés sur une plaque en téflon qui peut coulisser le long du rail. Ces derniers peuvent donc se mouvoir facilement et de façon reproductible. Le maximum d'écartement entre la chambre à fission et un sous-système est défini par la position de la vanne de la chambre à fission. Il est de l'ordre de la quinzaine de centimètres. Le rail est installé de façon à ce que la chambre à fission se trouve au niveau du deuxième canal transversal de plomb (cf. figures 4.19). Le dispositif est ainsi placé afin de ne pas être en vision directe des neutrons de 14 MeV.

## 4.8 Description du montage électronique

Dans ce paragraphe, nous allons détailler le traitement électronique effectué sur les signaux bruts sortant des détecteurs afin de les mettre en forme : amplification, passage analogique-numérique, ... Un schéma de cette électronique d'acquisition est représenté figure 4.21.

J'aimerais préciser tout d'abord deux termes qui seront utilisés par la suite :

- J'entendrai par "hardware" tout ce qui se rapporte aux détecteurs et au traitement électronique. Par exemple, la coïncidence imposée en hardware voudra dire que tout un traitement électronique est mis en place afin que l'acquisition n'enregistre que les événements en coïncidence.

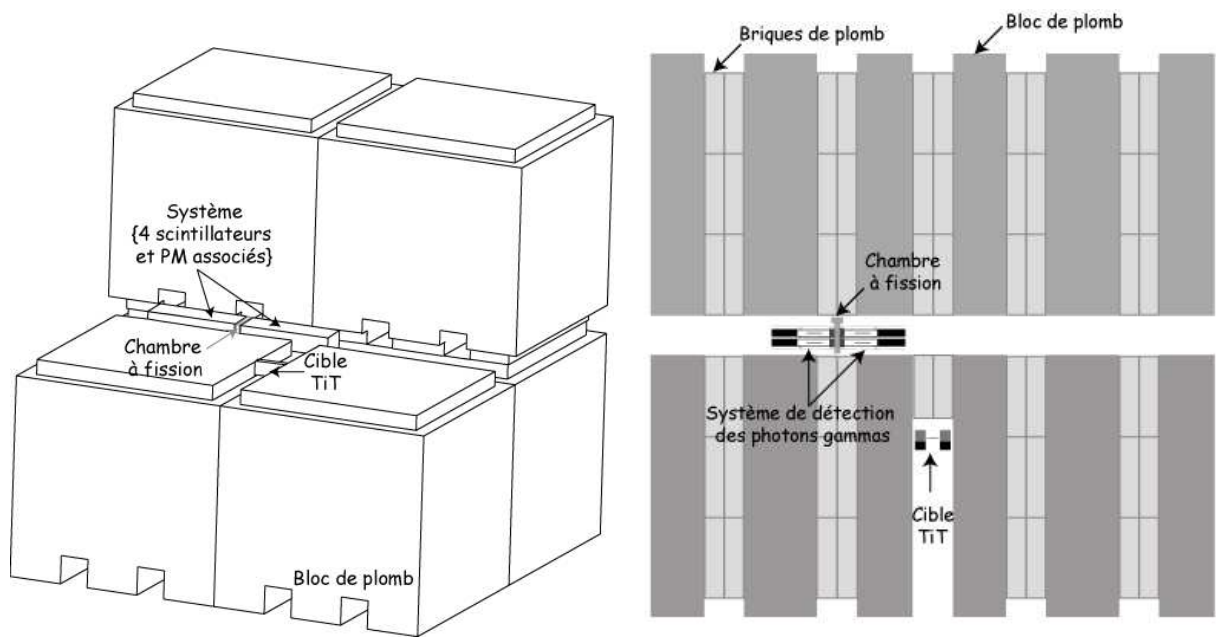


FIG. 4.19 – A gauche, schéma du bloc de plomb, dont on a enlevé 2 cubes, afin de visualiser la position des détecteurs dans le bloc. A droite, schéma en coupe du bloc de plomb afin de visualiser la position des détecteurs par rapport à la cible de TiT où sont émis les neutrons de 14 MeV. Les canaux sont en réalité comblés de briques de plomb hormis le canal contenant les détecteurs.

- Le terme “software” fera référence à l’ensemble des moyens informatiques qui permettent d’effectuer un traitement des données. Faire l’analyse en coïncidence software, par exemple, signifiera que la coïncidence est imposée lors du traitement des données par le programme d’analyse.

La haute tension et l’irradiation dans le hall d’expérience impliquent des contraintes sur l’acquisition des données. Ces dernières se font dans une enceinte fermée puisqu’il est dangereux de rester près de l’expérience lorsque le faisceau est actif. Une partie du montage électronique ainsi que l’acquisition doivent donc impérativement être placés dans une autre salle pour y avoir accès en cours d’expérience. Seuls les alimentations haute tension et les pré-amplificateurs sont situés près des détecteurs. Cela sous-entend que les signaux sont transportés sur de grandes longueurs de câble (plusieurs dizaines de mètres). Ils devront donc être suffisamment amplifiés au départ afin de ne pas être noyés dans le bruit induit par le transport.

Le signal provenant d’un détecteur est divisé à chaque fois en deux signaux identiques subissant un traitement distinct. On obtient alors en sortie :

- Un signal “temps” : il correspond à l’intervalle de temps absolu entre le début de l’acquisition et l’arrivée de la particule interagissant dans le détecteur. Pour l’obtenir, nous amplifions le signal du détecteur avec un amplificateur rapide avant de le mettre en entrée d’un discriminateur. Ce

dernier transforme le signal analogique en signal logique si son amplitude est supérieure à un certain seuil fixé par l'opérateur. Ce signal logique indique la présence d'un événement ainsi que l'intervalle de temps depuis le début de l'acquisition. Lors du traitement en software, nous déduirons le temps relatif par rapport au burst précédant l'acquisition, et donc l'énergie du neutron incident. Ce signal permet de calculer un taux de réaction en fonction de l'énergie du neutron.

- Un signal “énergie” : il correspond à la valeur de l'énergie déposée dans le détecteur. Il est obtenu après amplification par un amplificateur spectrométrique. L'amplitude de ce signal est proportionnelle à l'énergie déposée dans le détecteur.

Le temps zéro de chaque impulsion GENEPI, noté  $T_0$ , est lui aussi relevé. Cette donnée est cruciale pour tracer des spectres en temps relatif. De plus, le paquet de neutrons créés par l'interaction des paquets de deutons dans la cible induit des réactions parasites à nos mesures. Ces événements, de haute énergie et en très grand nombre, augmentent excessivement le bruit de fond sur une plage de temps restreinte et induisent beaucoup de temps mort. Un véto électronique durant un court intervalle au moment de chaque burst est alors indispensable. Le temps  $T_0$  est nécessairement requis pour pouvoir imposer ce véto, nommé “véto pulse”.

#### **4.8.1 Traitement du signal provenant des ensembles [scintillateur YAP - Photomultiplicateur associé] et mise en place de la coïncidence**

Le signal provenant d'un scintillateur YAP est amplifié par le photomultiplicateur associé. Ce signal brut est transféré jusqu'à la salle d'acquisition sans pertes d'informations. Le signal est alors traité comme expliqué dans les paragraphes précédents. Après la sortie du discriminateur, les signaux “temps” ne sont pas acquis directement. Il est possible de ne conserver dans l'acquisition que les événements présentant un signal simultané entre deux YAP quelconques. Les signaux sont traités par un dispositif permettant d'imposer ou non plusieurs coïncidences. La mise en place d'une coïncidence en hardware présente l'avantage de diminuer le taux de comptage ce qui peut être préférable pour l'acquisition (cf partie 4.9.2). Le schéma complet du montage électronique est représenté sur la figure 4.21. Cette coïncidence hardware est effectuée grâce à un deuxième étage de discriminateur pour les signaux temps des scintillateurs YAP. Le premier étage permet d'obtenir un signal somme qui sert alors de véto dans le second étage. Nous pouvons ainsi demander une coïncidence double (au moins 2 photons gamma détectés dans deux scintillateurs différents), triple (au moins 3 photons gamma détectés), etc. Pour cela, le signal somme passe dans un discriminateur à fraction constante dont on peut régler la valeur du seuil. La mise en place de retards est alors indispensable. La sortie de ce montage est traitée par la carte d'acquisition. Tous les signaux des scintillateurs YAP subissent le même traitement. Il est également possible d'imposer la coïncidence lors du traitement software. Le véto sur la coïncidence est enlevé et tous les événements sont enregistrés (événements dits “single”). Aucune information n'est perdue mais le taux de comptage est plus élevé.

## 4.8.2 Traitement du signal provenant de la chambre à fission

Comme toute chambre d'ionisation, cette dernière doit être polarisée. Ici, la tension de polarisation est de 500 V. Le choix de cette haute tension est justifié dans le chapitre 5. Le signal provenant de la chambre est directement préamplifié. On obtient alors les signaux "énergie" et "temps" par le même traitement que pour les scintillateurs YAP.

Enfin, le signal provenant du détecteur silicium, indispensable pour la mesure du flux de neutrons, subit un traitement similaire à celui de la chambre à fission. Le signal est alors traité comme expliqué ci-dessus.

## 4.8.3 Réglages de l'électronique

Une fois le montage électronique effectué, plusieurs réglages ont été indispensables. Le détail de ces réglages est donné en annexe A. Les plus importants sont :

- Les gains des divers amplificateurs pour les signaux énergie ont dû être ajustés afin d'éviter la saturation de l'acquisition.
- La coïncidence entre les différents scintillateurs YAP a dû être réglée.
- Des lignes à retard ont été mises sur les discriminateurs, dont les seuils ont été réglés eux-aussi.

Un autre paramètre électronique a dû être ajusté : il s'agit du véto pulse. La largeur de ce véto résulte d'un compromis entre la minimisation du bruit à haute énergie, et la minimisation des pertes de signal. Nous avons vérifié que ce bruit provenait effectivement de phénomènes ayant lieu juste après le burst en traçant un spectre donnant le taux de comptage en fonction de l'énergie déposée dans le YAP et du temps d'arrivée de la particule (figure A.1). Nous voyons que les événements ayant une amplitude supérieure à 2 000 canaux sont très majoritairement situés pour des temps inférieurs à  $20 \mu\text{s}$  (deuxième graphique de la figure A.1). Environ  $1.7 \cdot 10^{-2} \%$  sont situés au delà de  $20 \mu\text{s}$  (premier graphique de la figure A.1). Ces événements correspondent aux événements de hautes énergies dus au burst, empilements de rayons X par exemple. De plus ces événements, quasiment toujours en coïncidence huit, induisent des signaux énergie de très fortes amplitudes (supérieures à la dizaine de volts) et ayant une forme que les détecteurs de crête de l'acquisition ont du mal à gérer. En outre, ce "flash" introduit un temps mort relativement élevé perturbant la détection des événements suivants. En effet, ces événements de hautes énergies représentent quasiment 97 % de la totalité des événements acquis. Nous avons donc imposé un véto électronique pour les scintillateurs YAP, réglé à  $4.5 \mu\text{s}$  (à partir du T0). On coupe quasiment tous ces événements : 2.4 % ne sont pas supprimés. Quant à la chambre à fission, nous n'imposons aucun véto.

## 4.9 L'acquisition

Les signaux sont envoyés vers un système d'acquisition composé de deux cartes ADCVME relié à un module de stockage de données via le logiciel OASIS [55]. Chaque voie d'une carte ADCVME comporte une entrée "énergie" et une entrée "temps". Une voie est réservée à l'impulsion GENEPI.

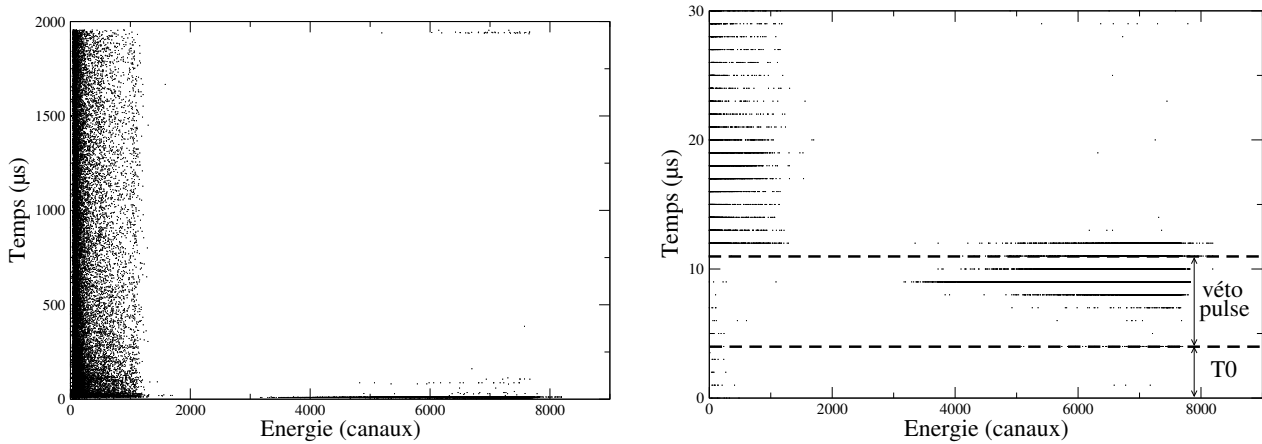


FIG. 4.20 – Spectre en énergie et en temps du YAP 2 lors d’une acquisition avec faisceau, avec coïncidence hardware double mais sans veto pulse sur toute la plage en temps (à gauche) et sur les temps courts uniquement (à droite).

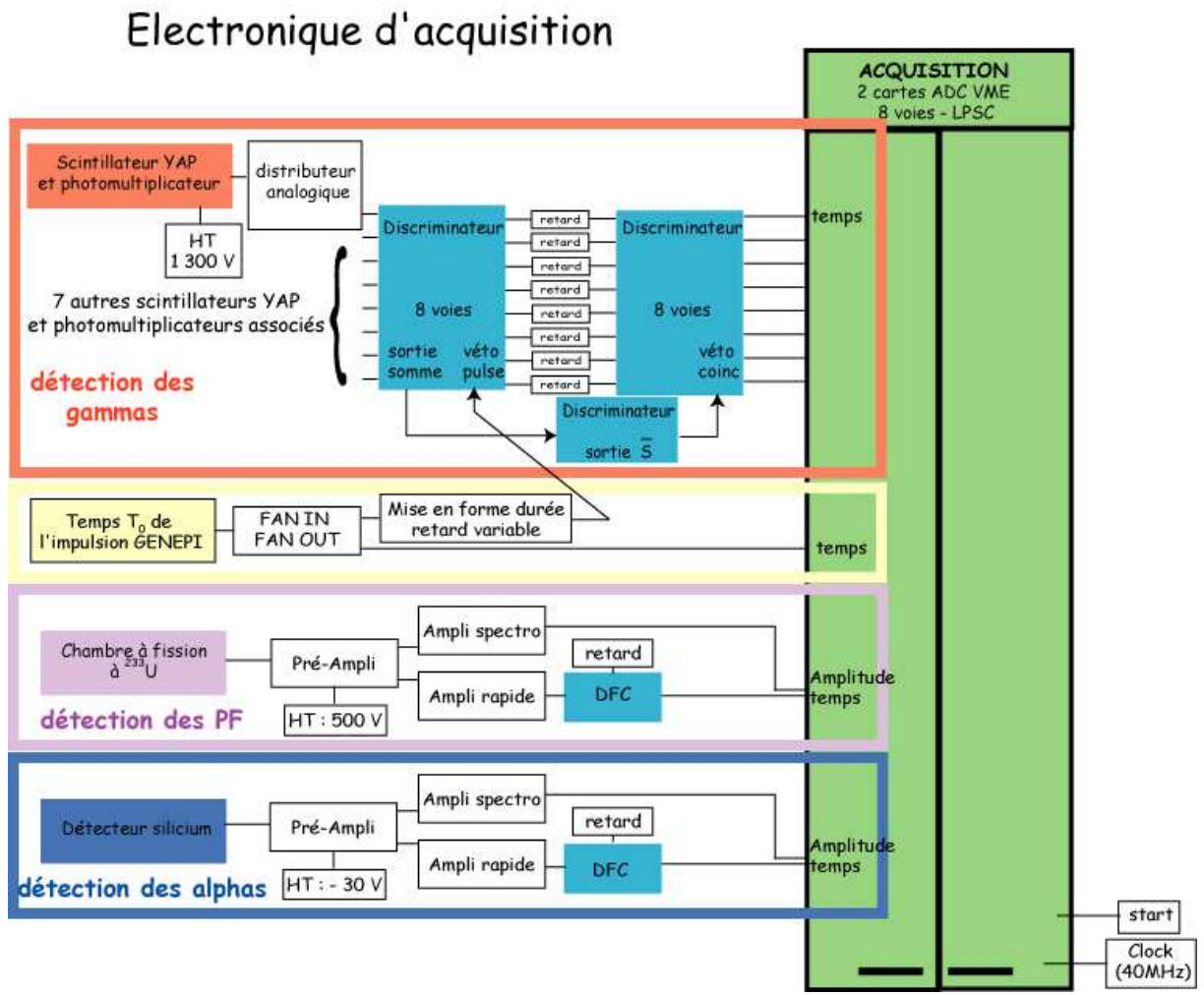


FIG. 4.21 – Schéma simplifié de l’électronique pour les scintillateurs YAP et la chambre à fission, pour la mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{233}\text{U}$ , ainsi que l’électronique pour le détecteur silicium.

Le module de stockage reçoit alors simultanément une information sur l'amplitude du signal et sur son temps d'arrivée. L'amplitude du signal est codée sur 13 bits ce qui correspond à une dynamique de 8 V. Le signal temps correspond au temps absolu par rapport au zéro de l'horloge de la carte. Cette horloge a une fréquence de 40 MHz. Les canaux temps valent donc 25 ns chacun.

Pour chaque acquisition, nous obtenons un fichier contenant une suite d'événements. Chaque événement contient plusieurs informations :

- Le numéro de la carte ainsi que le numéro de la voie d'où provient le signal. Nous pourrions alors identifier le signal : pulse GENEPI ou détecteur (scintillateur, chambre à fission, ou Silicium).
- L'amplitude du signal détecté, directement proportionnelle à l'énergie déposée par les particules détectées.
- Le temps absolu par rapport au temps initial de la carte sur laquelle est codée le signal.
- Un bit d'empilement. Ce bit, par défaut à 0, prend la valeur 1 si un signal temps arrive pendant le codage de l'amplitude d'un événement. Ce bit indique donc que le signal codé est susceptible d'être déformé par la superposition de deux événements non résolus.

Un format spécifique à l'acquisition est utilisé. Un programme informatique est alors indispensable pour remettre ces données sous un format utilisable. Ce programme permettra, en outre, d'analyser les données.

#### **4.9.1 Utilisation de deux cartes d'acquisition**

Etant donné le nombre de détecteurs (10 au total), il n'a pas été possible de coupler deux voies entre elles pour un même détecteur afin de réduire le temps mort (cf partie 4.9.2.1). De plus, nous avons dû utiliser deux cartes d'acquisition couplées entre elles, puisque chacune d'entre elles comporte 8 voies d'acquisition. C'est la première fois que ce système a été utilisé. La prise des données définitives a donc nécessité une bonne compréhension de ce nouveau mode de fonctionnement.

Les deux cartes sont synchronisées puisque l'horloge est mise en entrée sur les deux cartes. Un système simple, composé d'un pulseur et d'un interrupteur, a été installé afin d'initialiser les cartes au même instant. En effet, après un reboot du système, les cartes, bien que synchronisées, n'avaient pas le même temps initial. Or, comme le signal T0 provenant de GENEPI est en entrée seulement sur la carte 1, il n'est pas possible de construire correctement les spectres de la deuxième carte si les deux cartes n'ont pas le même temps initial.

Il s'est avéré que les deux cartes ne sont pas parfaitement synchronisées. Elles se décalent légèrement en temps au cours d'une prise de données. Cela provient très certainement du fait qu'un événement de bruit passe le seuil du DFC qui code l'impulsion sur la carte ou qu'une impulsion n'est pas codée. Le décalage en temps pouvait être de plus de 4  $\mu$ s sur des runs de 8 h. Le seuil du DFC a alors été modifié à la baisse afin de prendre en compte les impulsions qui n'étaient pas comptabilisées. Cela a permis de diminuer ce décalage. Après réglage du seuil, sur une prise de données de 10 heures, le décalage peut être de 2  $\mu$ s. Cela correspond à un "oubli" d'une impulsion toutes

les  $20 \cdot 10^9$  impulsions. Cette erreur, extrêmement rare, est tout de même pénalisante puisque la coïncidence est demandée à moins de 125 ns près. Il est donc indispensable de prendre en compte ce décalage pour effectuer la coïncidence software entre les scintillateurs, ou lorsque l'on veut tracer le spectre en temps relatif de coïncidence ou d'anti-coïncidence entre un scintillateur YAP et la chambre à fission. Pour cela, nous avons mis en entrée de chacune des cartes un signal temps parfaitement identique : le temps du détecteur Silicium. Le programme d'analyse peut alors calculer le décalage en temps entre les deux cartes et corriger ainsi les événements en temps avant analyse. Ce décalage varie au fur et à mesure de l'acquisition. Une fois l'acquisition effectuée et grâce aux deux mesures du temps du détecteur Silicium, le programme d'analyse est capable de prendre en compte la variation en temps des cartes. Pour limiter ce problème, avant chaque nouvelle acquisition, nous réinitialisons systématiquement les deux cartes grâce à notre montage simple.

## **4.9.2 Optimisation du taux de comptage et fonctionnement stable de l'acquisition**

Une mise au point a été indispensable pour que le système d'acquisition fonctionne de façon parfaitement stable et avec un taux de comptage raisonnable. Un taux de comptage élevé est indispensable pour obtenir une statistique suffisante en un temps d'acquisition raisonnable. En revanche, cela implique deux problèmes principaux : le temps mort est plus important, et les événements hautes énergies sont plus nombreux. Après une description plus précise de ces deux problèmes, nous détaillerons les solutions possibles avec leurs avantages et leurs inconvénients. Nous concluerons en précisant quel est le réglage que nous avons finalement choisi suite aux conclusions de notre série de mesures.

### **4.9.2.1 Inconvénients d'un fort taux de comptage**

#### **Temps mort provenant de l'acquisition**

Plusieurs sources de temps mort proviennent de l'acquisition. La première est le temps mort dû au codage. Afin de limiter ce temps mort, il est possible de coupler les voies d'acquisition deux par deux. Lorsqu'une voie traite une donnée et qu'une autre impulsion arrive, la deuxième voie peut donc prendre le relais pour le codage. On diminue ainsi le temps mort d'un facteur proche de deux. De plus, la carte d'acquisition ne code un événement que lorsque le signal temps est suivi par un signal énergie. Lorsque ce signal a une amplitude trop grande ou une forme difficilement interprétable, le détecteur de crête qui code la voie en énergie va ralentir le codage, voire se bloquer. C'est seulement quand le courant de fuite sera retombé à zéro que le détecteur pourra à nouveau fonctionner.

La deuxième source de temps mort est due au transfert des données de la carte d'acquisition au module de stockage (disque de la station SUN). En effet, la carte d'acquisition remplit une mémoire-tampon (ou buffer) et transfère les données dès que celui-ci est plein. Plus le taux de comptage est important, plus le remplissage du buffer est rapide. Un paramètre limitant est donc la vitesse de transfert des données. Pour l'estimer grossièrement, nous comparons le nombre de T0 acquis par rapport



au nombre de T0 attendus au vu de la durée de l'acquisition. En fonction des différents réglages possibles, ce terme peut varier de 10 % à moins de 1 %.

### **Événements de haute énergie**

Augmenter le taux de comptage induit, lors du burst, énormément d'événements de haute énergie. Le véto pulse permet d'en éliminer la très grande majorité. Les rares événements passant au delà du pulse sont de l'ordre de la dizaine de volts. Ils peuvent atteindre jusqu'à la trentaine de volts. L'électronique d'acquisition n'est absolument pas prévue pour de tels signaux. Certains, en dépit de nos soins pour les éliminer, passeront malgré tous les seuils, filtres, etc.

Un des problèmes majeurs est que l'acquisition n'arrive pas à détecter la crête de ces signaux : les signaux, en plus d'avoir une amplitude supérieure à la limite des 8 V, ont une forme non conventionnelle. La voie d'acquisition ne reprend alors un nouvel événement que lorsque le courant de fuite est retombé à zéro soit environ quelques secondes plus tard. L'acquisition est donc bloquée pendant tout ce temps et l'analyse des données n'a alors plus aucun sens.

De plus, les rares événements hautes énergies détectés ne sont pas tous pris en compte de la même façon selon la voie d'acquisition. Les détecteurs de crête réagissent tous différemment face à de tels signaux. Le comptage entre les scintillateurs YAP diffère donc entre eux et entre les différentes acquisitions, comme l'illustre la figure 4.22. Ceci est absolument inacceptable. Il est donc capital de s'affranchir de ces comportements non maîtrisés des détecteurs de crête dus à ces signaux. Il nous est indispensable d'avoir une électronique parfaitement stable. C'est d'autant plus important que pour mesurer le rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{233}\text{U}$ , nous avons besoin de plusieurs semaines de prises de données. Or, la durée d'une acquisition est de quelques heures seulement, la taille des fichiers d'acquisition étant limitée à 2 giga-octets. Nous serons donc obligés de sommer de nombreuses données provenant d'acquisitions différentes lors de l'analyse. La stabilité de l'électronique est donc absolument essentielle pendant tout ce temps.

Les deux inconvénients précédents sont d'autant plus marqués que le taux de comptage est fort. Il paraît judicieux de diminuer le taux de comptage afin de limiter les problèmes induits. Cependant, nous tenons à préserver une statistique importante. Il est donc nécessaire de modifier d'autres paramètres.

#### **4.9.2.2 Paramètres accessibles pour un fonctionnement de la carte d'acquisition optimal**

Nous avons accès à plusieurs paramètres pouvant pallier aux deux problèmes précédents : conditions de fonctionnement du faisceau GENEPI, acquisition ou non des signaux "énergie", et utilisation de la coïncidence hardware. Des campagnes de mesures spécifiques ont été effectuées afin de trouver le réglage optimal.

#### **Conditions de faisceau : intensité, fréquence et état de la cible TiT**

Lors des premières microsecondes suivant le pulse, le comptage instantané peut être très important. De plus, c'est aussi lors des instants suivant le burst, que les événements hautes énergies sont présents.

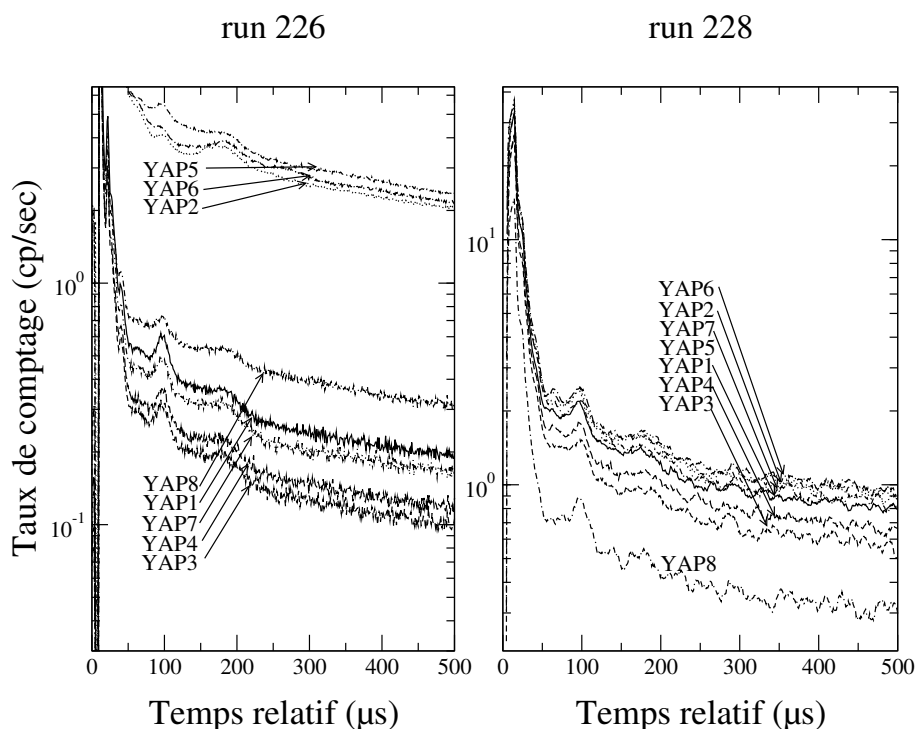


FIG. 4.22 – Visualisation des spectres en temps relatif des scintillateurs YAP, la chambre à fission d' $^{235}\text{U}$  étant présente, pour deux acquisitions quelconques séparées seulement d'une heure. Les conditions expérimentales (détecteurs, électronique, etc) sont rigoureusement identiques. De telles variations de taux de comptage ne sont absolument pas acceptables.

Il semble donc préférable de diminuer le taux de comptage instantané pour résoudre les problèmes de blocage de l'acquisition.

Afin d'obtenir un taux de comptage instantané moindre tout en gardant un taux de comptage moyen similaire, nous pouvons diminuer l'intensité faisceau et augmenter la fréquence des impulsions (de 500 Hz à 1000 Hz par exemple). Il y a donc un compromis à faire entre le taux de comptage moyen et la fréquence d'acquisition acceptable. Or, dans le chapitre 3, partie 3.3.2, il est expliqué qu'il est préférable de fonctionner à 500 Hz afin de limiter au maximum un repli du spectre de fission. Il semble donc plus judicieux de rester à 500 Hz et de diminuer l'intensité faisceau en conséquence.

De plus, le nombre de neutrons par burst diminue en fonction de l'usure de la cible TiT (perte du tritium par l'utilisation de la cible et par dégazage principalement) (cf chapitre 3). Le taux de comptage est adapté en modulant l'intensité faisceau.

### Mise en place de la coïncidence hardware

Comme nous l'avons vu précédemment, la coïncidence entre les scintillateurs YAP permet d'augmenter le rapport signal sur bruit. Un avantage supplémentaire de cette coïncidence hardware est de limiter le taux de comptage. Elle permet au système d'acquisition de fonctionner correctement. Néanmoins, il y a une perte d'informations inéluctable lors des prises de données en coïncidence hardware. En effet, ne pas imposer de coïncidence nous permet de calculer des efficacités de détection (de la

fission, par exemple), de recalculer précisément les spectres en temps de la chambre à fission par rapport aux scintillateurs YAP, etc. Il est donc préférable de ne pas imposer de coïncidence hardware, dans la mesure du possible.

### Acquisition des signaux “énergie”

Une autre solution pour pallier aux problèmes cités ci-dessus est de ne plus coder les énergies des scintillateurs YAP. L’acquisition ne pose alors plus de problème quel que soit le taux de comptage. Cependant, cela nous prive de toute analyse possible avec les signaux “énergie” des scintillateurs YAP (imposition d’un seuil haut en énergie afin d’éliminer proprement les quelques événements hautes énergies restants, par exemple). Notez qu’avec la série de scintillateurs d’épaisseur 2 mm, le peu de dépôt d’énergie (provenant essentiellement d’effet Compton) ne pourra pas être véritablement significatif. Une analyse utilisant l’amplitude des scintillateurs étant quasiment impossible, l’absence des données “énergie” ne fera pas véritablement défaut.

#### 4.9.2.3 Conclusion

Nous avons dû choisir entre toutes les possibilités citées ci-dessus pour obtenir une acquisition stable, avec peu de temps mort et en perdant le moins d’informations possible. Nous avons finalement décidé de prendre les données dans les conditions suivantes :

L’acquisition s’effectue avec une fréquence de l’impulsion GENEPI de 500 Hz et une intensité de faisceau optimale. Il a été choisi de ne pas stocker les vrais signaux énergies des scintillateurs YAP, un “faux” signal étant implémenté dans l’entrée “énergie” de l’acquisition (cf remarque suivante). Sans le codage des énergies des scintillateurs YAP, l’acquisition ne pose plus de problème. La majorité des données a donc été prise sans coïncidences hardware. Celles-ci pourront être imposées par le programme d’analyse. Nous gardons ainsi toutes les informations lors de la prise de données. L’avantage est que l’on peut alors modifier la largeur temporelle de la coïncidence. Le taux de comptage est plus important que lors d’une mesure en coïncidence et le temps mort dû à l’acquisition reste acceptable. Un inconvénient subsiste néanmoins : il faut prendre en compte le décalage en temps des cartes d’acquisition lors de la mesure. Ce problème n’existe pas pour la coïncidence hardware entre les scintillateurs YAP<sup>2</sup>, mais il subsiste pour les coïncidence entre les scintillateurs et la chambre à fission.

En fonction de l’usure de la cible, une acquisition dure de 5 heures ( $10^6$  neutrons par pulse) à 25 heures (200 000 neutrons par pulse) environ. Dans la pratique, nous n’effectuons pas d’acquisitions de plus de 10 heures afin que le décalage en temps entre les deux cartes reste raisonnable (inférieur à 100 canaux soit  $2.5 \mu\text{s}$ ). Chaque mesure (signal ou bruit de fond) correspond à une durée d’acquisition de 200 heures minimum pour une cible neuve de TiT, ce qui représente une quinzaine de jours de prise de données.

---

<sup>2</sup>si on n’impose pas un taux de coïncidence plus élevé en software que celui choisi en hardware par la suite...

Remarque : L'acquisition est prévue pour fonctionner avec un signal "énergie". Si l'on n'acquiert plus l'amplitude des scintillateurs, nous devons créer impérativement des "faux" signaux. Ils doivent être liés aux signaux "temps" des scintillateurs, afin de remplir les conditions de fonctionnement de l'acquisition. Ces "faux" signaux présentent l'avantage supplémentaire de limiter le temps mort pour le codage.

Néanmoins, l'ancien montage de traitement du signal "énergie" avec les amplificateurs spectrométriques est toujours indispensable, notamment pour régler les gains des scintillateurs YAP grâce à la source de  $^{137}\text{Cs}$ . Tous les scintillateurs ont alors le même gain en énergie, ce qui est indispensable pour régler les seuils des DFC pour le signal "temps".

### 4.9.3 Programme d'analyse

Les données enregistrées par le système d'acquisition ne sont pas lisibles directement. Un traitement informatique assez complexe est nécessaire. Les signaux codés par une carte remplissent une mémoire tampon (buffer). Chaque carte a son propre buffer. Lorsqu'un et un seul buffer est plein quelle que soit la carte, il y a transfert total des données au système d'enregistrement. C'est pourquoi, il est préférable de mettre, sur chacune des cartes, des détecteurs ayant des taux de comptage globalement similaires de façon à ce que le remplissage des buffers soit effectué à peu près à la même vitesse. Le fichier est donc constitué par une alternance de buffers de la première carte et de la deuxième carte. De plus, les événements ne sont pas classés parfaitement par ordre chronologique dans un buffer d'une même carte. Et enfin, nous rappelons que le T0 qui indique l'impulsion GENEPI et qui sert de référence pour construire un spectre en temps relatif ne se trouve que sur la première carte.

Il est capital de réordonner tous les événements par ordre chronologique pour pouvoir construire les spectres correctement. C'est une des difficultés majeures de ce programme. Quelques particularités de l'acquisition sont à prendre en compte :

- Le temps absolu de l'horloge de l'acquisition est codée sur 42 bits. Au bout de plus d'une trentaine d'heures d'acquisition, l'horloge se remet à zéro. Les événements postérieurs à ce basculement d'horloge semblent alors arriver avant ceux qui précèdent le basculement. Lors du tri des événements, il faut prendre en compte ce grand écart en temps en ajoutant alors  $2^{42}$  "coups d'horloge" fictivement à tous les événements postérieurs au basculement d'horloge.
- Des événements incontestablement erronés (où tous les bits sont égaux à 1) apparaissent dans ce fichier. Ils sont systématiquement supprimés.

Ce programme a été amélioré en fonction des besoins propres à notre mesure au fur et à mesure de l'analyse. Il avait été écrit pour traiter des fichiers sortie lorsque seulement une seule carte d'acquisition codait. En utilisant deux cartes, il a fallu prendre en compte le décalage en temps entre les cartes, décalage évoluant au cours d'une même acquisition. Pour cela, un même signal temps est acquis sur chacune des cartes. Les voies correspondantes sont déclarées comme référence afin que le programme puisse calculer au fur et à mesure du traitement le décalage en temps de la deuxième carte par rap-

port à la première afin de le corriger. Le tri des événements par ordre chronologique pourra se faire seulement une fois cette correction effectuée.

De plus, il a fallu programmer toute la partie concernant la prise en compte de la multiplicité entre les scintillateurs afin de pouvoir analyser les données avec une coïncidence double, triple, etc.

Une fois les données parfaitement triées, nous pouvons tracer les spectres utiles à l'interprétation : spectre en temps relatif (l'origine étant toujours le temps de l'impulsion GENEPI), et en temps absolu, spectre en temps relatif avec des conditions sur le temps absolu (on peut donc enlever certaines périodes ou ne regarder que le début d'une expérience par exemple), ou encore spectre avec des seuils en énergie, spectre en coïncidence, en anti-coïncidence, etc. Rappelons que l'on entend ici par spectre, un graphe représentant le nombre d'événements mesurés et classés selon leur énergie (dans les YAP, ou dans la chambre), selon les temps (absolu ou relatif à T0) ...

Afin de valider le programme d'analyse, nous avons comparé deux spectres en coïncidence double. Le premier est obtenu à partir d'une acquisition avec une coïncidence double imposée en hardware. Le deuxième spectre est obtenu à partir d'une acquisition identique à la première mais sans coïncidence hardware, la coïncidence double étant alors imposée en software. Les spectres obtenus sont montrés sur la figure 4.23. Les deux spectres sont normalisées grâce au détecteur Silicium, et le bruit de fond dû à l'activation des matériaux a été retranché. La forme des spectres est parfaitement identique, mais une différence de comptage entre ces deux acquisitions est visible. Le spectre en coïncidence hardware contient 2.4 % d'événements en moins que le spectre software, les erreurs statistiques étant inférieures à 0.2 %. Cet écart est dû aux différences de largeurs de coïncidence qui sont non rigoureusement identiques. Ainsi, nous sommes assurés du bon fonctionnement du programme d'analyse.

L'avantage de faire ce traitement en software est que l'on peut faire varier la largeur de la coïncidence. Il devient également possible de décaler en temps une voie, etc, alors que ces valeurs sont imposées par le réglage de l'électronique lors d'une acquisition en coïncidence hardware. Cela a permis de mesurer le retard en temps entre la chambre à fission et les scintillateurs YAP, soit 75 ns. Le spectre correspondant à la différence de temps entre les événements des scintillateurs YAP et de ceux de la chambre à fission à  $^{235}\text{U}$ , avec faisceau, est montré sur la figure 7.6. Le pic correspond aux événements de fission. Le signal en temps de la chambre à fission est donc en retard de 3 canaux de 25 ns chacun par rapport au signal temps des scintillateurs. De plus, nous pouvons déduire de cette figure qu'une largeur de coïncidence de 125 ns est la plus appropriée entre les scintillateurs et la chambre à fission (cf chapitre 7).

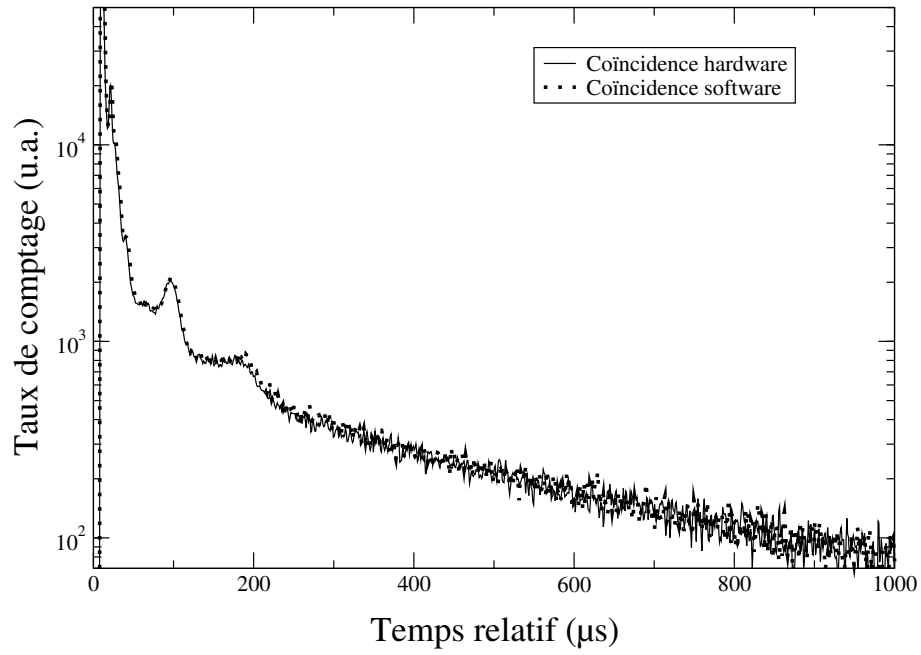


FIG. 4.23 – Spectres en coïncidence double dans les scintillateurs YAP obtenus directement grâce à l'électronique d'acquisition (courbe pleine) ou grâce au programme d'analyse (courbe pointillée).



# Chapitre 5

## Etude des chambres à fission à $^{235}\text{U}$ et à $^{233}\text{U}$

Pour obtenir la précision la plus grande possible sur les mesures des rapports  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  et de l' $^{233}\text{U}$ , le choix de la géométrie de la chambre à fission est véritablement crucial. Il a fallu conceptualiser entièrement une chambre à fission adaptée à notre mesure. Ce chapitre est consacré à toute l'étude effectuée sur les chambres à fission allant de la conception aux premiers tests de caractérisation une fois les chambres à fission réalisées.

D'un point de vue purement physique, la chambre à fission doit répondre à deux critères impératifs. L'efficacité de détection de la fission doit être très bonne, et être connue de manière suffisamment précise puisqu'elle détermine la précision de la mesure du rapport  $\alpha$ . Le deuxième critère est une bonne séparation entre le spectre en énergie des particules  $\alpha$  émis par désintégration de l'uranium (bruit de fond) et le spectre en énergie des produits de fission. Lors de la conception de la chambre à fission, nous nous sommes efforcés de satisfaire à ces exigences, compte tenu des autres contraintes existantes (sûreté, faisabilité mécanique, fabrication, dimensions, budget). Pour cela, un programme permettant de simuler le transport des particules, plus particulièrement des produits de fission, dans la matière est nécessaire. Comme ce programme informatique doit pouvoir prendre en compte la géométrie complexe de la chambre à fission, j'ai développé un code en C++ de transport de produits de fission de l' $^{233}\text{U}$  ou de tout autre élément fissile dans la matière.

La première partie de ce chapitre est consacrée à une description de ce code. Nous détaillons les étapes de validation de ce code afin de connaître ses limites. Ce code nous permettra de déterminer les caractéristiques géométriques de la chambre à fission et des cibles d'uranium. La deuxième partie décrit les cibles d' $^{235}\text{U}$  et d' $^{233}\text{U}$ . Les aspects principaux concernant la fabrication mais aussi la caractérisation de celles-ci sont développés. Enfin, la troisième partie détaille les caractéristiques mesurées de ces chambres à fission. Des comparaisons avec les simulations obtenues dans la première partie de ce chapitre sont alors effectuées.



## 5.1 Code Monte-Carlo de Transport de Produits de Fission (MCTPF)

Ce code s'avère indispensable pour définir les caractéristiques de la chambre à fission que nous souhaitons utiliser, avant sa conception. Grâce à un tel programme, une étude paramétrique en fonction des caractéristiques de la chambre à fission, que ce soit la distance entre les cibles, la pression du gaz ou encore l'épaisseur de la cible d' $^{233}\text{U}$  ou d' $^{235}\text{U}$ , a ainsi pu être effectuée permettant la définition des caractéristiques optimales.

MCTPF est un code Monte Carlo qui nous permet d'estimer un très grand nombre de données de façon statistique : le nombre de produits de fission sortant de la cible ainsi que leur énergie résiduelle et l'énergie déposée dans le gaz de la chambre, ... On peut donc estimer les efficacités, géométrique et totale, du montage expérimental. Les parcours des particules ou encore leur trajectoire peuvent aussi être déterminés.

Dans cette partie, nous allons décrire les différents principes du code, puis nous exposerons les méthodes mises en oeuvre pour le valider ainsi que les résultats de cette validation.

### 5.1.1 Description de MCTPF

L'interaction des produits de fission dans la matière est un phénomène probabiliste facilement représentable par des modèles statistiques. La méthode Monte-Carlo est donc particulièrement bien adaptée à notre problème. En effet, elle permet l'évaluation quantitative de processus stochastiques tels que le transport de particules dans la matière.

Le principe de cette méthode consiste à réaliser un échantillonnage numérique des possibilités d'évolution d'un système décrit par une ou plusieurs densités de probabilité. Cela signifie que l'on suit individuellement chaque particule depuis sa naissance jusqu'au moment où elle cesse de présenter un intérêt pour le problème en question, tout en déterminant les caractéristiques du système. L'aspect probabiliste est intégré dans le choix de ces dernières : tout au long de l'histoire de la particule, ces caractéristiques sont sélectionnées aléatoirement en respectant les densités de probabilité propres au problème. C'est pourquoi, pour une même simulation lancée plusieurs fois, les résultats obtenus varient : ils sont dispersés autour des valeurs moyennes théoriques au même titre que des résultats expérimentaux. Notons cependant que, pour avoir des résultats cohérents, il est nécessaire de transporter un grand nombre de particules.

#### 5.1.1.1 Description du fichier de configuration

A chaque lancement d'une simulation, le code de simulation utilise un fichier de configuration, dans lequel sont précisés les paramètres suivants :

- Le numéro et la masse atomiques de l'élément fissile dont on veut transporter les produits de fission associés. Les rendements de fission pour chaque produit de fission (défini par son nu-

méro et sa masse atomiques) sont répertoriés dans des bases de données. Leur énergie moyenne et l'écart-type associé sont également connus.

- Le nombre total de produits de fission qui vont être transportés par le code. Plus ce nombre sera grand, plus l'incertitude statistique relative sera faible et donc le résultat de la simulation précis.
- La description de la géométrie de la chambre à fission.

La description de la géométrie doit être très précise et adaptable à toutes formes de géométries possibles (chambres à fission carrée, cylindrique, ...). Pour cela, plusieurs étapes sont nécessaires. Tout d'abord, nous déclarons tous les matériaux utilisés de façon à ce que le programme aille chercher les tables de parcours associées données par SRIM [41]. Notez que les incertitudes des tables de parcours sont de l'ordre de 10 à 20 %. La densité du matériau est précisée. Un même matériau, gaz Argon par exemple, pour deux densités différentes, nécessite donc deux déclarations avec deux noms de matériaux différents. La deuxième étape consiste à créer toutes les cellules de façon purement géométriques. Chaque cellule est définie par sa forme (parallélépipède rectangle, cylindre, tube, ou sphère), les cotations associées ainsi que la position et la rotation de cette forme (indiquées dans un repère absolu). Dans la troisième étape, chaque cellule précédemment définie est associée à un matériau, formant ainsi des "éléments". Enfin, la dernière étape consiste à établir une généalogie entre les éléments afin de savoir quel "élément" est inclus dans quel autre "élément".

Deux informations supplémentaires doivent être spécifiées dans le fichier de configuration afin d'être complet : l'"élément" de provenance des produits de fission, et les "éléments" de détection, c'est-à-dire les "éléments" dans lesquels les dépôts d'énergie doivent être relevés.

Afin de déterminer le montage expérimental optimal, nous faisons varier différents paramètres d'une simulation à une autre, comme l'épaisseur de la cible ou la pression du gaz. On calcule alors pour chaque simulation :

- Le nombre de produits de fission sortant de la cible quelle que soit leur énergie.
- La distribution des énergies de sortie de cible pour les produits de fission sortant de la cible et allant dans le gaz de la chambre à fission.
- La distribution des énergies déposées dans le gaz de la chambre à fission pour les particules s'arrêtant dans le gaz et pour celles ne s'arrêtant pas.
- Les trajectoires des particules.
- etc

### 5.1.1.2 Choix et transport des produits de fission

Le code est constitué d'une boucle où, à chaque tour, est choisi un seul produit de fission. Le choix aléatoire de  $(Z,A)$  se fait selon les valeurs de rendement de fission du fissile désigné en entrée. Ces dernières ont été prises dans la base de données ENDF [42]. Puis on détermine l'énergie moyenne du produit de fission ainsi que l'écart-type associé [43]. On calcule alors l'énergie initiale grâce à ces deux précédentes valeurs en supposant que l'énergie suit une loi de distribution gaussienne. Notez

que l'on peut aussi s'intéresser tout particulièrement aux particules  $\alpha$  émis par radioactivité naturelle de l'uranium. Pour cela, il suffit d'imposer systématiquement le Z à 2, le A à 4, et l'énergie à 4.8 MeV (respectivement 4.4 MeV) pour l' $^{233}\text{U}$  (resp.  $^{235}\text{U}$ ) de la particule à transporter.

Vient ensuite la détermination des coordonnées de la position initiale, selon la géométrie. Le tirage suit une loi uniforme dans toute la cible. Puis, nous calculons la direction de propagation du produit de fission selon une loi isotrope dans un angle solide de  $4\pi$  (justification dans la partie 5.1.2.1). Commence alors la phase de transport proprement dite.

Avant de décrire l'algorithme effectuant le transport du produit de fission, nous allons définir la notion de straggling.

### Que sont les stragglings longitudinal et latéral ?

Ces termes définissent les fluctuations moyennes du parcours d'un ensemble de particules émises à la même énergie. Pour des particules très chargées comme les produits de fission, le straggling représente jusqu'à quelques pourcents du parcours moyen. Le straggling longitudinal correspond à la variation de la longueur du parcours dans la direction de propagation initiale de la particule, par rapport au parcours moyen. Le straggling latéral est défini comme la variation du parcours de la particule dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation initiale. C'est donc le straggling latéral qui dévie la trajectoire initiale de la particule à transporter.

Si nous supposons qu'un nombre N d'ions identiques (mêmes Z, A et énergie initiale) sont émis tous parallèlement à l'axe (Ox) et perpendiculairement à la surface de la cible, située dans le plan (Oyz), les stragglings sont obtenus par [44] :

$$\begin{aligned} - \text{straggling longitudinal} &= \sqrt{\frac{\sum x_i^2}{N} - R_p^2} = \langle (\Delta x_i)^2 \rangle^{1/2} \\ - \text{straggling latéral} &= \sqrt{\sum \left(\frac{y_i + z_i}{2}\right)^2 / N} \end{aligned}$$

Avec les notations suivantes :

N, nombre d'ions émis.

$x_i$  (respectivement  $y_i$  et  $z_i$ ), la projection du parcours de l'ion  $i$  selon l'axe (Ox) (respectivement (Oy) et (Oz)).

$R_p$ , la projection du parcours moyen selon l'axe (Ox) :  $R_p = \langle x_i \rangle$ .

Le straggling correspond ainsi à la racine carrée de la variance. C'est la définition du straggling la plus couramment utilisée. Les stragglings relevés dans les tables de parcours utilisées dans MCTPF et données par SRIM [41] correspondent à cette définition. La prise en compte du straggling dans le code s'effectue ainsi :

---

<sup>1</sup>Dans la définition du straggling latéral, il est supposé que la source des particules incidentes est monodirectionnelle et normale à (Oyz), ce qui implique une symétrie cylindrique. De plus, pour augmenter la précision statistique, une moyenne est effectuée sur les distances projetées  $y_i$  et  $z_i$ .

- Pour le stragglings longitudinal : le parcours de la particule dans la direction de propagation est modifié en prenant une loi gaussienne centrée sur la valeur du parcours, et d'écart-type égal au stragglings longitudinal.
- Pour le stragglings latéral : nous choisissons aléatoirement un angle de façon isotrope sur  $2\pi$ . La particule est déplacée de son point d'arrivée (le stragglings longitudinal étant déjà pris en compte) d'un vecteur de direction perpendiculaire à la direction de propagation et de norme calculée selon une distribution gaussienne centrée sur zéro, et d'écart-type égal au stragglings latéral. Cela revient à déplacer la particule dans un disque dont le rayon est fonction de la valeur du stragglings latéral.

Nous verrons, lors de la validation du code, que le point le plus délicat du transport consiste en la prise en compte correcte du stragglings.

### **Algorithme de transport**

Le principe de l'algorithme de transport est le suivant. Connaissant les propriétés de la particule et du matériau, des tables de parcours nous donnent la distance de parcours et les stragglings latéral et longitudinal de la particule jusqu'à l'arrêt. La position de la particule et sa direction sont alors recalculées pour le pas suivant. Ces informations nous permettent aussi de calculer le point d'intersection le plus proche de la particule avec la géométrie. Ce point est déterminé dans un premier temps sans prendre en compte le stragglings.

Afin de ne pas effectuer des pas trop grands ce qui peut amener à des simplifications trop conséquentes, notamment au niveau du stragglings et donc de la trajectoire du produit de fission, nous imposons des limites indirectes sur la distance maximale parcourue à chaque pas. Un compromis entre le temps de calcul et la précision sur le trajet du produit de fission est obligatoire. Ces limites sont telles que l'on ne voit pas d'améliorations lorsqu'elles sont encore plus limitatives. Seul le temps de calcul est augmenté. On choisit donc de transporter le produit de fission sur une distance telle que son énergie soit au maximum :

1. l'énergie à l'interface,
2. 95 % de l'énergie initiale. La distance parcourue par la particule correspond à une perte d'énergie de 5 %.
3. l'énergie du maximum de déviation imposé. L'angle de déviation dû aux stragglings doit être inférieur à 0.01 rad.

Les deux dernières limites sont inspirées de celles qui existent dans le logiciel SRIM. Pour chaque pas intermédiaire, on recalcule le parcours moyen du produit de fission et les stragglings intermédiaires correspondants. Le calcul de ces derniers est expliqué dans la section suivante. Si le produit de fission sort de sa cellule, nous recherchons le nouvel élément à prendre en compte. La figure 5.1 représente schématiquement le calcul effectué lors d'un pas, dans le cas où il y a passage d'une interface entre deux cellules.

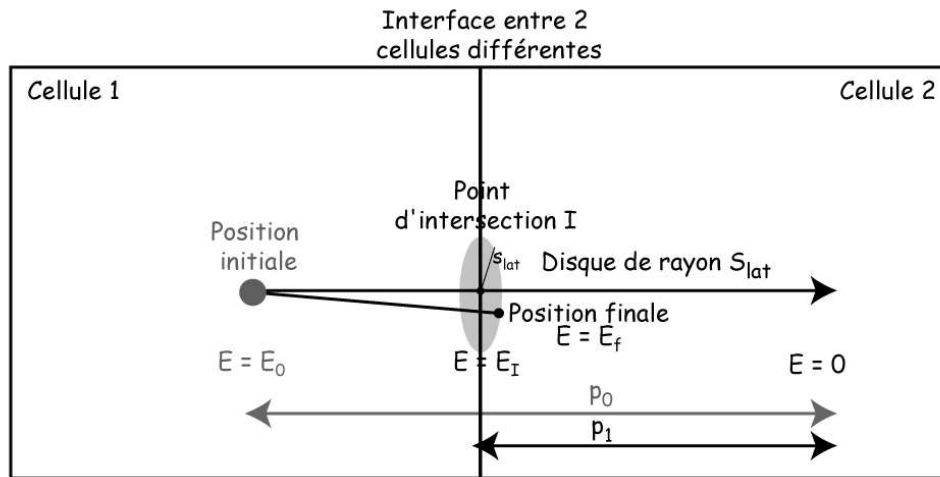


FIG. 5.1 – Schéma explicatif du programme MCTPF, dans le cas où la particule traverse une interface entre deux cellules. Le parcours  $p_0$  de la particule d'énergie initiale  $E_0$  est calculé sans straggling et en supposant que la particule ne sort pas de la cellule. L'énergie au point I est à la fois supérieure à  $0.95 E_0$  et inférieure à l'énergie correspondant à la déviation maximale imposée. Au point I, la particule a l'énergie  $E_I$ , elle parcourt la distance  $p_1$  dans la nouvelle cellule

On transporte ainsi pas à pas le produit de fission. Le transport d'une particule est terminé lorsque l'énergie de cette particule est nulle ou inférieure à un seuil imposé, ou encore lorsque cette particule sort de la géométrie. Nous choisissons à nouveau une nouvelle particule à transporter et ainsi de suite jusqu'au nombre de particules à transporter imposé au départ.

La phase de transport est délicate. Il existe plusieurs façons de l'effectuer, induisant plus ou moins de biais. Le fait d'utiliser directement les tables de parcours (parcours, straggling latéral et longitudinal) données par SRIM permet d'effectuer le calcul assez simplement et, a priori, avec une assez bonne précision. La physique de perte d'énergie dans la matière est ainsi incluse dans ces tables (cf partie 5.1.2.3 détaillant le logiciel SRIM).

### 5.1.2 Validation de MCTPF

Une étape de validation de ce code est indispensable pour s'assurer de la validité des résultats ou du moins de leurs limites. Chaque fonction a été écrite et validée séparément des autres. C'est le cas, par exemple, du tirage aléatoire selon une distribution donnée, de la prise en compte correcte de la géométrie et de la filiation des cellules géométriques, de la lecture des tables de parcours données par SRIM, ... Le transport des particules a été suivi particule par particule pour vérifier qu'aucune erreur de calcul ou de code n'a été laissée. Cependant, il est indispensable de valider ce code dans sa globalité. Pour cela, les premiers tests ont confirmé qu'il n'y avait aucun résultat aberrant. Ils ont été effectués sur des cibles infiniment fines ou infiniment épaisses, par exemple, ou encore en faisant varier plusieurs paramètres comme la pression du gaz dans la chambre à fission. Des tests plus pous-

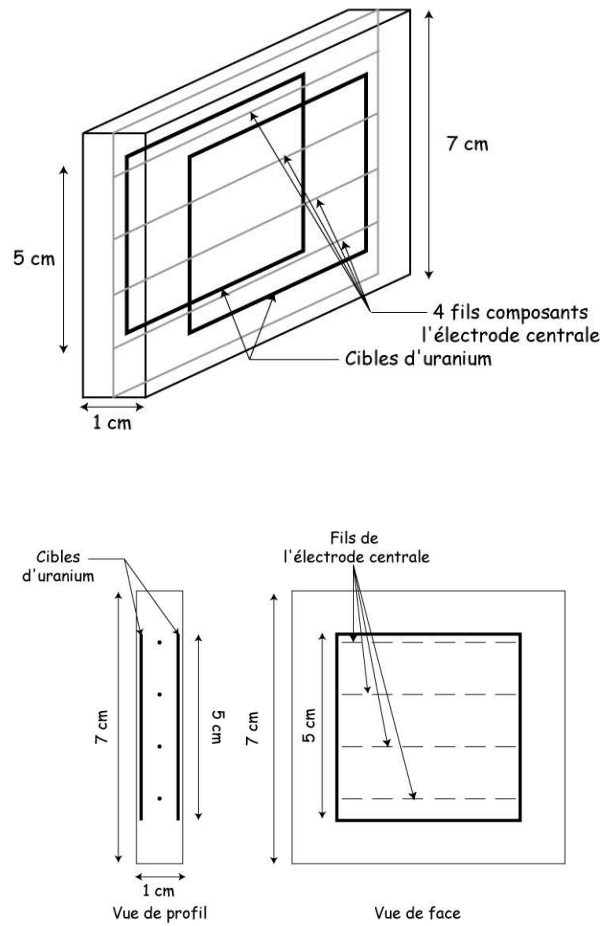


FIG. 5.2 – Schémas de la chambre à fission carrée.

sés ont consisté à comparer nos résultats avec ceux que donnent certains codes connus et eux-mêmes déjà validés : GEANT4 et TRIM. Le premier va nous servir à transporter des particules  $\alpha$  uniquement. En effet, GEANT4 n'a pas été initialement codé pour le transport de produits de fission et il est relativement peu précis pour ce genre de simulations. Quant à TRIM, c'est un code de simulation de transport de particules dans la matière. Nous n'avons pas décidé de l'utiliser directement, au lieu de MCTPF, essentiellement à cause de la rigidité de la géométrie. Il va nous permettre de vérifier la cohérence de nos résultats dans le cas d'une géométrie simple.

Nous avons utilisé deux géométries très différentes pour valider notre code : une géométrie carrée, similaire à celle de la chambre à fission que l'on veut construire, mais aussi une géométrie cylindrique avec une distance de gaz de 2 mm seulement entre les deux électrodes. Le schéma de la chambre à fission cylindrique a été très largement inspiré de la chambre à fission que possède le LPSC et qui a servi à divers tests préliminaires. Les figures 5.2 et 5.3 donnent les caractéristiques de ces deux chambres à fission.

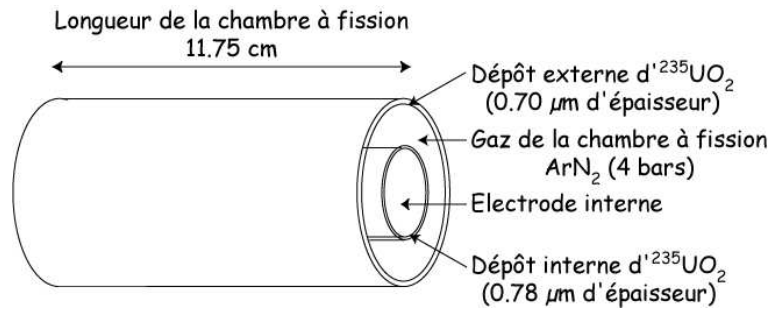


FIG. 5.3 – Schéma de la chambre à fission cylindrique.

### 5.1.2.1 Validation de MCTPF : première étape

De nombreuses modifications au code ont été apportées au fur et à mesure des vérifications et de la compréhension des phénomènes existants. Il a été très important de comprendre finement les résultats de ce code pour le valider. Nous allons détailler quelques points.

#### Biais induit par le straggling en fonction du choix du tirage des produits de fission

Nous avons plusieurs possibilités pour le tirage des produits de fission : tirer un seul produit de fission dans l'angle solide  $2\pi$  ou  $4\pi$  ou encore tirer les deux produits de fission associés. Un effet particulier que l'on a nommé "effet straggling", puisque ce dernier en est la cause principale, a été remarqué. Il est expliqué de façon détaillée dans l'annexe D. Un biais sur les efficacités de sortie de cible apparaît lorsque nous choisissons de tirer un seul produit de fission dans  $2\pi$  sr dans la chambre à fission. Il provient des rares événements où les produits de fission sont émis proches de la surface de la cible. Dans ce cas, les deux produits de fission peuvent, à cause du straggling, déposer tous les deux de l'énergie dans le gaz ou au contraire il se peut qu'aucun des deux produits de fission ne dépose de l'énergie dans le gaz. Or le nombre d'événements où les deux produits de fission déposent de l'énergie n'est pas égal au nombre d'événements où aucun des produits de fission ne déposent de l'énergie dans le gaz de la cible. Ceci est dû aux différences des tables de parcours et de straggling dans le gaz, l'oxyde d'uranium composant la cible voire l'aluminium. Cet effet de bord n'existe plus lorsqu'un seul produit de fission est tiré dans l'angle solide  $4\pi$ , c'est-à-dire lorsqu'on considère une "demi-fission". Les effets étudiés ici sont relativement faibles (de l'ordre de 2.4 %), bien en deçà de l'incertitude des tables de parcours (10 à 20%). Une troisième solution viserait à calculer, à partir du premier produit de fission, les caractéristiques du second. Cette solution est très complexe à cause de la présence des neutrons (tirages non dos-à-dos) et du calcul de l'énergie du deuxième produit de fission.

Pour conclure, nous choisissons de tirer toujours un seul produit de fission dans  $4\pi$  sr. De cette façon, le code reste assez simple tout en n'introduisant que très peu de biais. Les spectres obtenus peuvent alors être totalement expliqués.

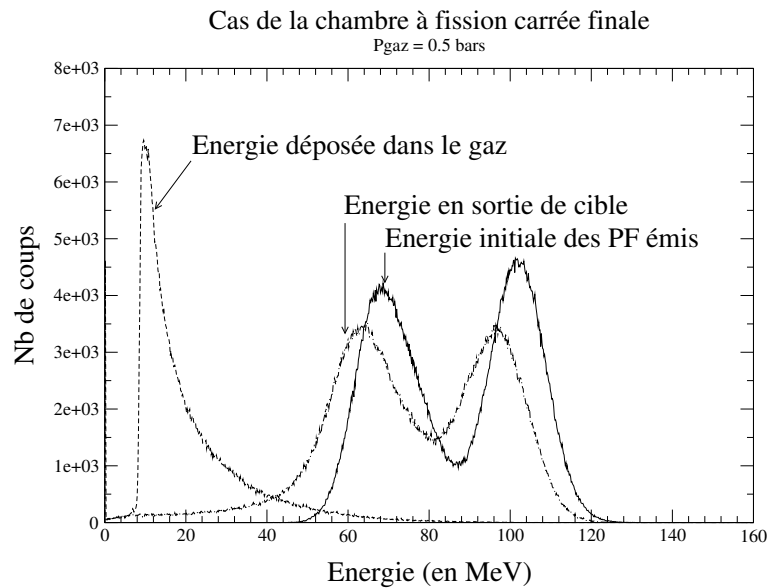


FIG. 5.4 – Spectres des énergies initiales des produits de fission (PF), celui des énergies en sortie de cible et celui des énergies déposées dans le gaz, dans le cas de la chambre à fission carrée utilisée pour la mesure du rapport  $\alpha$ . Pgaz = 0.5 bar.

### Influence de la géométrie de la chambre à fission et de la pression du gaz

Cette étude est basée sur les deux géométries présentées plus haut (figures 5.2 et 5.3). L'ensemble des conclusions de l'étude est situé en annexe E. Nous retrouvons tous les résultats attendus : la forme des spectres de dépôts d'énergie dans la matière s'explique parfaitement par la géométrie, l'énergie des particules incidentes et la pression du gaz. Nous distinguons deux cas particuliers selon que les particules s'arrêtent ou non dans le gaz. Chacun des spectres précédents est cohérent et le spectre total correspond effectivement à la somme des deux contributions précédentes. De plus, les produits de fission déposent plus d'énergie à haute pression qu'à basse pression, quelle que soit la géométrie de la chambre. Plus l'épaisseur de gaz entre la cible d' $\text{UO}_2$  et l'électrode est importante, plus le nombre de produits de fission s'arrêtant dans le gaz augmente quelle que soit la géométrie, ceux-ci déposant alors plus d'énergie dans le gaz. Tous les spectres obtenus sont parfaitement cohérents. Les résultats concernant la chambre à fission utilisée pour la mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{233}\text{U}$  sont représentés sur les figures 5.4 et 5.5. La très grande majorité des produits de fission ne s'arrêtent pas dans le gaz de la chambre.

### Etude des produits de fission perdus

Nous nous intéressons ici aux caractéristiques des produits de fission ne sortant pas de la cible. Nous relevons le couple (Z, A) et l'énergie initiale des produits de fission qui ne sortent pas de la cible. Puis, nous traçons les distributions en Z, en A et en énergie initiale de ces produits de fission que l'on compare aux spectres obtenus pour tous les produits de fission émis (cf figures 5.6, 5.7 et 5.8.



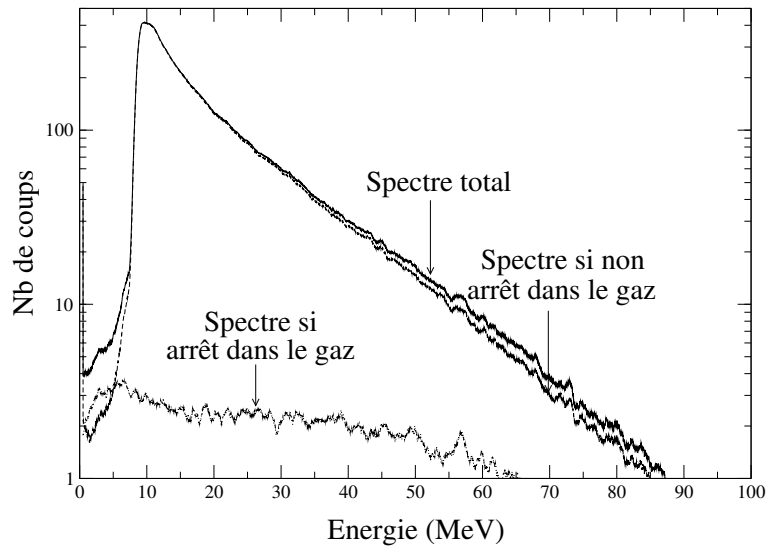


FIG. 5.5 – Spectre des énergies déposées dans le gaz, pour les produits de fission, dans le cas de la chambre à fission carrée utilisée pour la mesure du rapport  $\alpha$ .  $P_{\text{gaz}} = 0.5$  bar.

Pour plus de lisibilité, les graphiques sont superposés.). Nous traçons ces spectres pour la chambre à fission carrée ( $P_{\text{gaz}} = 0.5$  bars) et pour la chambre à fission cylindrique ( $P_{\text{gaz}} = 4$  bars).

Nous observons alors que ce sont les produits de fission lourds qui s'arrêtent plus facilement dans la cible ainsi que les produits de fission ayant une énergie initiale faible. Les résultats sont similaires quelle que soit la géométrie étudiée. Ces résultats sont tout à fait cohérents.

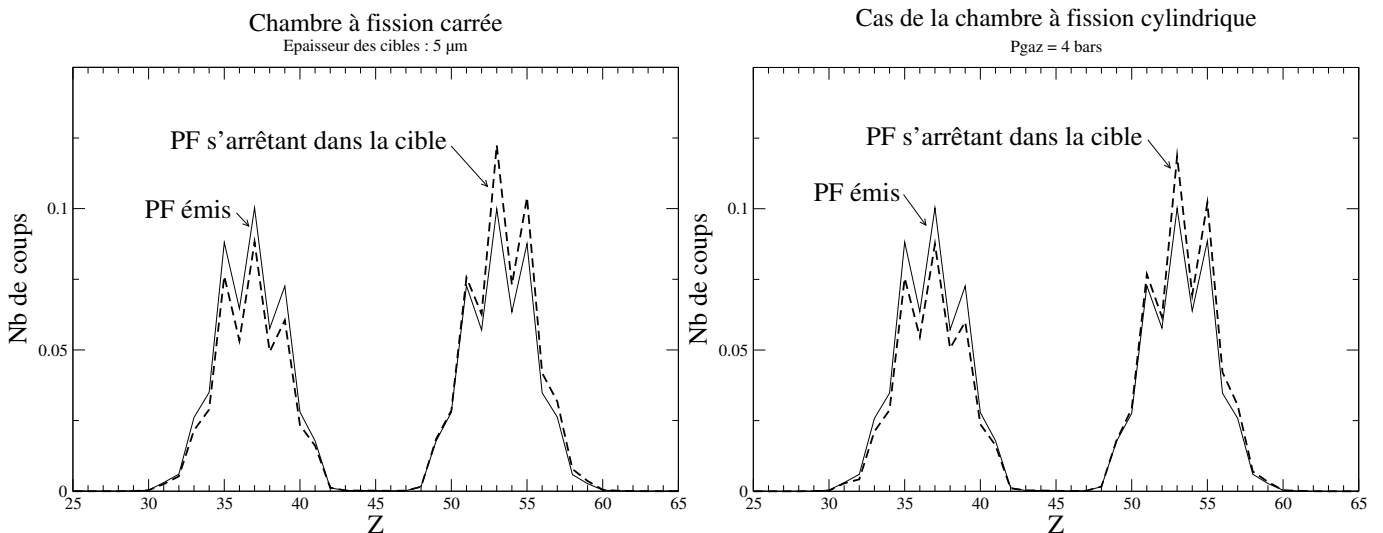


FIG. 5.6 – Spectres en Z de tous les produits de fission (PF) émis et de ceux s'arrêtant dans la cible, pour la géométrie carrée à gauche et pour la géométrie cylindrique à droite. On notera que, pour plus de lisibilité, les graphiques sont normalisés à 1.

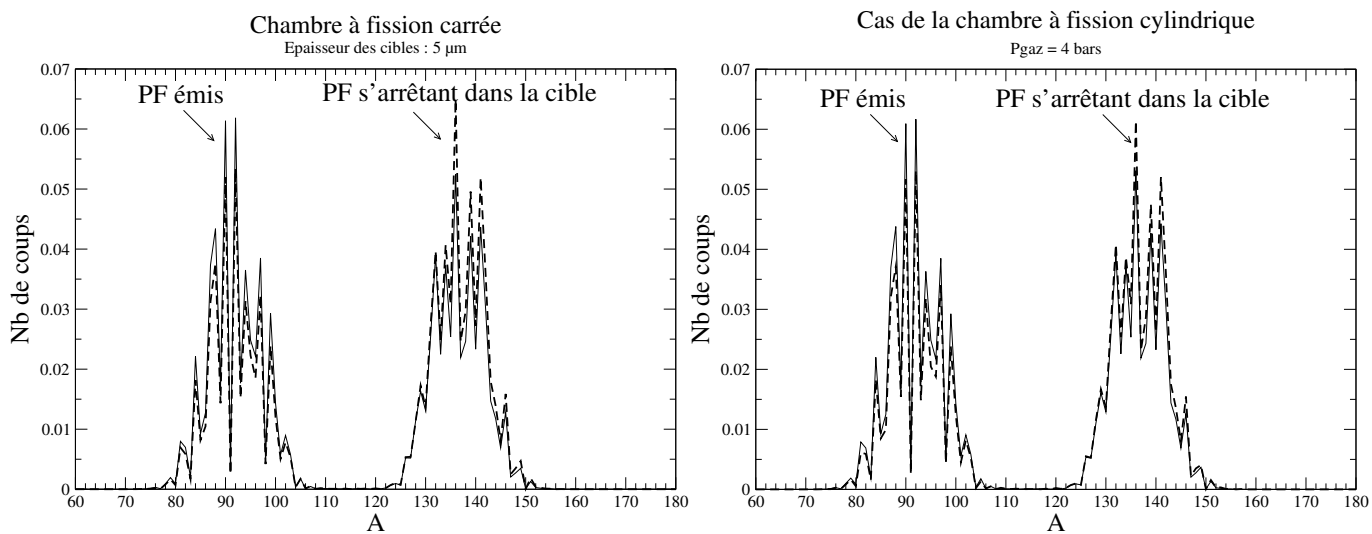


FIG. 5.7 – Spectres en A de tous les produits de fission (PF) émis et de ceux s’arrêtant dans la cible, pour la géométrie carrée à gauche et pour la géométrie cylindrique à droite. On notera que, pour plus de lisibilité, les graphiques sont normalisés à 1.

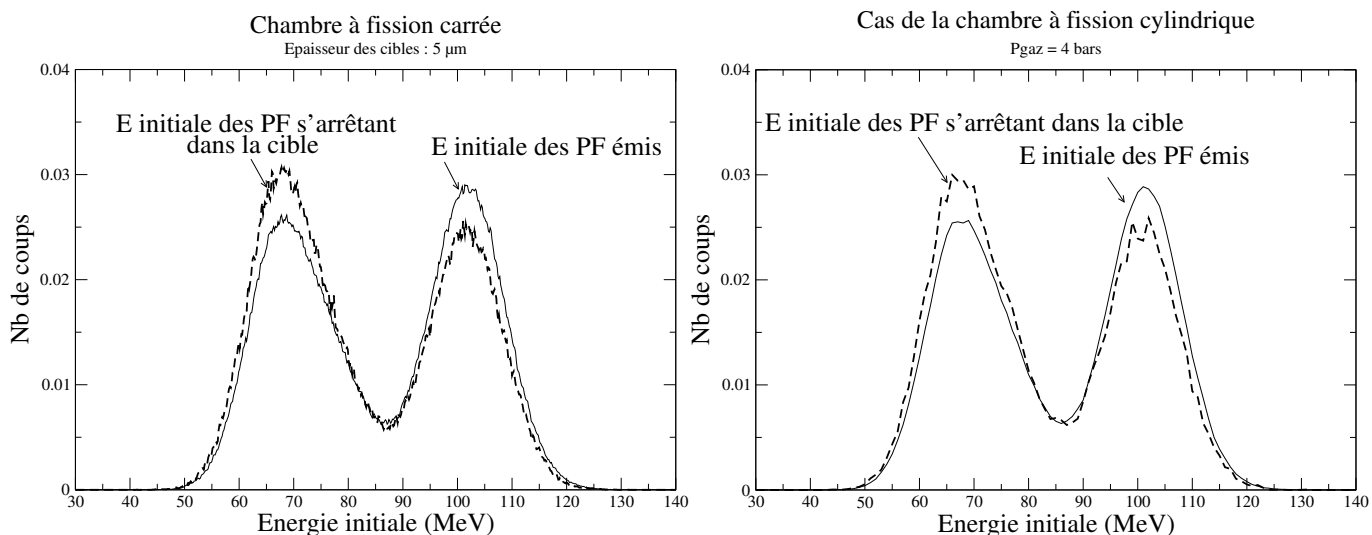


FIG. 5.8 – Spectres d’énergie initiale de tous les produits de fission (PF) émis et de ceux s’arrêtant dans la cible, pour la géométrie carrée à gauche et pour la géométrie cylindrique à droite. On notera que, pour plus de lisibilité, les graphiques sont normalisés à 1.

## Conclusion sur la première étape de validation de MCTPF

Certains phénomènes, comme le straggling, avaient mal été pris en compte dans un premier temps. Le code MCTPF a alors été modifié en conséquence. Tous les résultats, dont les paragraphes précédents sont des exemples, ont été vérifiés et validés. Aucune incohérence n'a été relevée.

### 5.1.2.2 Validation de MCTPF : deuxième étape. Etude de la robustesse de MCTPF vis-à-vis de la description de la géométrie

Un autre test permet de s'assurer de la robustesse du code vis-à-vis de la description de la géométrie. Ce test consiste au transport d'un produit de fission donné ( $^{145}_{56}\text{Ba}$  par exemple), à une énergie donnée typique (100 MeV) dans une cible d' $^{235}\text{UO}_2$ . Le code MCTPF évalue, de manière discrète, les positions successives des particules dans la matière. Des conditions fixent la taille maximale du pas, mais il est possible de les modifier. Nous supprimons ici ces conditions afin de vérifier leur effet sur la dispersion des produits de fission. En revanche, nous ajoutons des interfaces virtuelles à l'intérieur de la cible. Malgré une description du transport différente, la cible reste parfaitement identique. Le produit de fission part toujours du centre de la cible avec le même vecteur directeur. Seul le nombre de pas intermédiaires du produit de fission avant arrêt varie. On s'attend donc à ce que le parcours moyen et les distributions longitudinales et latérales finales soient identiques.

L'évaluation des stragglings intermédiaires nécessite quelques précisions. Pour une particule passant d'une énergie  $E_0$  à  $E_1$ , le straggling longitudinal intermédiaire  $s_{\text{long}}(E_0 \rightarrow E_1)$  est obtenu par :

$$s_{\text{long}}(E_0 \rightarrow E_1) = s_{\text{long}}(E_0 \rightarrow 0) - s_{\text{long}}(E_1 \rightarrow 0)$$

La formule  $s_{\text{long}}(E_0 \rightarrow E_1) = \sqrt{s_{\text{long}}^2(E_0 \rightarrow 0) - s_{\text{long}}^2(E_1 \rightarrow 0)}$ , issue du principe qu'une somme de distributions gaussiennes de largeurs  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  est une distribution gaussienne de largeur  $\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$ , donne des distributions très dispersées. L'explication de ce phénomène est expliqué en annexe G.

Le straggling latéral intermédiaire est obtenu par une relation différente. En effet, en utilisant la formule précédente, la dispersion finale des produits de fission est exagérée. En augmentant le nombre de cellules (ou le nombre de pas avant arrêt), les produits de fission sont de plus en plus dispersés par rapport à la position initiale, comme l'illustre la figure 5.9. Cet effet non physique s'explique parce que la formule précédente suppose que les directions initiales des particules sont les mêmes lorsqu'elles ont l'énergie  $E_0$  et  $E_1$ . Ceci est faux puisque la direction du produit de fission a été modifiée par le straggling latéral intermédiaire que nous cherchons à évaluer. Pour prendre correctement cet effet en compte, le straggling latéral intermédiaire est corrigé par un facteur géométrique :

$$s_{\text{lat}}(E_0 \rightarrow E_1) = \frac{\text{Parcours}(E_0 \rightarrow 0) - \text{Parcours}(E_1 \rightarrow 0)}{\text{Parcours}(E_0 \rightarrow 0)} \cdot \sqrt{s_{\text{lat}}^2(E_0 \rightarrow 0) - s_{\text{lat}}^2(E_1 \rightarrow 0)}$$

Ce facteur provient du rapport d'homothétie existant entre le stragglings latéral inconnu avec la prolongation de celui-ci au niveau de la fin de parcours (cf annexe F pour la démonstration de cette formule). En effet, c'est seulement avec ce dernier que s'applique la loi donnant le stragglings longitudinal intermédiaire. La figure 5.10 illustre cette formule. Les simulations des trajectoires de particules confirment cette formule. Les écarts-types de dispersion latérale, relevés avec les différentes géométries ou avec un nombre variable de points intermédiaires, sont en accord.

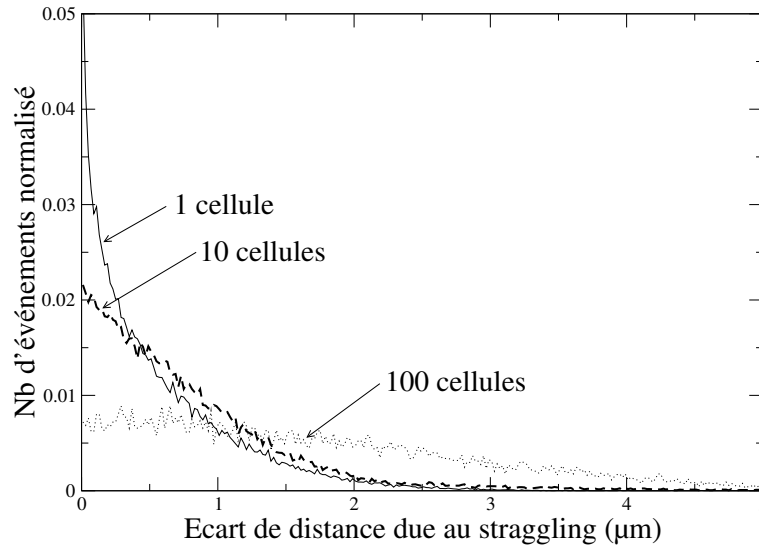


FIG. 5.9 – Distribution de la position sur l'axe (Oz) des produits de fission en sortie de cible, en fonction du nombre de cellules de même matériau composant la cible. Les distributions selon l'axe (Ox) sont similaires.

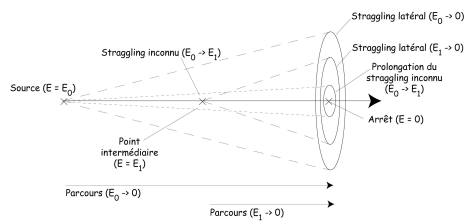


FIG. 5.10 – Représentation d'une trajectoire d'une particule et du stragglings latéral associé. La trajectoire de la particule est évaluée en trois points : à la source (énergie E<sub>0</sub>), en un point intermédiaire (énergie E<sub>1</sub>) et à la fin de son parcours (énergie nulle). Les stragglings latéraux sont également mentionnés.

### 5.1.2.3 Validation de MCTPF par comparaison avec d'autres codes de transport de particules

Une autre façon de valider ce code est de comparer les résultats obtenus avec ceux de codes déjà existants dans la limite de validité de chacun de ces codes. Nous allons ainsi comparer MCTPF à deux

codes de calculs :

- GEANT4 [45] pour le transport des particules  $\alpha$  dans une géométrie complexe.
- SRIM [41] pour le cas d'une seule particule quelconque (particule  $\alpha$  ou produit de fission) dans le cas d'une géométrie très simplifiée.

### **Validation de MCTPF avec GEANT4 : Spectre d'énergie déposée par les particules $\alpha$ dans la chambre à fission cylindrique à $^{235}\text{U}$**

Le spectre d'énergie déposée par des particules  $\alpha$  dans le gaz de la chambre à fission cylindrique d' $^{235}\text{U}$  a été étudié avec GEANT4 (cf chapitre 6, partie 6.1.2 pour une description de ce code) et MCTPF. Il s'agit non seulement de valider MCTPF mais aussi de vérifier que l'implémentation de la physique dans GEANT4 est comprise. En effet, GEANT4 est un code spécifique à la physique des hautes énergies et n'est pas particulièrement adapté au transport des particules  $\alpha$  pour de faibles énergies (de l'ordre du MeV et en deçà) .

La figure 5.11 présente les distributions obtenues. Pour l' $^{235}\text{U}$ , l'énergie initiale des particules  $\alpha$  est de 4.4 MeV. Les spectres sont similaires, même si quelques différences sont visibles. Elles s'expliquent par la différence entre les tables de perte d'énergie utilisées dans GEANT4 et celles utilisées par MCTPF (SRIM). En effet, les tables de parcours utilisées dans GEANT4 proviennent du modèle de Ziegler (1977, 1985 et 2000) qui sert de base à SRIM et TRIM. Cependant, les tables de parcours utilisées dans GEANT4 incluent aussi un modèle provenant d'un rapport ICRU49, modèle basé sur celui de Ziegler de 1977 et amélioré par des mesures expérimentales. Les différences de parcours entre GEANT4 et Ziegler sont données dans les références [46, 47]. De plus, un creux apparaît systématiquement à 4 MeV sur les spectres obtenus avec GEANT4. Il ne provient pas d'une erreur statistique. Nous ne pouvons l'expliquer que par les tables de parcours dans GEANT4. Il n'y a pas d'explication physique pouvant expliquer une telle variation. D'autre part, GEANT4 prend en compte différemment le straggling par rapport à MCTPF. Nous nous attendons alors à ce que les effets liés au straggling soient modifiés. Cela se visualise bien sur les spectres aux énergies inférieures à 0.5 MeV.

L'énergie de sortie de cible peut être obtenue de deux façons différentes dans MCTPF. Elle peut être définie comme l'énergie de la particule dès qu'elle sort de la cible, même si le straggling permet de retourner dans la cible (méthode sans prise en compte du straggling). Elle peut également être calculée comme la différence entre l'énergie initiale et l'énergie déposée dans la cible. Dans ce deuxième cas, le straggling est pris en compte. Les éventuels allers et retours des particules dans la cible sont comptés dans le calcul de l'énergie déposée. C'est une définition similaire à celle dans GEANT4 : seul l'énergie déposée dans la cible est accessible. Les spectres en énergie de sortie de cible sont montrés sur la figure 5.12. Ils sont en assez bon accord, sauf vers les très basses énergies.

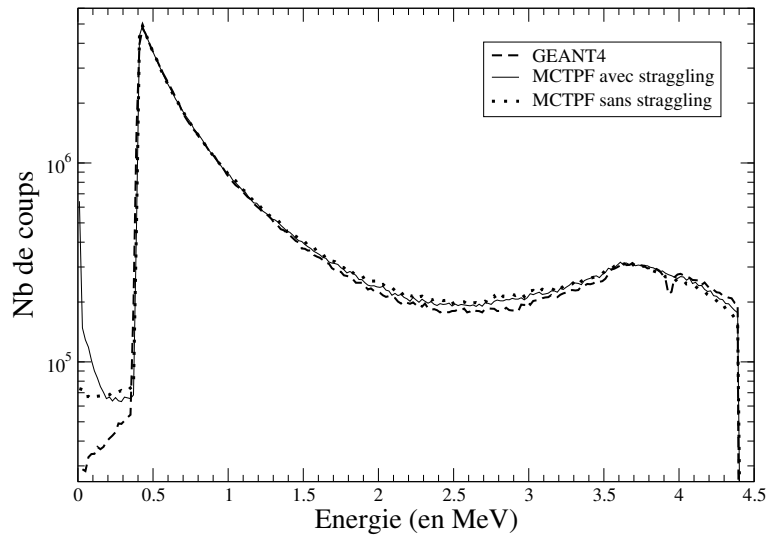


FIG. 5.11 – Spectres d'énergie déposée dans le gaz de la chambre à fission cylindrique.

Nous pouvons supposer que pour de telles énergies, GEANT4 n'est pas particulièrement fiable.

Pour conclure, aucune différence majeure n'a été mise en évidence entre les spectres obtenus par les deux codes. Ce test permet de valider MCTPF et GEANT4, bien que MCTPF s'avère a priori plus fiable que GEANT4 pour le transport des particules  $\alpha$  à basses énergies.

### Seuil de coupure

Certains codes de simulation utilisent des seuils sur l'énergie des particules transportées. C'est le cas de FLUKA [48], qui est valide pour des énergies allant du keV à plusieurs GeV. Le code MCTPF est très peu sensible à l'application de tels seuils, comme montré ci-après. La figure 5.13 représente des spectres d'énergie déposée dans le gaz par des produits de fission, obtenus avec plusieurs seuils de détection. Ainsi, les produits de fission sortant de la cible avec une énergie inférieure au seuil imposé ne seront pas pris en compte. Le taux de comptage est supposé suffisamment faible de manière à ne détecter qu'un seul produit de fission à la fois. Les spectres obtenus avec des seuils inférieurs à 1 MeV se superposent parfaitement. Cependant, l'application d'un seuil élevé (20 MeV) provoque une déformation du spectre d'énergie déposée par les produits de fission, au niveau des basses énergies.

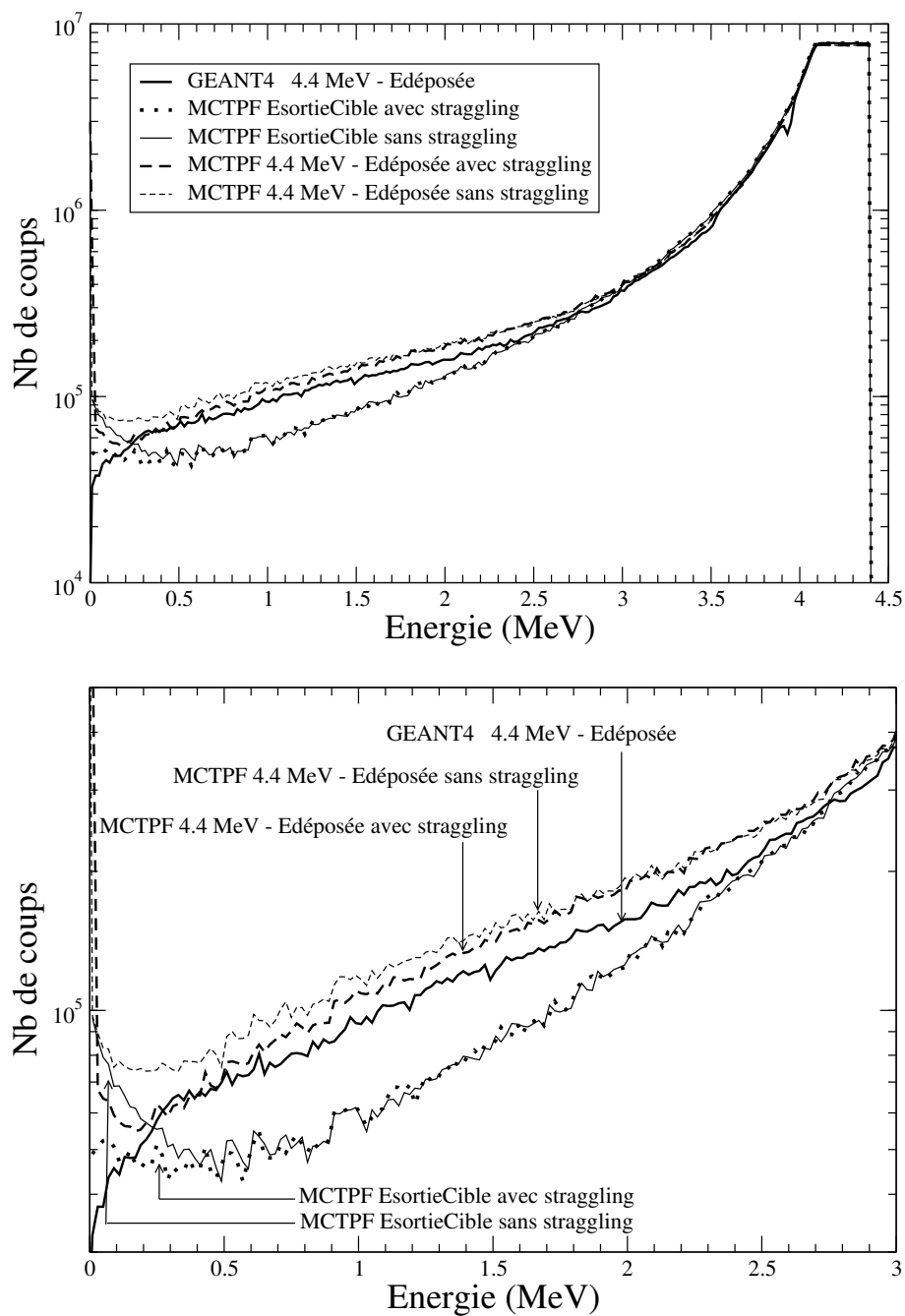


FIG. 5.12 – Spectres d'énergie de sortie de cible pour la chambre à fission cylindrique, entre [0 ; 4.5 MeV] pour la figure du haut et zoomée sur [0 ; 3 MeV] pour la figure du bas. Ils sont obtenus avec GEANT4 ou MCTPF pour différentes conditions.

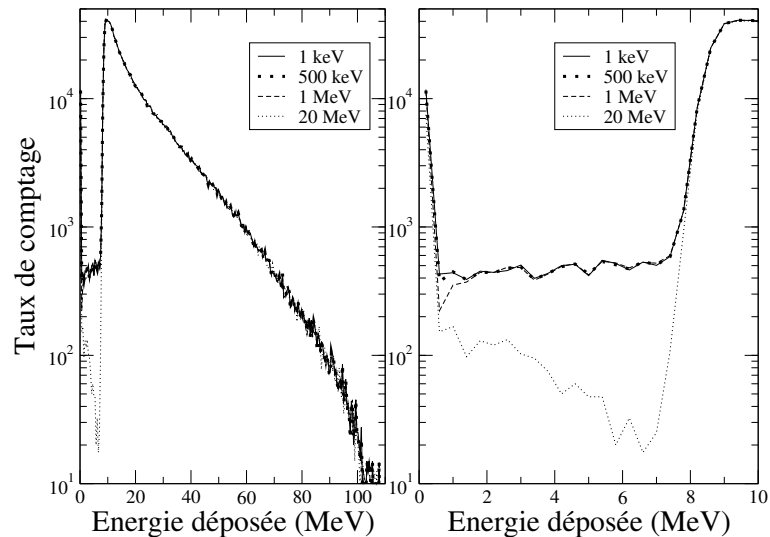


FIG. 5.13 – Spectres d'énergie déposée dans le gaz de la chambre à fission en fonction du seuil de coupure. Ces spectres sont représentés sur [0 ; 120 MeV] pour la figure de gauche et sur [0 ; 10 MeV] pour la figure de droite. Ils sont obtenus avec MCTPF, pour des produits de fission dont l'énergie de sortie de cible est au moins égale au seuil imposé.

## Validation par comparaison avec les résultats donnés par TRIM

### Les codes SRIM et TRIM

SRIM (the Stopping and Ranges on Ions in Matter) est un ensemble de programmes calculant les pouvoirs d'arrêt et les parcours d'ions dans la matière. Ce code Monte-Carlo est basé sur un traitement quantique de collisions entre un ion et des atomes-cibles. La description complète du calcul (physique de la pénétration des ions dans la matière, précision du calcul, applications, etc) est détaillée dans la référence [49]. SRIM provient de l'union entre les travaux de J. P. Biersack à propos du calcul des parcours [50] et de ceux de J. F. Ziegler portant sur la théorie de la perte d'énergie dans la matière [51]. La première version de SRIM date de 1983, la dernière mise à jour de SRIM de 2003. Dans cette thèse, nous utilisons cette dernière version de SRIM.

SRIM est composé de nombreux sous-programmes dont deux seront utilisés dans cette thèse. Le premier, nommé SRIM aussi, est un programme simplifié qui produit les tables de pouvoirs d'arrêt, de parcours et de straggling pour n'importe quel ion, à n'importe quelle énergie et dans n'importe quel matériau. Le second, intitulé TRIM (the Transport of Ions in Matter) permet de calculer, avec des cibles pouvant être constituées de matériaux composés, à la fois la distribution spatiale finale des ions en trois dimensions ainsi que de nombreuses données propres à la perte d'énergie dans la matière : parcours, dommage des cibles, ionisation, mais aussi distributions énergétique ou angulaire des ions transmis ou rétrodiffusés dans un matériau, ... C'est un code Monte-Carlo basé sur une équation de transport. Il est valable pour des cibles amorphes de matériaux composés et pour des géométries très simples : nous avons seulement la possibilité de transporter les particules dans une cible composée



d'au maximum huit couches d'éléments différents. La description de la géométrie est très rigide. De plus, le code source n'est pas accessible. Il ne nous est pas possible de l'utiliser pour implémenter un programme permettant de gérer des géométries complexes.

Mon code MCTPF utilise directement les tables de parcours données par SRIM comme données d'entrée. Nous avons choisi ces tables plutôt que celles de Northcliffe and Schilling [52] par exemple puisque celles données par SRIM sont directement sous format informatique. De plus, il est très aisé de calculer toutes les tables de parcours nécessaires directement dans les matériaux composés. En effet, nous aurions pu utiliser les tables de parcours de chacun des éléments pour calculer le parcours du matériau composé grâce à la formule empirique :

$$R_{comp} = \frac{A_{comp}}{\sum \frac{a_i A_i}{R_i}}$$

avec :

$R_{comp}$  = parcours dans le matériau composé

$A_{comp}$  = masse molaire du composé

$R_i$  = parcours dans l'élément  $i$

$A_i$  = masse molaire de l'élément  $i$

$a_i$  = fraction molaire de l'élément  $i$  dans le composé

Néanmoins, cette formule est très approchée. Les résultats sont moins bons que le calcul direct de SRIM puisque ce dernier calcule directement les parcours dans le matériau composé. Le choix de SRIM est donc naturel. Les résultats donnés par MCTPF, tout particulièrement l'efficacité de sortie de cible des produits de fission, seront entachés des incertitudes des tables de parcours donnés par SRIM. Or, si l'on compare les tables de Northcliffe and Schilling et celles de SRIM, nous obtenons déjà des divergences de l'ordre de la dizaine de pourcent.

En outre, un gros travail de comparaison avec des valeurs expérimentales a été effectuée par Ziegler et al. pour estimer la précision de SRIM. Il a été estimé que les sections efficaces d'arrêt dans la matière présentaient une erreur moyenne de 7.4 %, De plus, l'erreur sur les sections efficaces est d'autant plus faible que l'ion transporté est léger et que son énergie est élevée. En ce qui concerne la précision sur les tables de parcours calculées par SRIM, beaucoup moins de valeurs expérimentales sont à disposition pour comparaisons. Elles sont issues essentiellement des études provenant de l'industrie nucléaire et de micro-électronique. Pour cette dernière, la cible principalement utilisée pour ces mesures est alors composée du même matériau : le silicium. Le tableau 5.1 montre un exemple typique des résultats obtenus. Ziegler et al. ont estimé que le straggling calculé par SRIM, basé sur l'équation de transport, diffère de 40 % par rapport au valeurs indiquées par le code Monte-Carlo TRIM, ces dernières étant toujours les plus élevées.

	TRIM (1998)	SRIM	Données expérimentales
Parcours	50 nm	45 nm	47 nm
Stragglings	12 nm	8 nm	13 nm

TAB. 5.1 – Comparaison des valeurs de parcours et de stragglings obtenues par SRIM, TRIM et lors de mesures dans le cas du transport de l'ion  $^{65}\text{Tb}$  dans le silicium. Tableau issu de [53].

Comme nous l'avons déjà fait remarquer, les codes TRIM et SRIM sont en constante évolution depuis 1983. De nombreuses modifications ont été apportées entre la version de 1983 et celle de 2003 [41], comme par exemple :

- Ajout de données expérimentales servant de référence (plus de 25 000 valeurs de pouvoirs d'arrêt entre la version de 1998 et celle de 2003)
- Amélioration du calcul des pouvoirs d'arrêt dans les composés. La précision a été améliorée lors de cette modification. Auparavant, SRIM utilisait la loi de Bragg qui indique que le pouvoir d'arrêt du composé est la somme des chacun des éléments constituant le composant avec un facteur de pondération donné. Cette loi n'incluait pas les modifications que pouvaient entraîner les liaisons chimiques du composé. Ces corrections, désormais implémentées dans SRIM peuvent aller jusqu'à 20 % et sont donc essentielle pour la précision du calcul des pouvoirs d'arrêt.

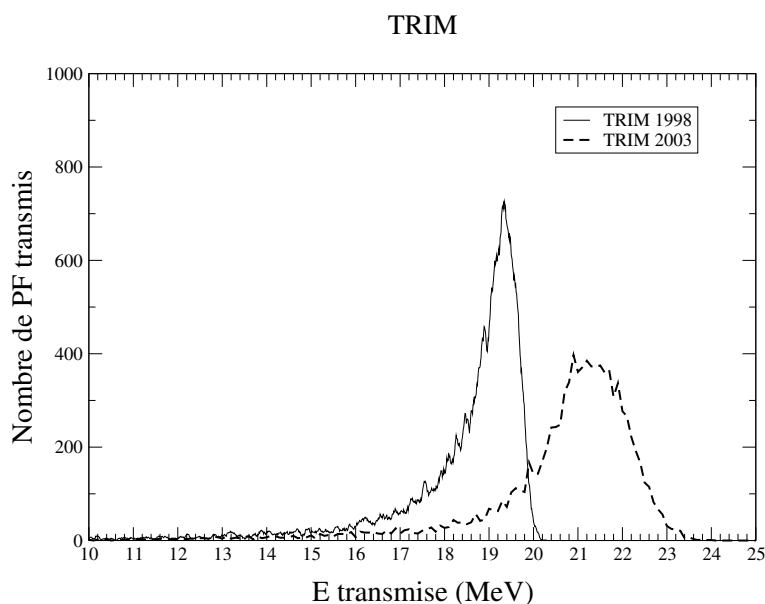


FIG. 5.14 – Spectres d'énergie de sortie de cible de l'élément  $^{145}\text{Ba}$  d'énergie initiale de 100 MeV pour deux versions de TRIM utilisées. La cible a une épaisseur de 5  $\mu\text{m}$ .

Ces programmes, sans cesse améliorés, donnent donc d'une version à une autre des spectres d'énergie de sortie de cible très différents. La figure 5.14 permet de visualiser l'importance des différences apportées : écart de 10 % du pic en énergie, résolution de 4.8 % pour TRIM 1998 et de 9.6 %

pour TRIM 2003. La distribution obtenue avec TRIM 2003 est beaucoup plus symétrique. Par contre, le nombre de particules transmises est identique.

### **Comparaison de MCTPF à TRIM 2003**

Afin de valider MCTPF, nous avons comparé les résultats donnés par TRIM (2003) en sortie de cible avec ceux donnés par MCTPF. Précisons que tous les calculs de MCTPF sont effectués avec les tables de parcours obtenues avec SRIM 2003, c'est-à-dire avec la dernière version disponible. Comme l'indique le tableau 5.1, nous ne nous attendons pas à ce que les résultats donnés par TRIM et MCTPF concordent avec une précision inférieure à la dizaine de pourcent.

Pour effectuer cette comparaison, nous nous intéressons aux trajectoires des ions, au nombre d'ions sortant de la cible (pour quelques ions donnés) et au spectre d'énergie de sortie de ces ions. Nous avons effectué cette étude pour deux ions très différents : la particule  $\alpha$  ( $Z=2$  ;  $A=4$ ) provenant de la désintégration de l' $^{235}\text{U}$  et ayant une énergie initiale de 4.4 MeV, et le Baryum 145 ( $Z=56$  ;  $A=145$ ) dont on impose une énergie initiale égale à 100 MeV. Ces deux ions traversent des cibles composées d'oxyde d'uranium ( $^{235}\text{UO}_2$ ). Ils sont émis de façon collimatée selon l'axe (Oy), et au centre de la cible "infiniment grande" selon les deux autres axes (Ox) et (Oz). Ainsi, pour ces cas très simplifiés, les résultats obtenus avec TRIM et avec MCTPF sont comparables.

Les résultats sont résumés dans le tableau 5.2. Tout comme précédemment, nous remarquons que les nombres de particules sortants de la cible donnés par les deux codes sont identiques, à l'erreur statistique près. Les valeurs maximales des distributions diffèrent de 11 % pour le produit de fission Ba mais seulement de 1.9 % pour les particules  $\alpha$ .

Les figures 5.15 et 5.16 donnent les distributions d'énergie de sortie de cible. Les spectres obtenus par MCTPF sont beaucoup plus "piqués" sur la valeur moyenne. Ils ont une forme de distribution de Landau tandis que les spectres obtenus par TRIM sont beaucoup plus dispersés autour de leur énergie moyenne. Cette dernière est supérieure à celle obtenue par MCTPF. A l'aide des tables de parcours de SRIM, et pour des produits de fission non déviés, l'énergie maximale de sortie de cible est de 18.76 MeV. Ceci est toujours cohérent avec les résultats de MCTPF, quelle que soit la version de prise en compte du straggling utilisée. Par contre, TRIM donne des valeurs supérieures ce qui semblent donc provenir simplement des tables de parcours elles-mêmes. Ceci peut s'expliquer assez bien puisque les deux codes sont basés sur des principes différents :

- TRIM est un code Monte-Carlo intégrant l'équation de transport des particules dans la matière.
- MCTPF est un code beaucoup plus simplifié puisqu'il utilise des tables de données de parcours et de straggling en entrée. Cependant, il est utilisable pour tout type de géométrie, aussi complexe soit-elle.

Les différences entre ces deux codes ne sont pas excessives. En effet, les écarts restent de l'ordre de 10 %, ce qui est l'ordre de grandeur des écarts entre les différentes tables de données des parcours

qu'on peut trouver dans la littérature, ou encore la différence entre les résultats entre TRIM et SRIM.

Enfin, nous pouvons visualiser les trajectoires des particules sur les figures 5.17 et 5.18. Nous remarquons que les trajectoires du produit de fission  $^{145}\text{Ba}$  sont plus déviées par rapport à la direction initiale (selon (Oy) seulement) selon TRIM que selon MCTPF. Les figures 5.19, 5.20, 5.21 et 5.22 montrent la distribution des positions selon les axes perpendiculaires à la cible (Ox et Oz) lorsqu'il s'agit du transport des particules  $\alpha$  ou du produit de fission  $^{145}\text{Ba}$ . Nous remarquons que les distributions obtenues par MCTPF et TRIM sont assez ressemblantes avec toutefois une distribution plus large donnée par TRIM (déviations des trajectoires plus importantes). Cependant les distributions données par TRIM ne sont pas symétriques par rapport au zéro (position initiale) ce qui est très surprenant puisque nous nous attendons à ce qu'il n'y ait pas de direction privilégiée lors de la déviation des particules.

La prise en compte du straggling, c'est-à-dire la déviation des particules lors du transport reste cependant un point extrêmement délicat. Néanmoins, la prise en compte du straggling dans MCTPF a été validée par ailleurs et nous avons choisi celle qui s'avérait être la plus cohérente. La différence principale entre MCTPF et TRIM semble donc provenir à la fois des divergences entre les tables de parcours et des divergences concernant le traitement du straggling.

<b>Produit de fission : Ba<sup>145</sup></b>	MCTPF	TRIM (2003)	Ecart
Nb de produit de fission sortant de la cible	99.83 %	99.04 %	0.8 %
Valeur maximale de la distribution énergétique des produits de fission sortant de la cible	18.64	20.97	11.1 %
Valeur moyenne de la distribution énergétique des produits de fission sortant de la cible	18.50	20.43	9.5 %

<b>Particules <math>\alpha</math></b>	MCTPF	TRIM (2003)	Ecart
Nb d' $\alpha$ sortant de la cible	99.66 %	99.97 %	0.31 %
Valeur maximale de la distribution énergétique des particules $\alpha$ sortant de la cible	2.45	2.50	1.88 %
Valeur moyenne de la distribution énergétique des particules $\alpha$ sortant de la cible	2.45	2.49	1.48 %

TAB. 5.2 – Récapitulatif des caractéristiques des distributions d'énergie de sortie de cible, pour MCTPF et pour TRIM, pour une cible de 5  $\mu\text{m}$  d'épaisseur.

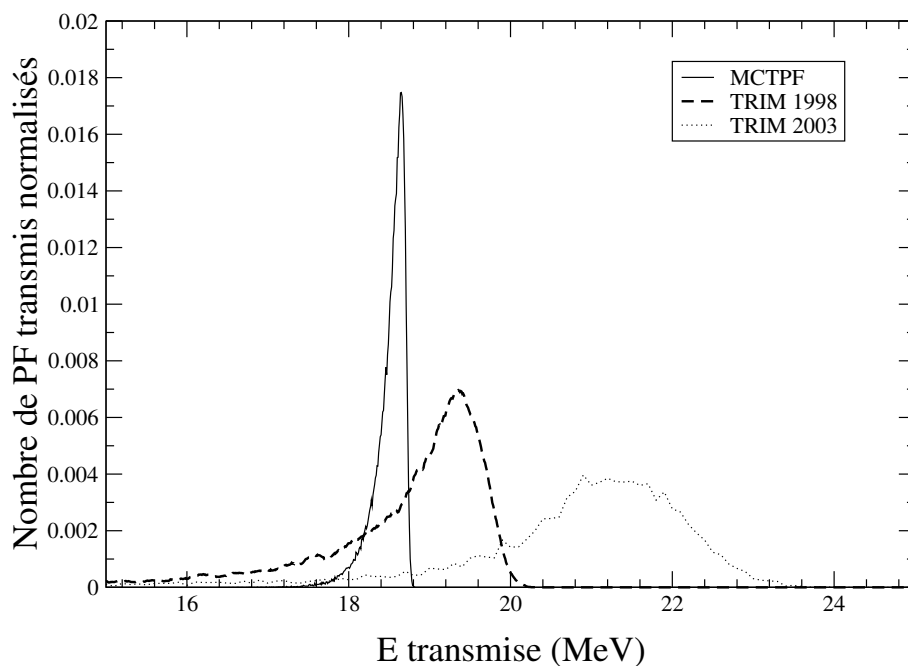


FIG. 5.15 – Spectres d’énergie de sortie de cible de l’élément  $^{145}\text{Ba}$  d’énergie initiale 100 MeV obtenus par TRIM 1998, TRIM 2003 et MCTPF utilisant les tables de parcours données par SRIM 2003. L’épaisseur de la cible est  $5\ \mu\text{m}$ .

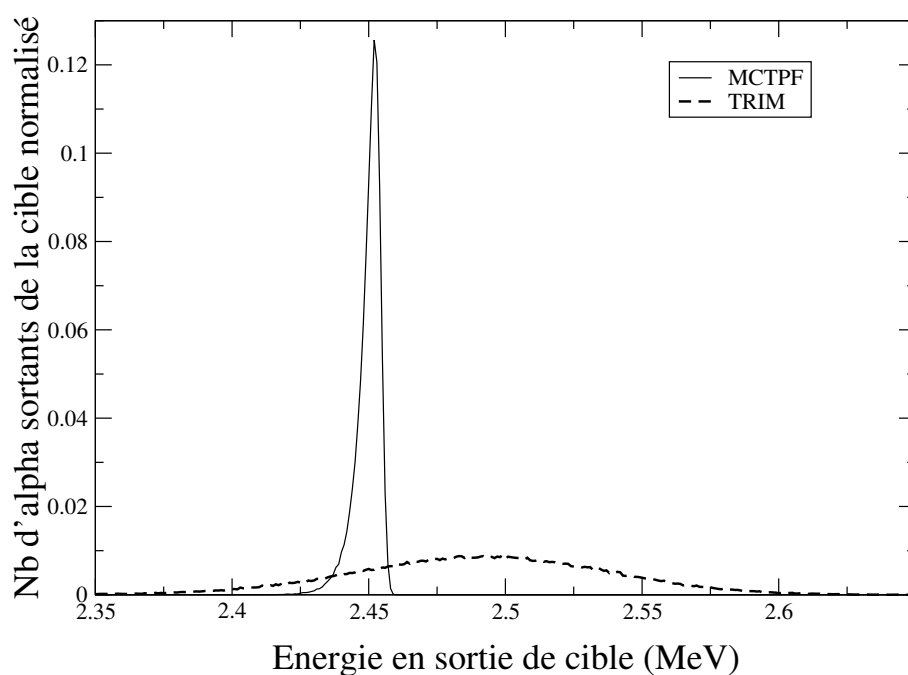


FIG. 5.16 – Spectres d’énergie de sortie de cible des particules  $\alpha$  d’énergie initiale 4.4 MeV, obtenus par TRIM et MCTPF. L’épaisseur de la cible est de  $5\ \mu\text{m}$ .

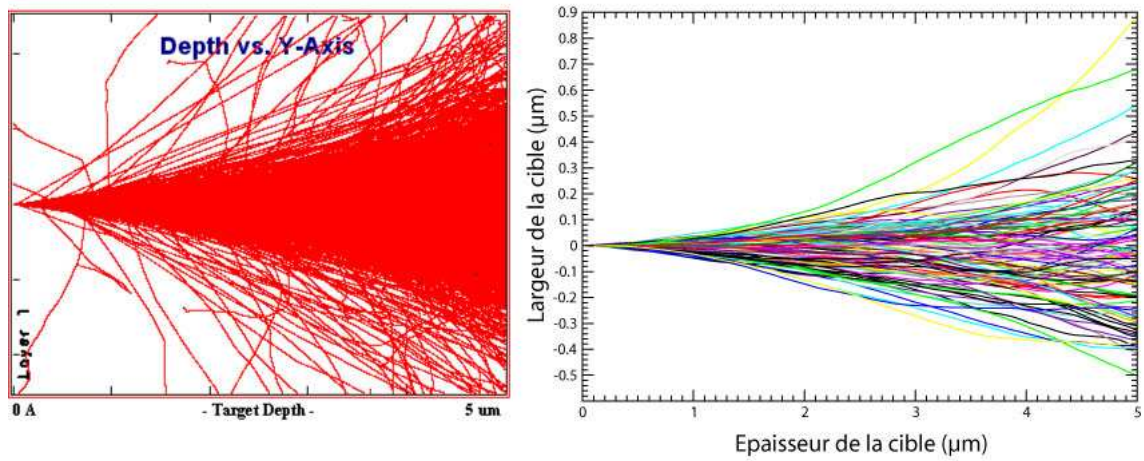


FIG. 5.17 – Trajectoires dans la cible du produit de fission  $^{145}\text{Ba}$  (épaisseur de cible :  $5\ \mu\text{m}$ , énergie initiale :  $100\ \text{MeV}$ ) obtenues par TRIM à gauche et par MCTPF à droite.

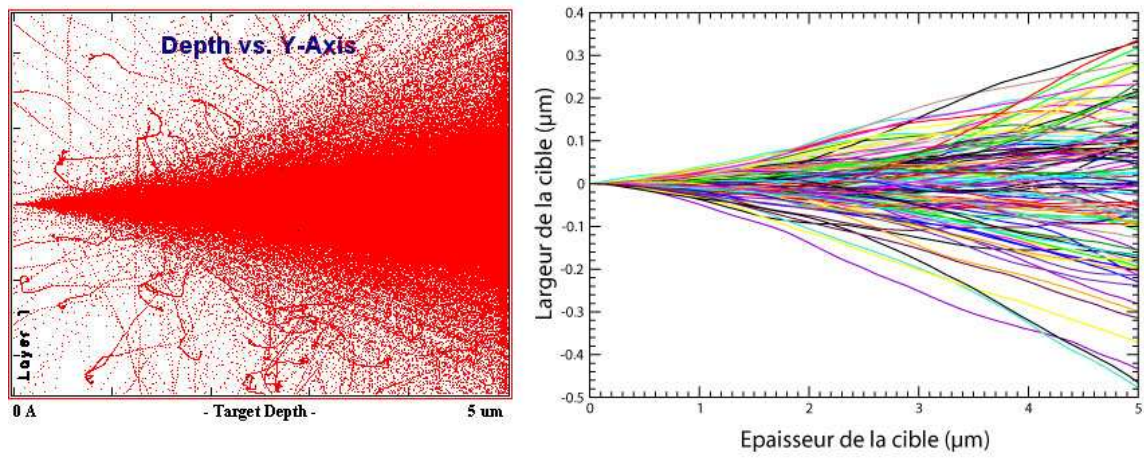


FIG. 5.18 – Trajectoires dans la cible des particules  $\alpha$  (épaisseur de cible :  $5\ \mu\text{m}$ , énergie initiale :  $4.4\ \text{MeV}$ ) obtenues par TRIM à gauche et par MCTPF à droite.

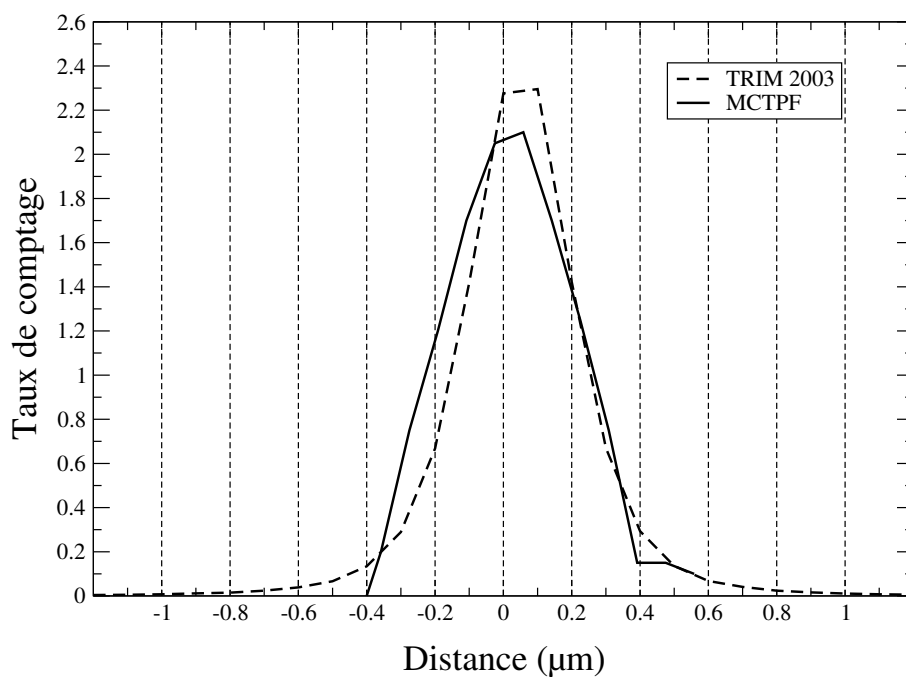


FIG. 5.19 – Distribution des projections selon l'axe x de la position des particules  $\alpha$  en sortie de cible obtenus avec TRIM et avec MCTPF.

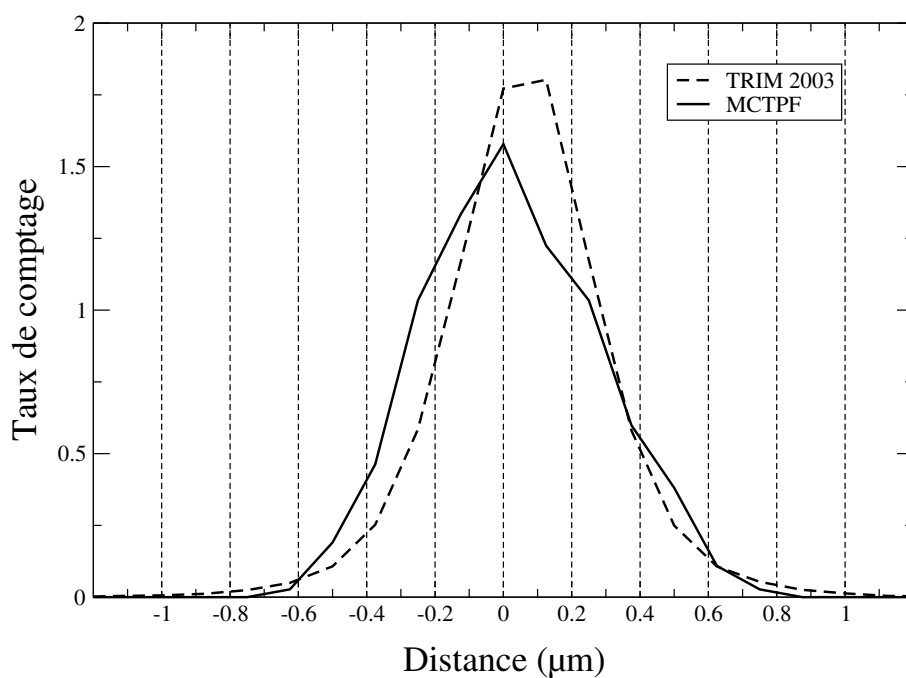


FIG. 5.20 – Distribution des projections selon l'axe x de la position du produit de fission  $^{145}\text{Ba}$  en sortie de cible obtenus avec TRIM et avec MCTPF.

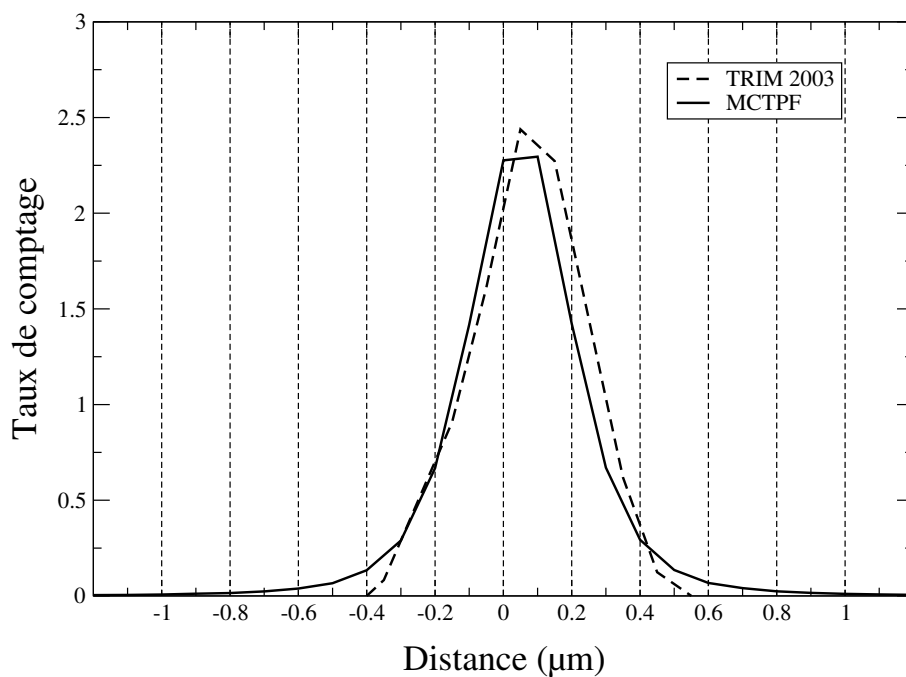


FIG. 5.21 – Distribution des projections selon l'axe z de la position des particules  $\alpha$  en sortie de cible obtenus avec TRIM et avec MCTPF.

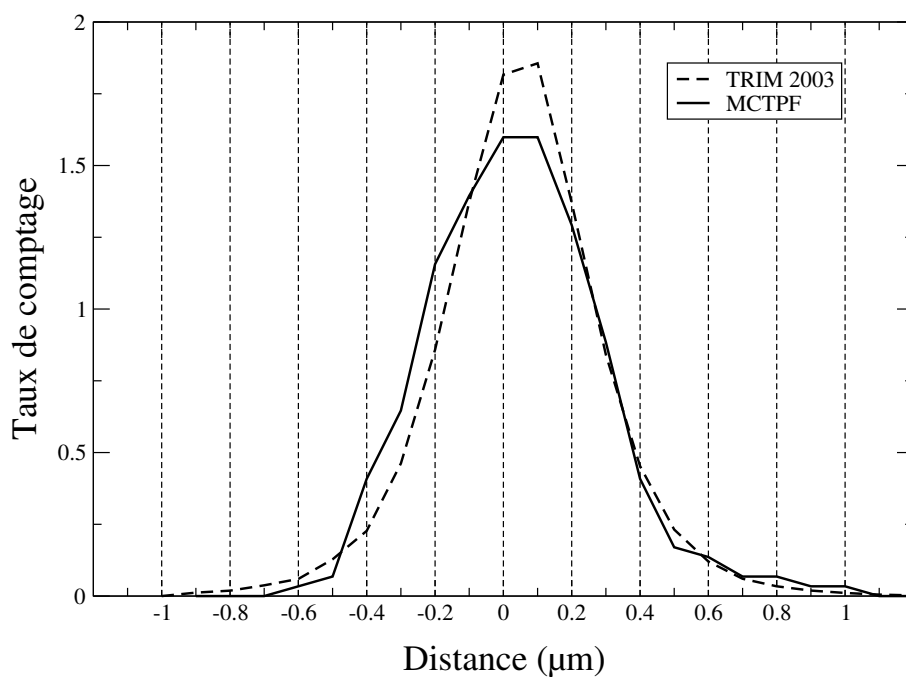


FIG. 5.22 – Distribution des projections selon l'axe z de la position du produit de fission  $^{145}\text{Ba}$  en sortie de cible obtenus avec TRIM et avec MCTPF.

Nous pouvons donc considérer MCTPF validé. Une étude de l'efficacité de sortie de cible en fonction de l'épaisseur peut donc nous guider pour le choix de l'épaisseur de la cible. Cependant, nous



restons conscients que les valeurs des efficacités de sortie de cible des produits de fission n'atteindront pas le degré de précision souhaité, avec de telles simulations. C'est donc une des raisons majeures pour laquelle nous souhaitons caractériser et quantifier notre dispositif expérimental avec des cibles d' $^{235}\text{U}$  : nous pourrions recalibrer le spectre de fission obtenu dans la chambre à fission avec la section efficace de fission connue, afin d'améliorer la précision sur la connaissance de l'efficacité de détection de fission.

### **5.1.3 Résultats des simulations de MCTPF**

MCTPF a été développé afin d'optimiser les caractéristiques géométriques de la chambre à fission et des cibles pour la mesure du rapport  $\alpha$ . En particulier, il a aidé à choisir la géométrie de la chambre à fission ainsi que l'épaisseur de la cible.

#### **5.1.3.1 Choix de la géométrie de la chambre à fission**

La désintégration naturelle de l'uranium produit des particules  $\alpha$ , dont certaines peuvent être interprétées comme des événements de fission. Afin de séparer au mieux ces deux contributions nous pouvons agir sur deux paramètres, les autres étant fixés pour des raisons de faisabilité, de sûreté et de place disponible. Le premier paramètre est la distance entre les cibles d'uranium lors de la construction de la chambre à fission, pour une pression de gaz donnée. Le second est la valeur de la haute tension appliquée. Nous choisissons ainsi le régime de fonctionnement de la chambre à fission (chambre d'ionisation ou régime proportionnel). Nous voulions nous assurer grâce à MCTPF que, lors de la conception de la chambre à fission, la contribution des particules  $\alpha$  et de leur empilement est a priori bien distincte de celle des produits de fission.

Nous avons fixé à 7 mm d'épaisseur de gaz entre les deux cibles, celles-ci étant de taille importante (5 cm  $\times$  5 cm). La chambre à fission ainsi définie respecte les contraintes imposées. En effet, avec ces caractéristiques, nous obtenons les spectres représentés sur la figure 5.23. La contribution des particules  $\alpha$  reste séparée de celle des produits de fission même si l'on prend en compte les empilements (cf partie 5.2.3.1).

#### **5.1.3.2 Efficacité de détection**

Une autre utilité de ce code est la détermination de l'efficacité de détection des produits de fission dans la chambre en fonction de l'épaisseur et de la taille de la cible. Comme expliqué précédemment, nous avons besoin de connaître cette efficacité avec la meilleure précision possible. Ce que nous calculons ici est l'efficacité de sortie de cible des produits de fission et non l'efficacité totale de détection de la fission dans la chambre. Nous ne prenons pas en compte la collection de ces produits de fission par les fils d'électrode. Une telle étude a cependant permis de mieux définir l'épaisseur de nos cibles : elle résulte du compromis entre efficacité de sortie de cible et taux de comptage des événements de capture.

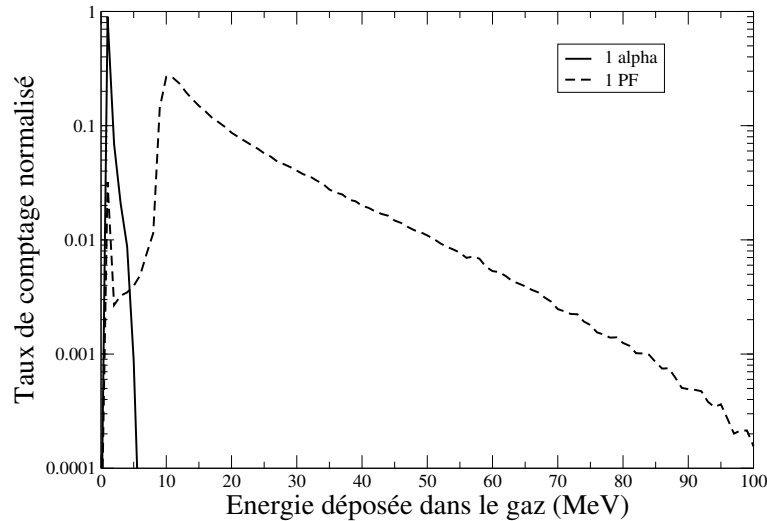


FIG. 5.23 – Spectres des énergies déposées dans le gaz de la chambre à fission par une particule  $\alpha$  ou par un produit de fission seulement (sans la prise en compte des empilements de particules), normalisés au nombre de particules émises.

Une étude de l'efficacité de sortie de cible a pu être effectuée, en supposant les cibles parfaitement homogènes. Les résultats sont répertoriés dans le tableau 5.3. Plus les cibles sont fines, meilleure est l'efficacité de sortie de cible au détriment du taux de comptage. L'efficacité de sortie de cible est supérieure à 95 % pour une épaisseur de cible inférieure à  $1 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

Nous avons finalement choisi une épaisseur de  $300 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ , correspondant à une efficacité de sortie de cible de 97.6 % et à 3.2 captures par seconde attendues.

## 5.2 Etudes préliminaires du fonctionnement de la chambre à fission

Les chambres à fission conçues et les cibles caractérisées, des premiers tests pour déterminer les caractéristiques de fonctionnement de ce type de chambre à fission ont été effectués. Nous avons commencé sans les cibles pour vérifier que la mise sous tension n'induisait pas de claquage électrique intempestif. Puis, nous avons inséré les cibles d' $^{235}\text{U}$  dans une première chambre à fission que nous avons caractérisée.

### 5.2.1 Etude du fonctionnement de la chambre à fission avec GENEPI en fonction de la haute tension appliquée

Des premières mesures avec la chambre à fission à  $^{235}\text{U}$  ont été effectuées en fonction de la haute tension appliquée. La pression du gaz est alors de 0.5 bar. Nous voulons fonctionner dans le régime optimal pour lequel l'efficacité de détection des produits de fission est maximale. Cependant, aug-

Épaisseur de la cible ( $\mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	Nombre de produits de fission sortant de la cible (%)	Taux de comptage de capture (captures / s)
10	99.92	0.11
50	99.59	0.53
100	99.21	1.06
200	98.41	2.11
<b>300</b>	<b>97.63</b>	<b>3.17</b>
500	96.2	5.28
1000	95.0	10.56

TAB. 5.3 – Nombre de produits de fission sortant de la cible, et taux de comptage de capture en fonction de l'épaisseur de la cible d' $\text{UO}_2$ . Le nombre de produits de fission sortant de la cible a été obtenu par MCTPF tandis que les taux de capture sont issus de simulations MCNP. Les erreurs statistiques sont négligeables.

menter la haute tension signifie augmenter le bruit de fond basse énergie. La figure 5.24 à gauche représente les spectres obtenus en faisant varier la tension de polarisation. Le gain des amplificateurs a dû être adapté, même si nous avons essayé de garder, dans la mesure du possible, des gains identiques entre les différentes prises de données. Pour éviter toute saturation lors des mesures à hautes tensions, le gain a donc été diminué pour toutes les mesures. C'est pourquoi, nous ne voyons pas les contributions des particules  $\alpha$  pour les tension inférieures à 500 V.

Les spectres en énergie de la chambre à fission montrent, qu'à 600 V et 700 V, le bruit de fond devient très important. Il est de plus en plus difficile de séparer correctement les particules  $\alpha$  des produits de fission. Nous rappelons que ces spectres sont obtenus avec une chambre à  $^{235}\text{U}$ . Comme il est impératif, afin de pouvoir comparer la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  à celle du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , d'effectuer ces mesures dans des conditions rigoureusement identiques, le choix de la haute tension, de l'électronique d'acquisition, de la pression du gaz, ... doit rester valable pour les deux chambres à fission. Or, on s'attend à une contribution des particules  $\alpha$  provenant de l' $^{233}\text{U}$  sous le pic de fissions beaucoup plus importante comparativement à celle de l' $^{235}\text{U}$  à cause des empilements. Afin de s'assurer de la bonne séparation entre les particules  $\alpha$  des produits de fission, nous préférons travailler à une haute tension de 500 V dans les conditions expérimentales décrites ci-dessus. Cependant, si nous calculons le nombre de fissions vues, normalisé au nombre de neutrons par exemple, en fonction de la haute tension appliquée (cf figure 5.25), nous pouvons voir que nous ne travaillons pas, pour la haute tension de 500 V choisie, avec une efficacité de détection des produits de fission optimale. Pour une tension de 500 V, nous estimons ne récupérer que  $(92 \pm 7) \%$  des fissions.

Il s'est avéré que la chambre à fission fonctionnait déjà en régime proportionnel à 500 V (cf figure 5.24 à droite). Nous obtenons alors un spectre en énergie, présenté sur la figure 5.26, avec deux contributions parfaitement distinctes. Les conditions de fonctionnement de cette chambre correspon-

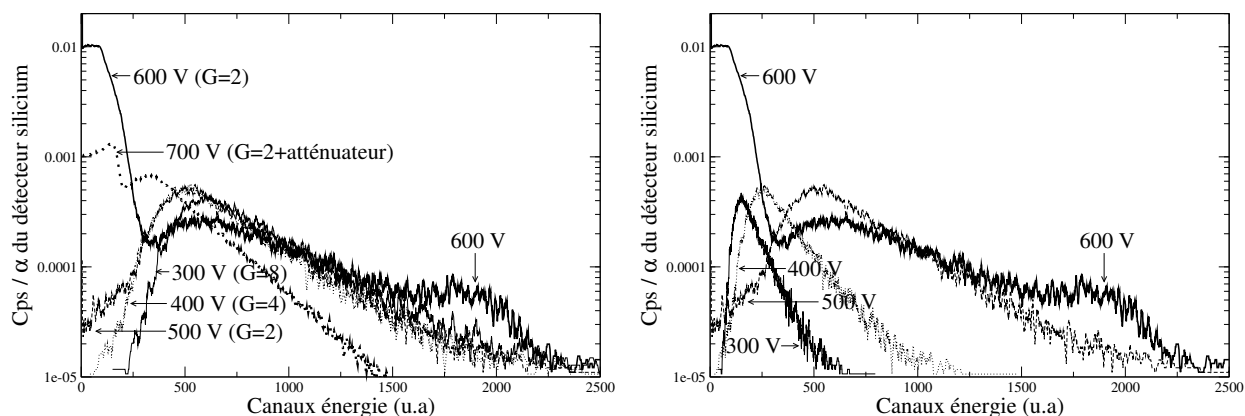


FIG. 5.24 – Spectre en énergie de la chambre à fission, normalisé au nombre de particules  $\alpha$  détectées dans le détecteur silicium, en fonction de la haute tension appliquée. La figure de gauche représente les spectres obtenus lors de l’acquisition de données tandis que la figure de droite montre les spectres ramenés à un même gain, excepté le spectre à 700 V puisque nous ne connaissons pas le terme d’atténuation.

dant à nos attentes, le diamètre des fils de l’électrode interne est gardé à une valeur de  $50 \mu\text{m}$  (cf chapitre 4, section 4.5.2).

## 5.2.2 Proportion des particules $\alpha$ dans le spectre de fission pour l’ $^{235}\text{U}$ : mesures expérimentales

Le but de ce paragraphe est de quantifier la part des fissions qui ne seront pas comptabilisées car situées en dessous du pic des particules  $\alpha$ . En effet, lorsque nous imposons sur les spectres la condition “fission sans les particules  $\alpha$ ”, cela revient à imposer, dans le programme d’analyse, un seuil bas sur le spectre en amplitude de la chambre à fission. Les fissions sous le pic  $\alpha$  sont donc irrémédiablement supprimées. Nous devons donc quantifier cette proportion afin de corriger l’efficacité de détection de fission en conséquence.

Pour cela, nous traçons deux spectres (cf figure 5.27) :

- le spectre en énergie dans la chambre à fission, qui est constitué du pic  $\alpha$  et du pic de fission.
- le spectre en énergie dans la chambre à fission, en coïncidence avec les scintillateurs YAP et corrigé de l’efficacité de détection. Ceci signifie que nous traçons le spectre en énergie dans la chambre à fission lorsque nous avons détecté en même temps un photon gamma dans un des scintillateurs. Le seuil des discriminateurs des scintillateurs YAP de 10 mm d’épaisseur est fixé à plus de 200 keV. Ainsi nous sommes assurés de ne pas prendre en compte les événements correspondant à la détection d’une particule  $\alpha$  dans la chambre à fission et d’un photon gamma de décroissance de l’ $^{235}\text{U}$  (186 keV).

Nous corrigeons ce dernier de l’efficacité de détection de la fission sans coïncidence dans les scintillateurs. Nous pouvons alors en déduire que la proportion des fissions sous le pic  $\alpha$ , comme illustré sur la figure 5.27, s’élève à 2.5 %.

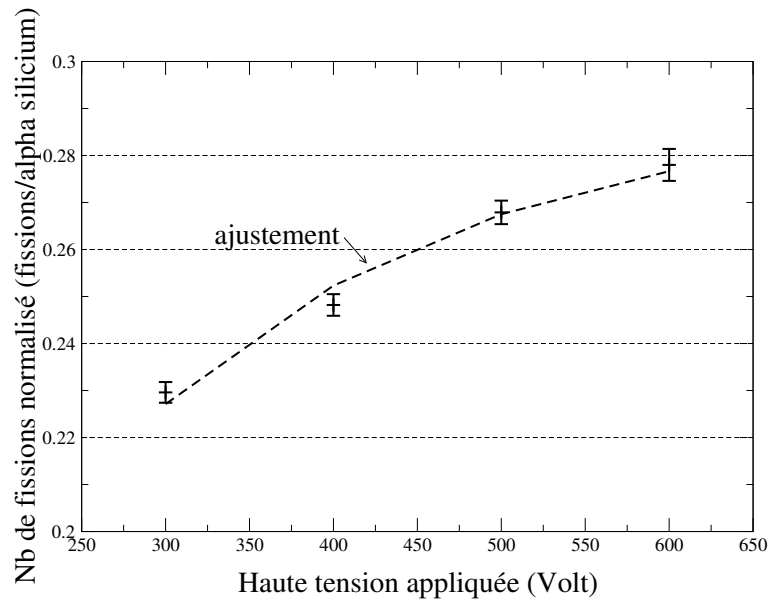


FIG. 5.25 – Nombre de fissions détectées dans la chambre à fission, normalisées au nombre de particules  $\alpha$  vues dans le détecteur silicium, en fonction de la haute tension appliquée (seules sont indiquées les erreurs statistiques).

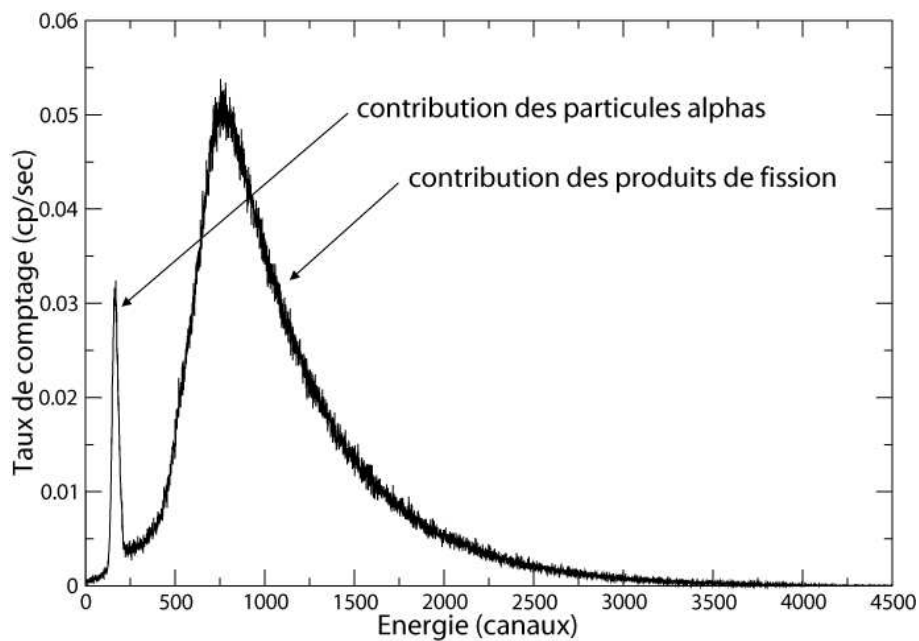


FIG. 5.26 – Spectre en énergie typique de la chambre à fission, obtenue avec une haute tension de 500 V.

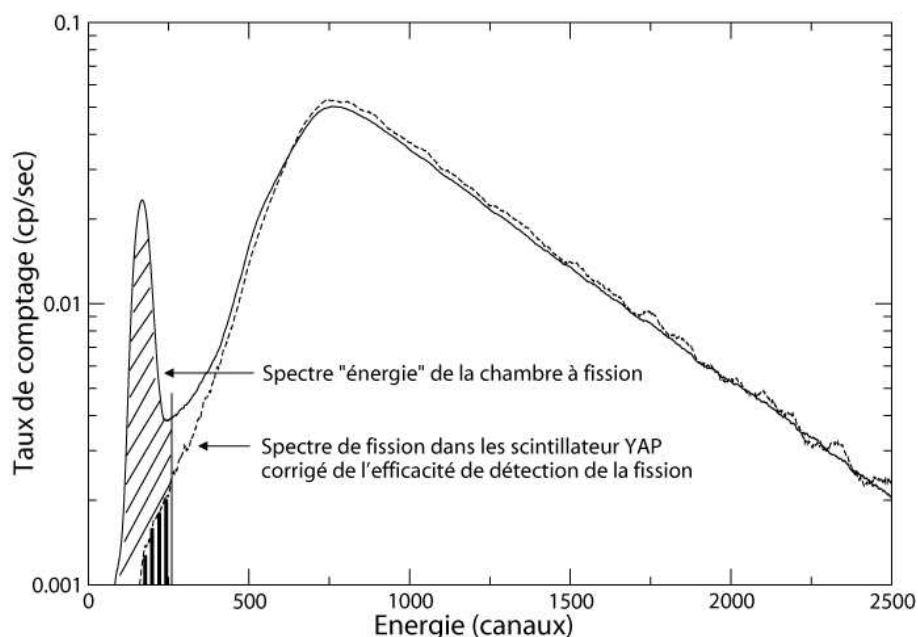


FIG. 5.27 – Estimation de la proportion d'événements de fissions sous le pic  $\alpha$ , indiqué par les hachures verticales.

### 5.2.3 Proportion des particules $\alpha$ dans le spectre de fission pour l' $^{235}\text{U}$ : estimation par MCTPF.

Nous pouvons comparer ce chiffre expérimental à l'estimation que l'on a faite grâce aux simulations. Cependant, pour rendre le spectre obtenu par MCTPF comparable au spectre expérimental, nous devons prendre en compte deux paramètres supplémentaires :

- la résolution en énergie de la chambre à fission
- la détection multiple de particules

La comparaison et la cohérence avec le spectre expérimental nous permettra de vérifier si tous les phénomènes ont bien été compris. C'est en quelque sorte la dernière validation de MCTPF. Notez que SRIM n'introduit absolument pas l'électronique ni les phénomènes dans le gaz (quenching). Ce code donne uniquement le dépôt d'énergie dans le gaz pour une géométrie simple. Pour prendre en compte notre géométrie de chambre et essayer de simuler l'électronique d'acquisition, nous sommes obligé d'utiliser MCTPF. Cependant, nous ne pouvons pas quantifier directement la proportion des particules  $\alpha$  dans le spectre de fission grâce aux résultats de MCTPF puisqu'il faut prendre en compte toute la chaîne de détection lors de la simulation. Simuler toute la chaîne de détection (collection des particules dans le gaz, quenching, électronique) étant particulièrement complexe, nous nous focalisons principalement sur la multidétection des particules due au temps de collection de la chambre à fission. Ainsi nous simulons l'électronique d'acquisition et pas les phénomènes de collection dans la chambre.

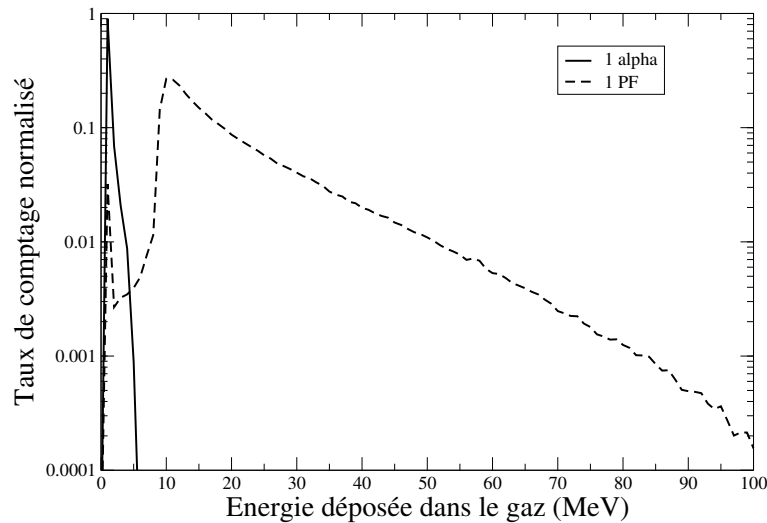


FIG. 5.28 – Spectres des énergies déposées dans le gaz de la chambre à fission par une particule  $\alpha$  et par un produit de fission seulement.

### 5.2.3.1 Multidétection de particules

Grâce à MCTPF, la pression et les dimensions de la chambre à fission ont été volontairement choisies de façon à pouvoir séparer au mieux les particules  $\alpha$  des produits de fission. En effet, le spectre des particules  $\alpha$  se replie vers les basses énergies (seulement 1.4 % des particules  $\alpha$  s'arrêtent dans le gaz). Si l'on superpose les spectres d'énergie déposée dans le gaz par les particules  $\alpha$  et par les produits de fission, nous obtenons la courbe 5.28, les spectres étant normalisés au nombre de particules émises par seconde.

Nous voyons que le seuil de détection peut être fixé à 4.4 MeV si on ne tient pas compte des empilements des particules  $\alpha$ . La proportion des événements de fission sous le pic  $\alpha$  est alors estimée à 1.30 % des fissions totales détectées. Or, il s'avère que cette proportion est supérieure en réalité puisque nous devons impérativement prendre en compte les empilements.

En effet, nous avons  $7.35 + 7.32 = 14.67$  mg d' $^{235}\text{UO}_2$  au total pour les deux cibles d' $^{235}\text{U}$  soit une activité totale de  $14.67 \cdot 1780 = 26.1$  kBq. Cependant, les cibles n'émettent que dans  $2\pi$  sr. Nous avons donc  $13.05 \cdot 10^3$  particules  $\alpha$  détectables par seconde. De plus, nous savons [57] que le temps de collection  $\tau$  d'une telle chambre est d'environ 500 nsec pour 1 cm et 500 V appliqués, ce qui correspond aux caractéristiques de la chambre que l'on utilise. Nous collectons donc en moyenne  $6.53 \cdot 10^{-3}$  particules  $\alpha$  pendant le temps de collection  $\tau$ . L' $^{233}\text{U}$  utilisé pour les cibles étant 200 fois plus actif que l' $^{235}\text{U}$ , les empilements pour la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  seront beaucoup plus importants, ce qui nous pénalisera pour la séparation entre le pic de contribution des particules  $\alpha$  et celui des produits de fission. Il est donc impératif de s'intéresser aux détections multiples.

Notez que le calcul précédent donne une borne supérieure du nombre de particules  $\alpha$  collectées par seconde. En effet, nous avons supposé que toutes les particules  $\alpha$  sortent de la cible. Or, d'après

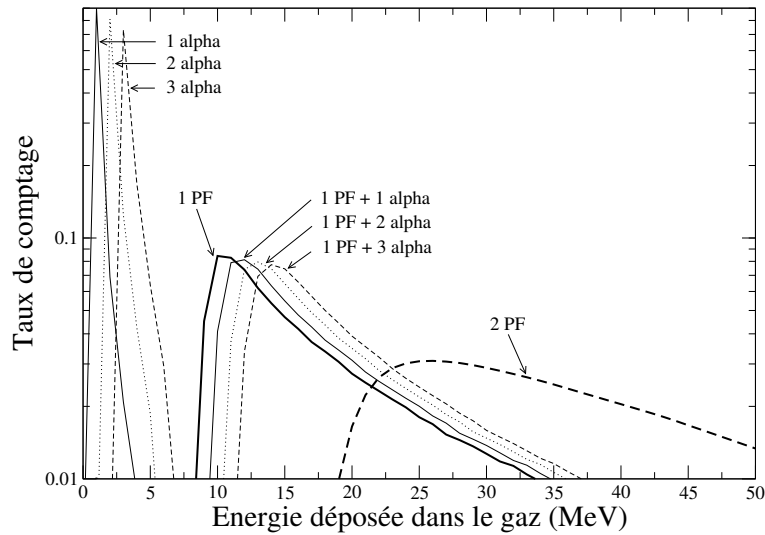


FIG. 5.29 – Spectres des énergies déposées dans le gaz de la chambre à fission par 1, 2 ou 3 particules  $\alpha$  ou 1 à 2 produits de fission (PF) ou encore par la combinaison de la détection de 1, 2 ou 3 particules  $\alpha$  avec 1 produit de fission. Les spectres sont tous normalisés à 1.

une simulation avec le code, l'efficacité de sortie de cible est de  $98.45 \% \pm 0.20 \%$  et l'efficacité de dépôt dans le gaz est de  $49.36 \% \pm 0.12 \%$  (égale à l'efficacité de sortie de cible divisée par deux, à l'erreur statistique près). Nous avons donc en réalité :

$$26.1 \text{ kBq} * 0.494 = 12.8 \cdot 10^3 \alpha \cdot s^{-1}$$

soit  $6.4 \cdot 10^3$  particules  $\alpha$  collectées par acquisition pour la chambre à fission à  $^{235}\text{U}$ .

### Méthode rapide

Une première méthode consiste à calculer les spectres de détection de 2 particules  $\alpha$  par convolution entre le spectre de détection d'1  $\alpha$  et lui-même. Celui pour la détection de 3  $\alpha$  est obtenu en convoluant le spectre de détection d'1  $\alpha$  avec le spectre de détection de 2  $\alpha$ . Et ainsi de suite ... Nous faisons de même pour les multidétections entre les produits de fission ou encore entre les particules  $\alpha$  et les produits de fission. Les courbes de convolution obtenues et normalisées à 1 sont visibles sur la figure 5.29.

Le spectre complet de détection des particules  $\alpha$  est obtenu en sommant les différents spectres de détection de  $n$  particules  $\alpha$  pondérés par les probabilités de détecter  $n$  particules  $\alpha$ . Cette dernière suit une loi de Poisson :

$$P(n, \mu) = \frac{\mu^n e^{-\mu}}{n!} \text{ avec } \mu \text{ le nombre moyen d'occurrences}$$



Ici,  $\mu$  est égal à  $6.4 \cdot 10^{-3} \alpha$  par acquisition. Les probabilités de voir  $n \alpha$  pendant le temps  $\tau$  de collection sont :

$$\begin{aligned} \text{proba}( 0 \alpha ) &= 0.99349 \\ \text{proba}( 1 \alpha ) &= 0.00649 \\ \text{proba}( \geq 2\alpha ) &= 0.00002 \end{aligned}$$

De même, pour les produits de fission, nous utilisons une distribution de Poisson pour laquelle il faut adapter  $\mu$ . Nous avons environ 45 fissions/s pour une cible soit 90 fissions/s en tout. Cependant, l'efficacité de dépôt d'énergie dans le gaz est de 98 % (en l'absence de seuil en énergie). Nous avons donc en moyenne 88 fissions vues par seconde. Pendant le temps de collection  $\tau$ , nous attendons, en moyenne,  $44 \cdot 10^{-6}$  fissions. D'où les probabilités de voir  $n$  produits de fission pendant le temps  $\tau$  de collection :

$$\begin{aligned} \text{proba}( 0 \text{ produit de fission} ) &= 0.999956 \\ \text{proba}( 1 \text{ produit de fission} ) &= 44 \cdot 10^{-6} \\ \text{proba}( \geq 2 \text{ produits de fission} ) &= \text{négligeable} \end{aligned}$$

Nous avons peu de comptage de fission : la probabilité de voir deux fissions est ici négligeable. Nous nous intéressons donc seulement aux spectres des produits de fission détectés seul ou avec une ou plusieurs particules  $\alpha$ . La probabilité de voir  $n$  produits de fissions et  $m$  particules  $\alpha$  à la fois correspond au produit des probabilités individuelles puisque les événements sont indépendants. On a :  $\text{proba}( n \text{ produits de fission ET } m \alpha ) = \text{proba}( n \text{ produits de fission} ) * \text{proba}( m \alpha )$ . Nous renormalisons donc tous les spectres par ces probabilités (le taux de comptage est déjà pris en compte dans le facteur  $\mu$  de la distribution de Poisson). La détection d'un produit de fission avec 1 ou plusieurs particules  $\alpha$  n'est pas gênante pour la mesure puisque, décalant les spectres vers les hautes énergies, elle n'impose pas de limite supplémentaire sur le seuil en énergie. Le seuil est donc choisi de façon à séparer la détection d'au moins un produit de fission de la détection multiple des particules  $\alpha$ .

D'après les calculs de probabilités précédents, nous estimons pouvoir détecter jusqu'à 3  $\alpha$ . De même, seul le premier produit de fission sera détecté (il n'y aura pas de multi-détection de produits de fission). En multipliant chaque spectre par la probabilité correspondante et en les sommant, nous obtenons le spectre complet de détection (cf figure 5.30). Nous pouvons alors calculer, en fonction du seuil de séparation, la contribution des fissions qui se superpose avec celle des particules  $\alpha$ . Le seuil choisi, sans prendre en compte les empilements, à 4.4 MeV paraît désormais trop faible : la part des événements de fissions qui seront assimilés à des particules  $\alpha$  par rapport au nombre de fission détectées reste égale à 1.30 % par contre, 12.5 % des événements considérés comme des fissions sont en réalité des particules  $\alpha$ . Par contre, si l'on décide de ne s'intéresser qu'aux événements au dessus de 6.5 MeV, la part des événements de fissions assimilés à des particules  $\alpha$  est de 1.58 % tandis que 0.03 % des événements considérés comme des fissions sont en réalité des particules  $\alpha$ .

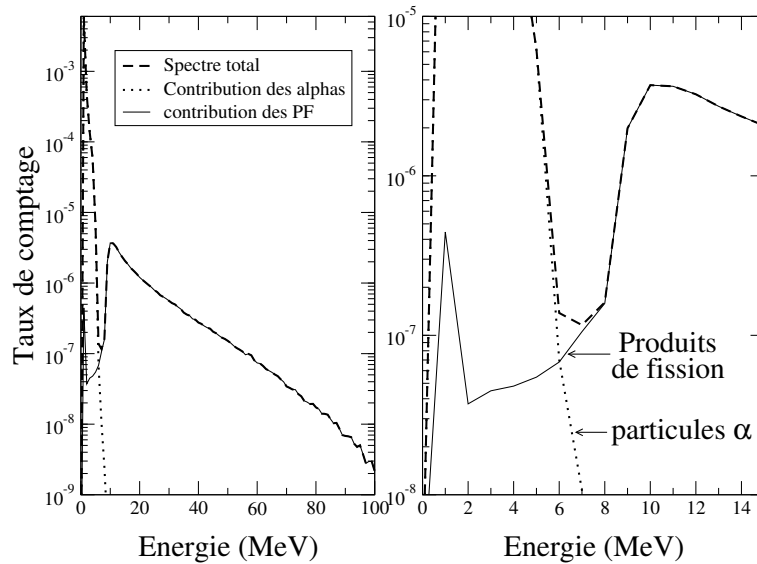


FIG. 5.30 – Spectre en énergie dans la chambre à fission simulé par MCTPF (courbe en tirets). Les empilements sont pris en compte grâce à la méthode rapide. La courbe en pointillé (resp. pleine) représente le spectre en énergie issu de MCTPF de détection d’une seule particule  $\alpha$  (resp. un produit de fission), sans empilement. On notera que la figure de droite est un zoom à basses énergies de la figure de gauche.

### Méthode fine

Dans le paragraphe précédent, nous avons décrit une première méthode pour obtenir un spectre prenant en compte les multidétections de particules. Cependant, ce calcul est trop “manichéen” et dépend de trop de paramètres : cela correspond à un choix de type “tout ou rien” pour l’empilement. Or, il est impératif de prendre en compte la forme des signaux sortants de la chambre à fission. J’ai donc écrit un programme permettant de prendre en compte notre électronique d’acquisition : nous implémentons les valeurs expérimentales relevées caractérisant la chambre à fission et son électronique associée.

Ce programme est basé sur l’algorithme suivant. Nous souhaitons simuler  $N$  événements en énergie en prenant en compte la résolution et les empilements. Pour chacun de ces événements, nous commençons par prendre un temps de référence  $t_0$ . Puis, nous choisissons des temps selon une loi de Poisson (comme précédemment), tant que la somme de ces temps reste inférieure à une valeur fixée (par exemple trois fois le temps de montée du signal temps). Pour chaque valeur temps, on associe une valeur de l’énergie que l’on choisit. Cette valeur répond à la loi de distribution donnée par MCTPF. C’est à ce niveau que nous pouvons faire intervenir la résolution (cf partie 5.2.3.2). Puis, des tests sont effectués afin de savoir s’il y a empilement. Pour cela, deux critères doivent être satisfaits :

1. Seuls les signaux dont le temps est inférieur à trois fois le temps de montée du signal en sortie de détecteur sont pris en compte. Il faut que les signaux en sortie de détecteurs soient suffisamment rapprochés pour qu’il y ait empilement. C’est systématiquement imposé dans le code.

2. Il y a empilement si l'amplitude du point d'intersection entre deux signaux énergie consécutifs est au moins supérieur à la moitié de l'amplitude du premier signal énergie. Sinon, le signal énergie est égal seulement au premier signal énergie, les autres sont négligés. Cela correspond à un équivalent du critère de Rayleigh en optique.

Le schéma 5.31 permet de mieux comprendre la façon dont fonctionne le programme en donnant différents exemples. Remarquez que les critères choisis pour définir s'il y a eu empilement ou pas pourraient être modifiés.

De plus, dans ce programme, une exigence supplémentaire peut être demandée. Elle correspond au seuil imposé par l'électronique, plus particulièrement par les discriminateurs. Pour cela, nous calculons l'amplitude du signal total sortant des détecteurs. On calcule cette amplitude de la même manière que pour les signaux énergie. Puis, une fois cette amplitude déterminée, l'événement est pris en compte et enregistré seulement si elle est supérieure à un certain seuil. Ce seuil est défini comme paramètre d'entrée de la simulation. Ce critère est une fonction erreur, plus proche de la réalité physique, qu'une fonction passe-haut.

Une fois tous les événements en énergie prenant en compte les empilements calculés, nous pouvons alors tracer les spectres correspondants. Nous pouvons aussi les tracer en fonction du taux d'empilement c'est-à-dire en fonction du nombre d'événements empilés.

Nous pouvons comparer les spectres obtenus avec cette méthode par rapport à ceux obtenus avec la première méthode (cf figures 5.32 et 5.33). Nous constatons que la première méthode surestime les empilements par rapport à la seconde, ce qui était attendu.

### 5.2.3.2 Résolution

Afin d'obtenir un spectre comparable au spectre expérimental, il ne suffit pas de prendre en compte la multidétection des particules. Il est impératif de corriger les spectres par la résolution du dispositif de détection. Pour cela, nous avons utilisé le modèle suivant : si on note LMH la largeur à mi-hauteur :

$$LMH_{\text{fluctuations statistiques}}^2(E) = 2.35^2 \cdot F \cdot w \cdot E \quad (\text{ref LEO}) \quad (5.1)$$

avec :

- F, le facteur de Fano<sup>2</sup>. Il est pris égal à 0.2 [58] dans un premier temps. Une étude paramétrique en fonction de ce terme sera effectuée par la suite.
- w, l'énergie moyenne pour créer une paire électron/ion. Les tables indiquent 26.2 eV par paire électron/ion pour un mélange argon-méthane (90%-10%)
- E, l'énergie détectée

---

<sup>2</sup>Considérons, par exemple, un détecteur basé sur les phénomènes d'ionisation comme notre chambre à fission. Chaque particule produit en moyenne  $\bar{N}$  paires d'ions dans le volume sensible du détecteur. L'expérience montre que la valeur réelle de la variance est inférieure à ce que prévoit la distribution binomiale. On a :  $\sigma_{\bar{N}} = \sqrt{F\bar{N}}$ . Le facteur correctif F est appelé facteur de Fano. C'est un nombre inférieur à l'unité.

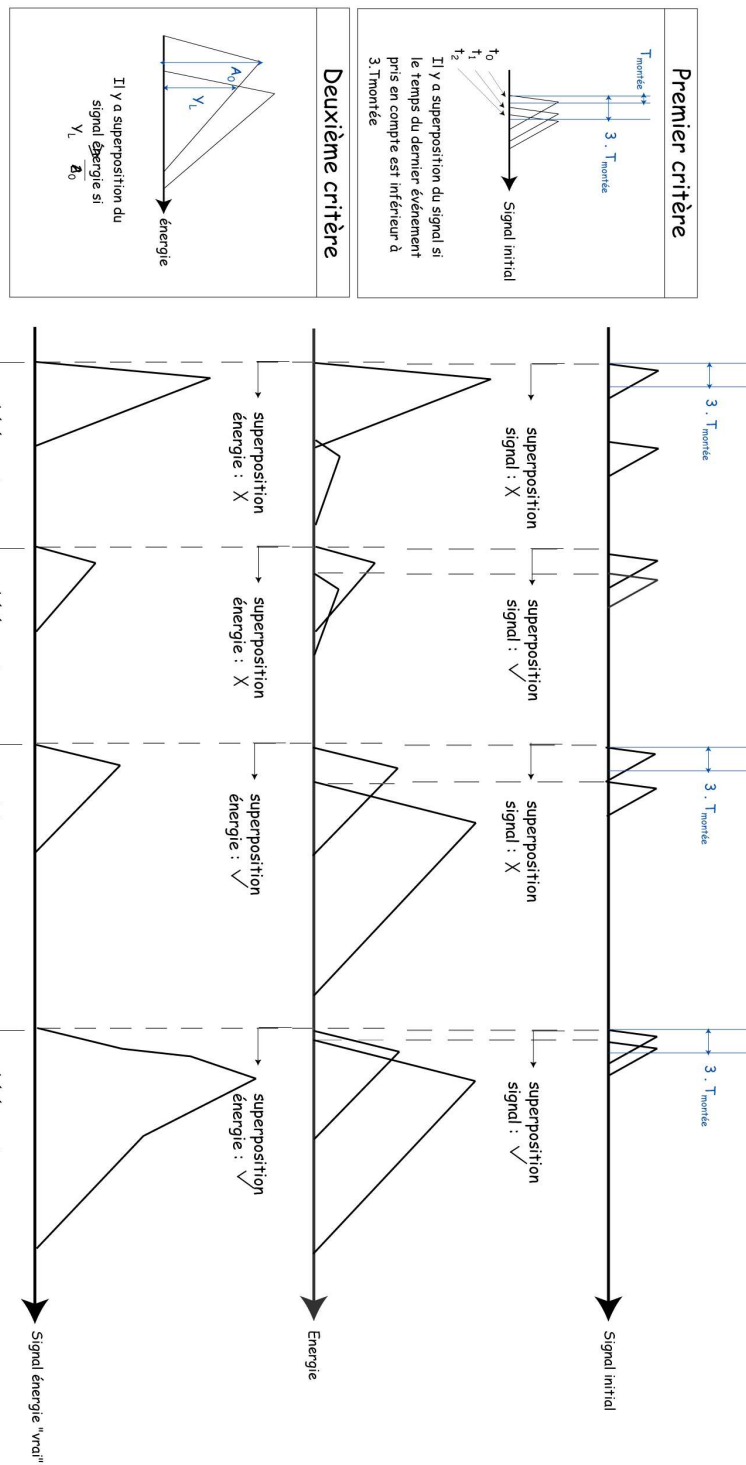


FIG. 5.31 – Schéma montrant le principe du code prenant en compte les empilements, pour un événement, afin d’obtenir le spectre en énergie de la chambre à fission à partir des spectres simulés donnés par MCTPF.

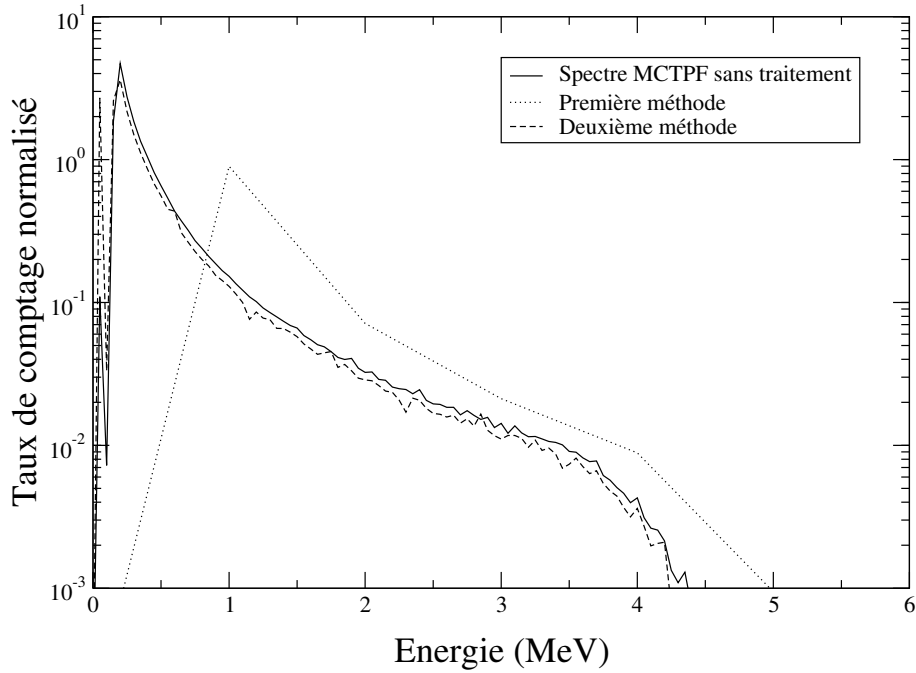


FIG. 5.32 – Comparaison des spectres des énergies déposées dans le gaz de la chambre à fission, par les particules  $\alpha$ , obtenu avec les deux méthodes expliquées.

Nous ne prenons en compte dans cette formule que la résolution induite par la fluctuation statistique du nombre de porteurs de charges. D'autres facteurs dégradent aussi la résolution comme le défaut de collection de charges ou encore l'électronique (bruits, dérives). Si nous supposons ces sources indépendantes et de distribution gaussienne, alors la résolution totale s'écrit, :

$$LMH^2 = LMH_{\text{fluctuations statistiques}}^2 + LMH_{\text{défaut de collection}}^2 + LMH_{\text{électronique}}^2 \quad (5.2)$$

Nous n'avons aucun moyen de mesurer expérimentalement la résolution du détecteur. Nous ne connaissons donc pas les termes provenant du défaut de collections de charges et de l'électronique. Nous les supposons indépendants de l'énergie. Nous pouvons alors écrire que la résolution en énergie est définie par un écart-type  $\sigma$  tel que son carré est égal à<sup>3</sup> :

$$\sigma^2 = F \cdot w \cdot E + c \quad (5.3)$$

avec la constante  $c$  définie par :

$$c = \frac{1}{2.35^2} (LMH_{\text{défaut de collection}}^2 + LMH_{\text{électronique}}^2) \quad (5.4)$$

Pour comparer le spectre expérimental au spectre simulé, il reste donc plusieurs indéterminées :

---

<sup>3</sup>On rappelle que :  $LMH = 2.35 \sigma$ .

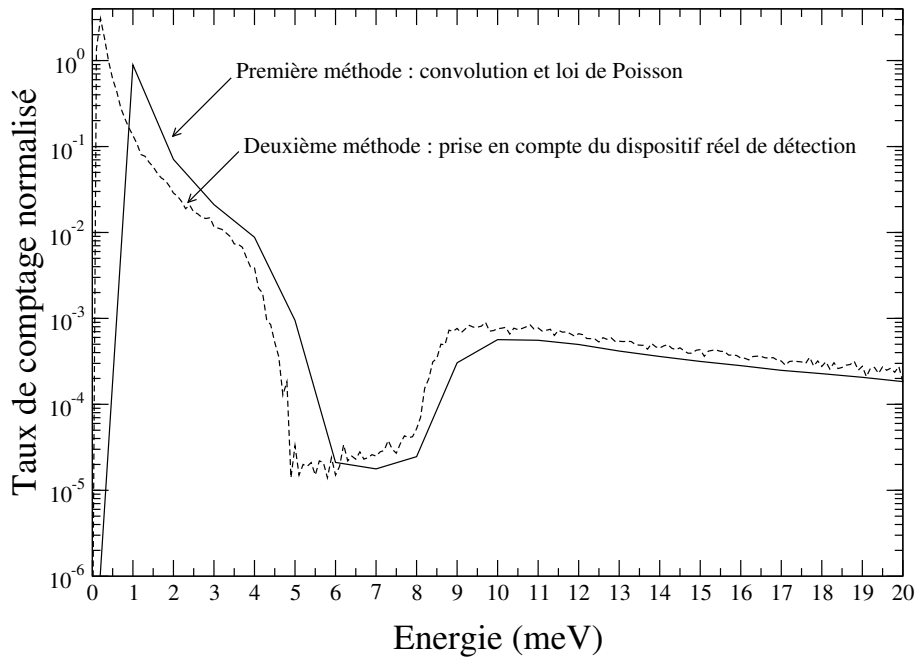


FIG. 5.33 – Spectres des énergies déposées dans le gaz de la chambre à fission obtenus avec les deux méthodes.

- pour la résolution, nous avons besoin de connaître le terme  $c$ , provenant du défaut de collections de charges et de l'électronique.
- nous devons aussi connaître l'équation d'étalonnage en énergie :  $E = a \cdot \text{canal} + b$ , avec  $a$  et  $b$  inconnues.

Ce sont autant de paramètres que nous avons fait varier pour adapter au mieux le spectre simulé au spectre expérimental. Nous avons aussi modifié le facteur de Fano puisque nous ne connaissons pas sa valeur exacte.

Pour la méthode dite "rapide", les spectres obtenus en faisant varier la résolution sont représentés sur la figure 5.34. Pour la méthode dite "fine", nous avons fait de nombreuses simulations en modifiant la résolution (cf figure 5.35). Il s'avère que le spectre final est très sensible au terme indépendant de l'énergie (terme  $c$ ). Cependant, nous remarquons qu'il "lisse" beaucoup trop la courbe, si l'on compare par rapport au spectre expérimental. Il semble donc que ce terme soit négligeable. Nous le prendrons pour la suite égal à zéro. De plus, la valeur du facteur de Fano ne modifie pas de façon significative l'allure du spectre final.

### 5.2.3.3 Comparaison du spectre simulé au spectre expérimental

La figure 5.36 montre les spectres obtenus avec les deux méthodes utilisées ainsi qu'un spectre expérimental. De plus, sur la courbe 5.37, nous avons superposé des spectres en énergie de la chambre

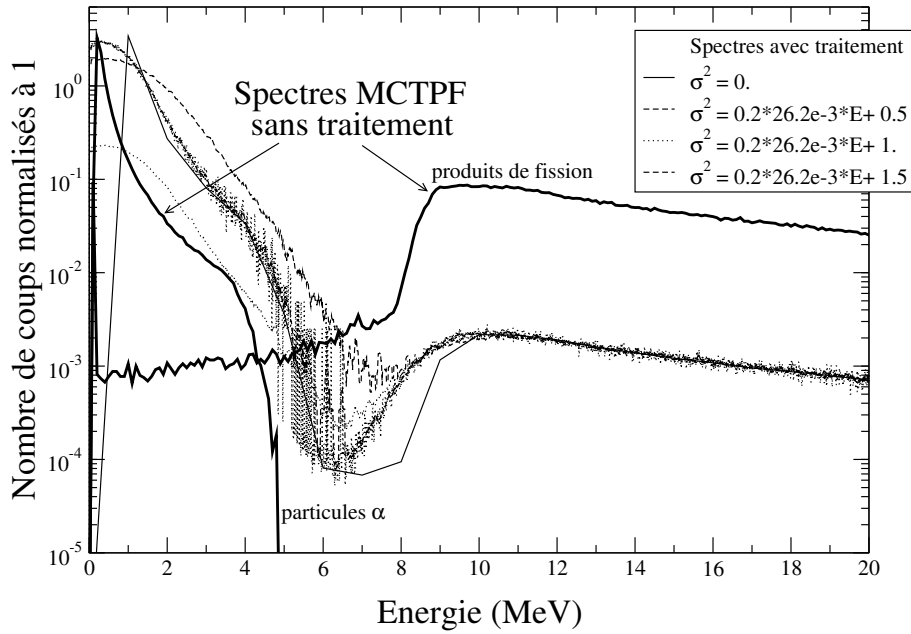


FIG. 5.34 – Comparaison entre les spectres en énergie obtenus directement grâce à MCTPF (sans traitement) et ceux après application de la méthode “rapide” pour la prise en compte des empilements et tracés pour des résolution en énergie différentes.

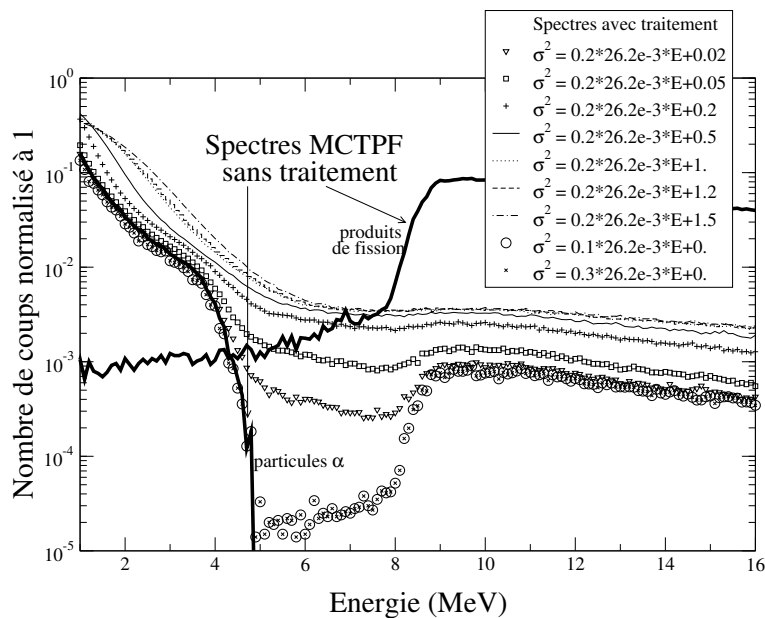


FIG. 5.35 – Comparaison entre les spectres en énergie obtenus directement grâce à MCTPF (sans traitement) et ceux après application de la méthode “fine” pour la prise en compte des empilements et tracés pour des résolution en énergie différentes.

à fission obtenus de façon expérimentale à celui obtenu par MCTPF dans le cas le plus “ressemblant” aux spectres expérimentaux. Nous remarquons deux différences principales :

1. La séparation entre les particules  $\alpha$  et les produits de fission (zone entre 6 et 8 MeV) est beaucoup plus marquée avec MCTPF que dans la réalité.
2. La pente décroissante du spectre d'énergie déposée par les produits de fission aux grandes énergies est moins forte avec MCTPF (facteur 1.5 à 20 MeV).

Or, nous avons déjà remarqué que les spectres en énergie donnés par MCTPF ressemblent à des distributions de Landau alors que SRIM indique que les spectres attendus sont plutôt de forme gaussienne. Ceci peut expliquer l'écart pour la zone en énergie entre 6 et 8 MeV. Notons que la différence entre les spectres simulés et expérimentaux s'expliquent essentiellement par la non prise en compte des phénomènes de collections comme le phénomène de quenching. Il est probable que les produits de fission, en fonction de leur énergie et de leur masse, ne soient pas collectés de la même façon.

Nous pouvons aussi comparer la proportion des fissions sous la contribution des particules  $\alpha$  par rapport au nombre de fissions totales. Elle est estimée, grâce à MCTPF, à 1.09 % et elle est égale, expérimentalement, à 2.5 %. Ces deux proportions sont distinctes d'un facteur deux. Nous sous-estimons les fissions présentes sous le pic des particules  $\alpha$  avec MCTPF. MCTPF nous donne donc seulement un ordre de grandeur correct. Dans le seul but de déterminer a priori les caractéristiques de la chambre à fission, cela est suffisant. Cela ne l'est absolument pas pour définir l'efficacité de détection de la chambre à fission.

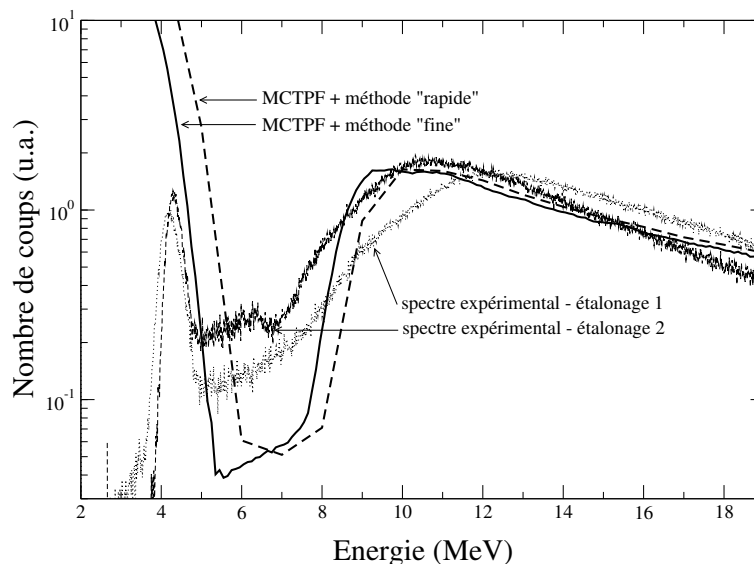


FIG. 5.36 – Spectres en énergie de la chambre à fission expérimentaux, et simulés par MCTPF pour les deux méthodes choisies pour prendre en compte les empilements de particules. Le seuil en énergie pour les spectres simulés a été pris égal à zéro. Un étalonnage entre les canaux et l'énergie a été implémenté.



### 5.2.3.4 Conclusion

Lors de toutes les vérifications, le code MCTPF ne présente rien d'aberrant. Il nous avait permis de simuler la chambre lors de sa conception afin de définir au mieux les dimensions caractéristiques de cette chambre. Il avait prédit qu'avec les dimensions choisies, les spectres des particules  $\alpha$  et celui des produits de fission ne se superposent que très peu. Les spectres simulés se sont avérés très ressemblants aux mesures expérimentales. Les résultats sont tout à fait satisfaisants. Ce code a donc permis la conceptualisation de la chambre à fission.

Par contre, nous ne pouvons pas utiliser ce code afin de déterminer très précisément l'efficacité de détection de la chambre à fission : il reste trop de paramètres libres (résolution, étalonnage) et les phénomènes de collection ne sont pas simulés. Nous verrons par la suite que la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  est vraiment une mesure indispensable pour calibrer notre dispositif expérimental et ainsi évaluer l'efficacité de détection de la fission.

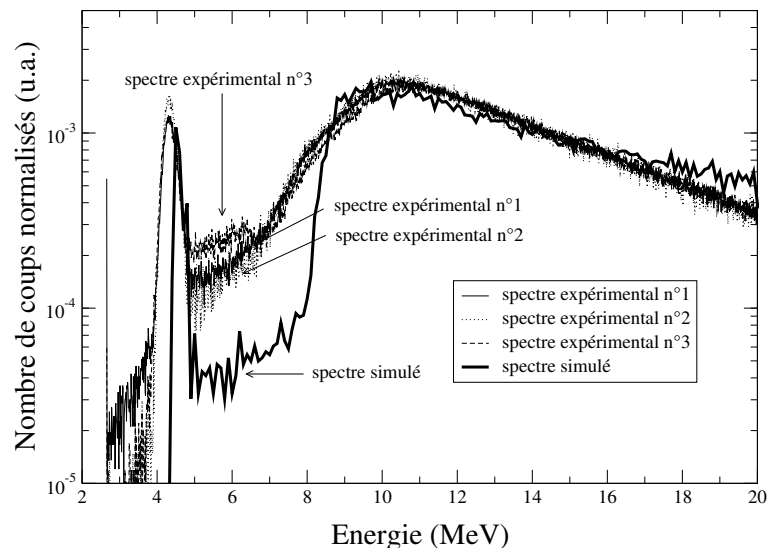


FIG. 5.37 – Comparaison entre trois spectres en énergie de la chambre à fission expérimentaux et celui simulé par MCTPF (méthode “fine”), avec la résolution et l'étalonnage choisis.

## 5.2.4 Efficacité de détection de fission

### 5.2.4.1 Cible homogène avec bonnes quantités de matière

Connaissant désormais les quantités exactes de matière composant les cibles et le code MCTPF étant validé, nous pouvons calculer les efficacités de sortie de cible pour les 4 cibles de façon précise. Les résultats sont fournis dans le tableau 5.4.

Cible	Epaisseur de la cible ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Nb de PF sortant de la cible
235_1	293	97.670 %
235_2	293	97.670 %
233_1	302	97.629 %
233_2	300	97.630 %

TAB. 5.4 – Efficacité des quatre cibles utilisées pour la mesure des rapports  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  et  $^{233}\text{U}$ .

#### 5.2.4.2 Conclusion

Nous venons d'estimer, grâce à MCTPF et à la caractérisation précise des cibles, l'efficacité de sortie de cible des produits de fission. Or, l'efficacité de détection de fission est égale au produit de l'efficacité de sortie de cible par l'efficacité de collection des charges. En effet, une fois sortie de la cible, les particules doivent être collectées sur un des quatre fils d'électrode. Afin d'éviter tout problème de claquage, nous n'avons pas pu couvrir parfaitement les cibles par les 4 électrodes centrales. L'efficacité de détection va donc être diminuée par ce phénomène. Nous avons estimé dans la partie 5.2.1 que le fait de fonctionner à 500 V nous limite la collection des produits de fission à 90 % par rapport à la collection idéale de collection. L'efficacité de détection sera donc au mieux de 90 %. Dans le prochain chapitre, une étude particulière sera effectuée pour estimer de façon expérimentale cette efficacité de détection. Nous pourrons alors comparer ces deux valeurs.



# Chapitre 6

## Description de la simulation numérique

Dans ce chapitre, nous allons décrire les codes de simulation qui nous ont été nécessaires à l'analyse à la compréhension du dispositif expérimental. Nous expliquerons comment nous les avons couplé entre eux pour les utiliser et avant de présenter les premiers résultats obtenus.

### 6.1 Les codes de simulation utilisés

Nous avons utilisé deux codes de simulation pour effectuer l'analyse : MCNP pour le transport des neutrons et GEANT4 pour le transport des photons gamma. Ainsi MCNP a été utilisé pour calculer les flux et les taux de capture neutroniques tandis que GEANT4 nous a permis d'estimer les efficacités de détection en coïncidence dans les détecteurs.

#### 6.1.1 Le transport des neutrons

##### 6.1.1.1 Le code MCNP

Le code de simulation MCNP (Monte Carlo N-Particles - version 4c2 [21]) a été développé au Los Alamos National Laboratory [60]. Il est conçu pour le transport des neutrons sur une plage en énergie qui s'étend de  $10^{-5}$ eV à 20 MeV. Il peut aussi être utilisé pour le transport des électrons et des photons. C'est un code Monte-Carlo c'est-à-dire qu'il effectue un traitement stochastique des phénomènes physiques. Contrairement aux codes de simulation déterministes basés sur la résolution de l'équation de transport neutronique (équation de Boltzmann) moyennant des hypothèses simplificatrices, MCNP est basé sur une approche probabiliste permettant de reproduire le parcours d'un nombre très important de particules. Pour calculer le flux neutronique ou encore le taux d'une réaction donnée dans tel ou tel élément, il faut connaître le comportement d'un très grand nombre de neutrons. L'histoire de chacun d'eux est alors simulée, de son apparition à sa disparition. Le neutron avance "pas à pas". A chaque pas, MCNP détermine successivement la position de la prochaine interaction, le noyau sur lequel a lieu l'interaction et enfin le type d'interaction (diffusion élastique, capture, fission, ...). Afin de déterminer la position de la prochaine interaction, MCNP calcule le libre parcours

moyen à partir des probabilités individuelles des différentes voies de réactions possibles (sections efficaces), ainsi que des matériaux en présence et de leur composition. Une fois cette distance calculée, l'élément cible et la réaction sont choisis aléatoirement, toujours en fonction des sections efficaces et des proportions des noyaux en présence. Un nouveau pas s'ensuit alors, puis un autre, etc. L'histoire de ce neutron se poursuit jusqu'à sa disparition par absorption par un noyau<sup>1</sup> ou par sortie de la zone géométrique définie. Un vaste ensemble de neutrons est ainsi propagé dans la géométrie, chacun ayant une histoire indépendante. Le nombre de ces histoires conditionne la précision statistique des résultats.

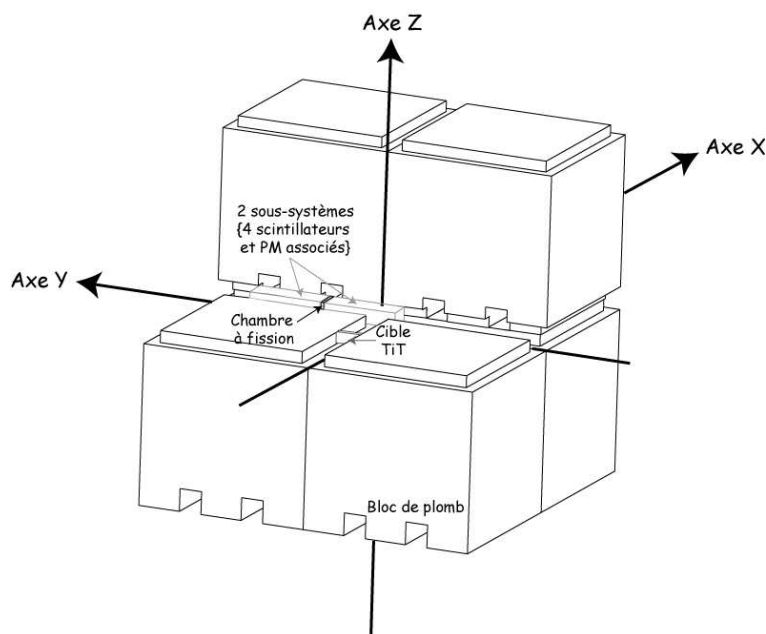


FIG. 6.1 – Schéma du bloc de plomb avec le repère (Oxyz) précisé. Pour plus de lisibilité, deux cubes de plomb ne sont pas représentés. Il en est de même pour les briques de plomb remplissant les canaux, hormis celui contenant les détecteurs.

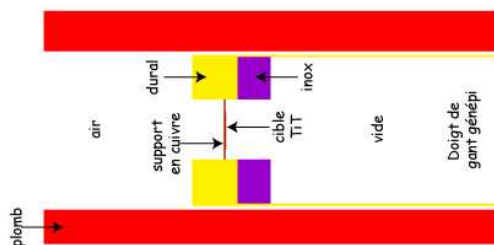


FIG. 6.2 – Géométrie de la cible TiT implémentée dans MCNP, coupe selon (Oxy) :  $z = 0$  cm

<sup>1</sup>Un premier biais de MCNP ne fait pas disparaître réellement ce neutron, seule son importance est diminuée. Cela permet de garder des événements dans toute la géométrie, y compris dans les zones à faible flux.

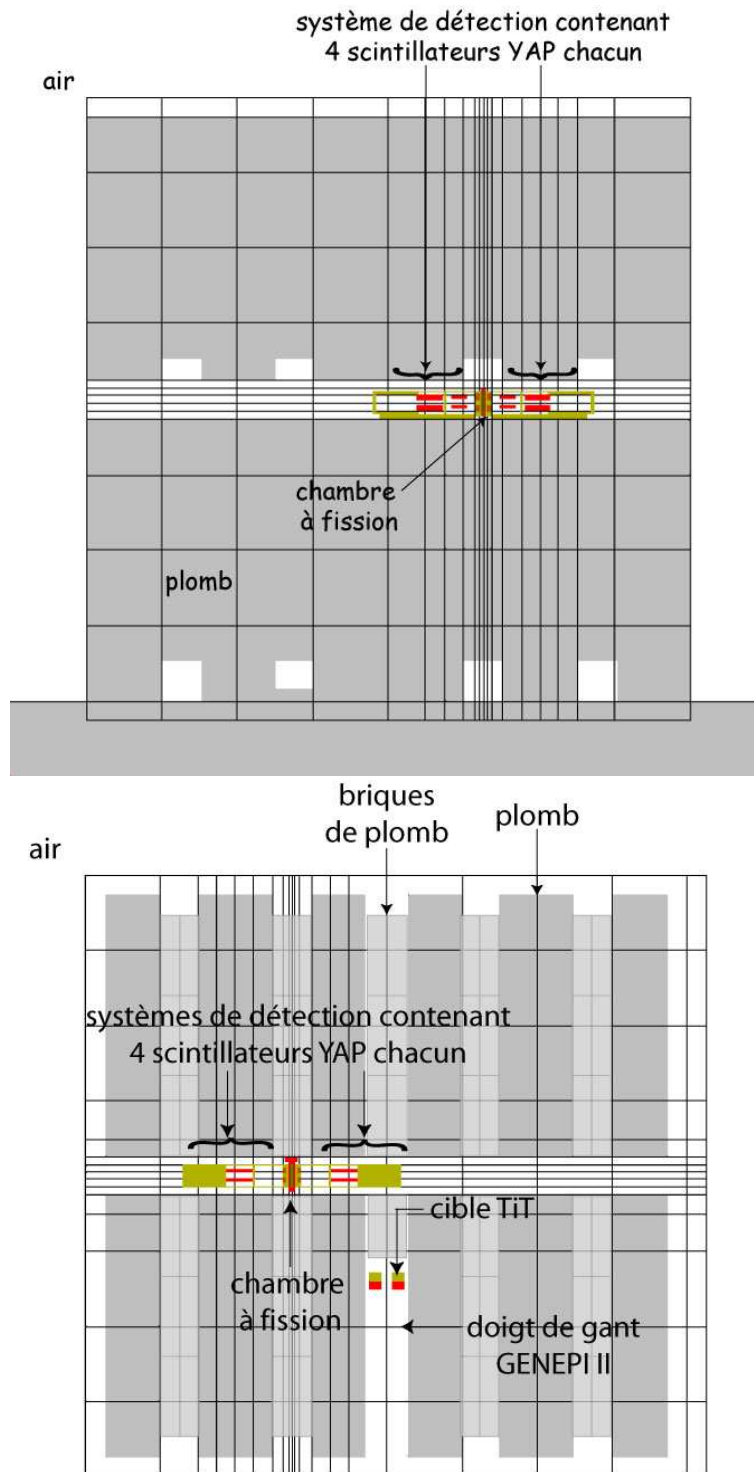


FIG. 6.3 – Géométrie MCNP du dispositif expérimental selon 2 coupes représentatives. Au dessus, coupe telle que  $x = 1.25$  cm. Nous pouvons ainsi visualiser le dispositif expérimental dans sa longueur. Au dessous, coupe telle que  $z = 1.25$  cm. Nous pouvons ainsi visualiser le dispositif expérimental dans le plan (Oxy).

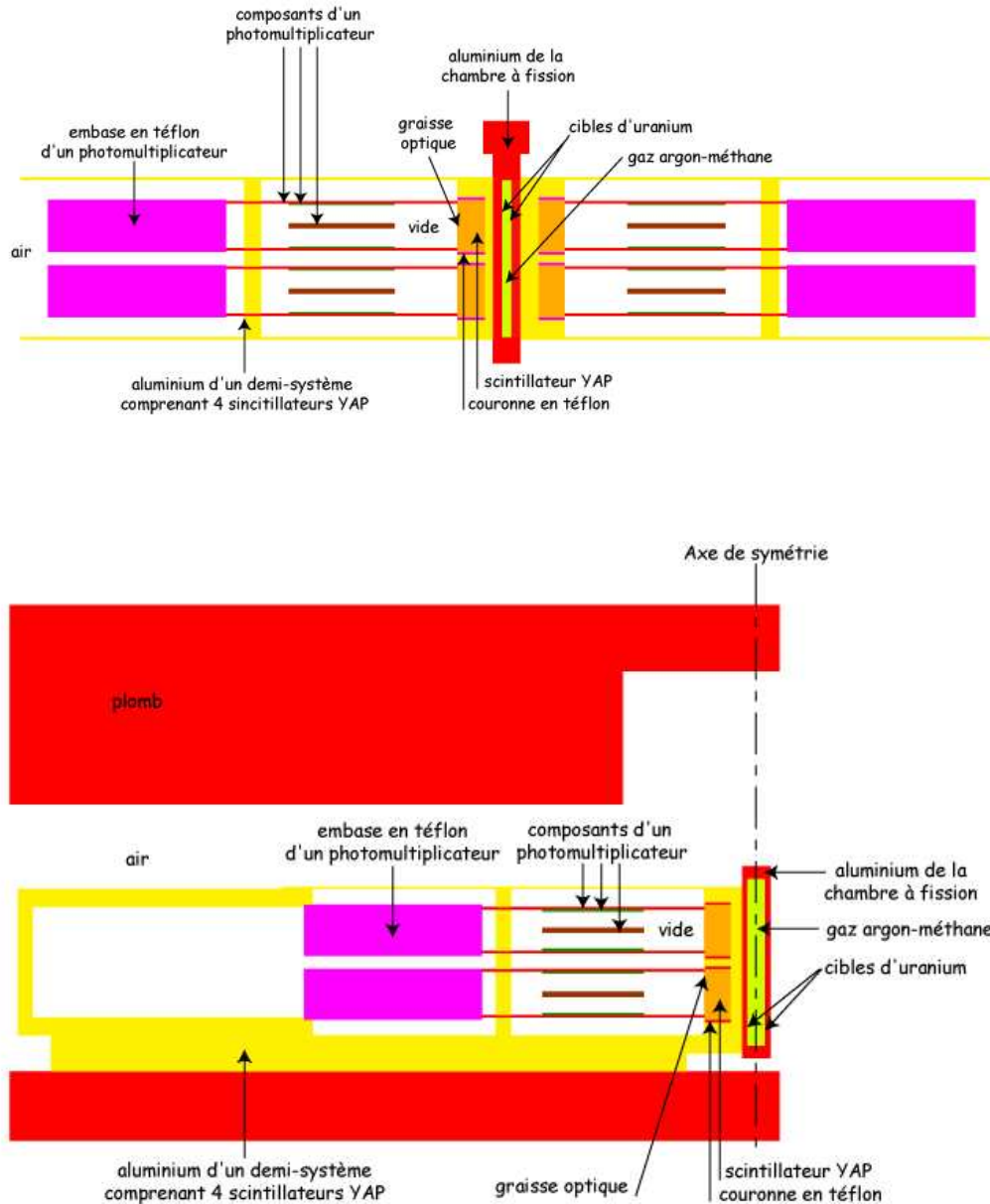


FIG. 6.4 – Coupes ciblées du dispositif expérimental afin de mieux visualiser les détails des cellules implémentées dans MCNP. Au dessus, coupe dans le plan (Oxy) :  $z = 1.25$  cm. Au dessous, coupe selon le plan (Oyz) :  $x = 1.25$  cm.

MCNP nécessite un certain nombre de données en entrée pour pouvoir fonctionner :

- La définition du milieu : pour cela, nous avons besoin de définir la géométrie de l'ensemble à simuler, en conjugant des surfaces géométriques simples pré-établies dans MCNP. Tout le dispositif est ainsi décrit en détail via un ensemble de cellules. A chaque cellule, est associé un matériau, chaque matériau étant défini par la composition isotopique des éléments le composant.

- Les sections efficaces de chaque élément utilisé dans les matériaux. Elles sont disponibles dans diverses bases de données sous un même format : ENDF [42]. Ce sont en fait des évaluations qui sont converties dans un format lisible par MCNP grâce à des programmes tels que NJOY [26] (cf chapitre 2). Les sections efficaces sont ainsi traduites en fonction de l'énergie du neutron et de la température. Ces évaluations diffèrent pour certains noyaux, de plus certains couples élément/réaction n'existent pas dans toutes les bases. Le choix de la base de données pour chacun des noyaux est donc très important. Nous avons utilisé prioritairement la librairie ENDF/B-VI (cf chapitre 2).
- Les grandeurs physiques à extraire : flux neutroniques, sections efficaces moyennes, etc. L'utilisateur doit ainsi spécifier quelles observables physiques doivent être évaluées par le code de calcul. Chacune d'entre elles peut être déterminée en fonction de l'énergie et/ou du temps de ralentissement du neutron.

### Géométrie du dispositif expérimental

Une description exhaustive de la géométrie aurait été idéale. Cependant, plus le nombre de cellules est important, plus le temps de calcul sera long. Un optimum entre le nombre de cellules et la précision de la description de la géométrie a donc été recherché. Il est surtout essentiel de reproduire correctement la bonne quantité de matière présente. Nous avons utilisé la même simplification de la géométrie, pour simuler les photomultiplicateurs, que celle d'une thèse précédente [36]. La figure 6.1 rappelle quelle est la géométrie de notre expérience. Nous y avons précisé le repère (Oxyz) utilisé dans toute la suite de cette thèse, le point O étant situé au centre du bloc de plomb. Les figures 6.2, 6.3 et 6.4 présentent différentes coupes dans le bloc de plomb pour visualiser la géométrie implémentée dans MCNP.

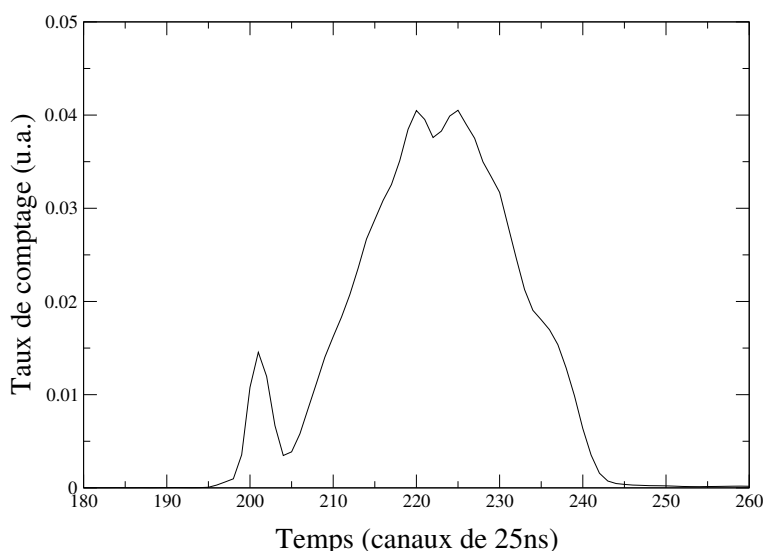


FIG. 6.5 – Distribution temporelle des particules  $\alpha$  associées à la production des neutrons pour les acquisitions de juillet 2006. Cette distribution est obtenue pour 4 heures de comptage.



## Source de neutrons

La source de neutrons peut être implémentée dans MCNP de façon très simple : les neutrons ont une énergie égale à 14 MeV et la source est isotrope en première approximation. Si nous voulons prendre en compte la forme temporelle de la source de neutrons, nous pouvons implémenter la distribution expérimentale obtenue. En effet, la distribution temporelle de l'émission des neutrons est identique à celle de l'émission des particules  $\alpha$  comptées dans le détecteur silicium. Or, grâce à ce détecteur, nous avons directement accès à cette dernière information. La figure 6.5 nous permet de visualiser une distribution temporelle typique du détecteur silicium. (cf [36] pour savoir comment utiliser un fichier source)

## Grandeurs extraites

Nous rappelons que l'expérience nous donne, en fonction du temps (mesuré par rapport à une origine temporelle donnée par l'impulsion GENEPI), le nombre de photons gamma détectés en coïncidence dans les 8 scintillateurs YAP. Ces photons gamma proviennent de captures ou de fissions neutroniques sur les différents éléments composant le dispositif expérimental. Les principales sources de photons gamma sont :

- les cibles d'uranium
- les 8 scintillateurs YAP et les photomultiplicateurs associés
- l'aluminium composant le système de détection
- le bloc de plomb
- la cible de production des neutrons

MCNP nous donne alors le taux de réaction ( $n, \gamma$ ) pour tous ces éléments ainsi que le taux de fission pour les cibles d'uranium. Il faut ensuite transporter les photons gamma ainsi générés, pour pouvoir en déduire les taux d'événements détectés dans les scintillateurs. Or, MCNP n'est pas très performant en ce qui concerne les spectres énergétiques des photons gamma induits par capture neutronique. Il est préférable de ne pas l'utiliser pour transporter à la fois les neutrons et les photons induits par capture neutronique, lors de la même simulation. Nous avons alors couplé MCNP avec GEANT4. Ce dernier code a été choisi pour simuler le transport des photons gamma. De plus, nous l'avons adapté pour qu'il prenne en compte tout type de coïncidence. Il nous sera beaucoup plus difficile de reproduire le spectre expérimental à partir de la simulation numérique, comme nous le verrons par la suite. Cependant, les simulations nous permettront de comprendre le dispositif expérimental, de quantifier les différentes sources de bruit de fond, d'analyser les spectres et les résultats expérimentaux. Elles s'avéreront être un outil indispensable pour l'analyse.

### 6.1.1.2 Les mesh-tallies : maillage de la géométrie

Afin de comprendre l'utilité de cette méthode et de détailler en quoi elle consiste, nous allons partir du constat suivant : selon la position où l'on se trouve dans le bloc de plomb, le flux de neutrons, et donc le taux de capture des neutrons, varie énormément. Le flux est très élevé près de la source TiT

et le spectre des neutrons en ce lieu est rapide tandis que, près des bords du bloc de plomb, le flux est moindre et beaucoup plus thermalisé. La quantité de photons gamma émise par capture sur les éléments du bloc de plomb est très dépendante de la position où l'on se trouve. Afin de mieux estimer les sources de photons gamma, il est donc utile de connaître la répartition du taux de capture dans tout le bloc de plomb.

Or, justement la méthode dite des “mesh-tallies” nous permet de calculer, dans une cellule géométrique, des répartitions de grandeurs telles que le flux ou les taux de réaction. Elle est basée sur un découpage de cette cellule en petits volumes élémentaires. Cette méthode a été rajoutée dans MCNP. C'est donc une version modifiée de ce code que nous utilisons. Afin de visualiser la matrice tridimensionnelle des résultats, nous utiliserons soit le logiciel AVS (Advanced Visual System [61]) soit ROOT [62]. Ce dernier nous servira, en plus de la visualisation, à récupérer les données utiles pour le transport dans GEANT4.

Le bloc de plomb, par exemple, sera divisé en sous-cellules cubiques de  $1 \text{ cm}^3$ . Nous obtiendrons la quantité de photons gamma émis par chacune de ces sous-cellules comme autant de sources implémentées dans GEANT4. Nous pourrions soit utiliser les données telles quelles (taux de capture en fonction de la position dans le bloc de plomb) soit créer, pour chacune des sous-cellules, un fichier source des photons gamma que GEANT4 transportera. Un programme écrit en C nous permet de créer de tels fichiers sources, en se basant sur un tirage aléatoire. Chacun d'eux contient pour chaque photon la position (X, Y et Z), l'énergie, le temps d'émission et le poids<sup>2</sup> d'un photon gamma. Le fichier contient autant de lignes que de photons gamma sources qui seront transportés grâce au code de simulation GEANT4.

Nous nous rendons très rapidement compte de la lourdeur de tels calculs : le bloc de plomb est divisé en plus de 4 millions de sous-cellules, chacune génère un fichier source. Or, afin d'obtenir un résultat sous GEANT4 avec une bonne statistique, ce fichier doit comporter un nombre de photons source suffisant. Comme les efficacités de détection sont faibles, le nombre de particules totale à transporter devient vite ingérable. Nous exposerons par la suite la méthode utilisée permettant de s'affranchir de tels calculs.

## 6.1.2 Le transport des photons gamma

### 6.1.2.1 Le code GEANT4

La dernière version de GEANT, nommée GEANT4 [45], est utilisée pour la physique nucléaire, pour la physique des accélérateurs, pour les études spatiales ou encore pour la recherche en physique appliquée à la médecine. GEANT4 est un code Monte-Carlo simulant le passage de particules dans la matière. Il est décomposé en de très nombreux sous-programmes permettant la simulation complète

---

<sup>2</sup>Cette notion est utile uniquement si cette source de particules est réutilisée dans MCNP. On attribue des poids aux neutrons de façon à ne pas les suivre dans des endroits inintéressant de la géométrie. On s'intéresse principalement aux neutrons proches des endroits utiles (lieu où l'observable est demandée). Cette notion permet de gagner du temps de calcul pour obtenir un résultat comportant beaucoup de statistiques dans les zones qui nous intéressent.

d'un détecteur : description de la géométrie, réponse du détecteur, gestion des événements, des traces, simulation d'acquisition, visualisation, interfaces avec l'utilisateur, etc. GEANT4 s'adressant à de très nombreux domaines de la physique, il propose un choix très large d'outils permettant de traiter les diverses interactions de particules avec la matière sur une très grande plage en énergie. De même, pour divers processus physiques, plusieurs modèles sont proposés. L'utilisateur est amené à faire le choix des outils dont il a besoin pour sa simulation. Notez que GEANT4 n'a pas été conçu pour la physique des réacteurs. Il est beaucoup moins performant que MCNP en ce qui concerne le transport des neutrons à basses énergies (inférieures à quelques MeV). C'est pourquoi nous utilisons GEANT4 pour le transport des photons gamma uniquement.

Afin d'adapter la simulation GEANT4 à notre expérience, il a fallu adapter chaque fichier :

- Définition de la géométrie : description du bloc de plomb, des détecteurs, des cibles, ... similaire à la géométrie de MCNP, à la différence de langage près.
- Choix des modules de physique à implémenter dans notre programme : tous les modules à disposition dans GEANT4 ne sont pas utiles pour simuler notre expérience. En effet, il existe de très nombreux modules dédiés à la physique des particules (particules dites "hautes énergies" c'est-à-dire dont l'énergie est supérieure à 20 GeV). Seuls les phénomènes électromagnétiques "basses" énergies ont été implémentés.
- Tirage des particules initiales : la position des photons est choisie de façon aléatoire dans une zone déterminée correspondant sous MCNP, soit à une cellule géométrique sous MCNP (scintillateurs YAP), soit à une maille (bloc de plomb). Les directions de propagation de ces photons gamma sont isotropes.

Il a aussi fallu implémenter un programme en C++ permettant le choix des événements. J'appellerai par la suite "événement", l'ensemble des photons émis soit par capture, soit par fission. Par exemple, si dans GEANT4, nous tirons 1 000 photons, cela correspondra seulement à environ 250 événements de capture ou encore 140 événements de fission.

Il est très important de remarquer que l'on a dû effectuer un traitement différent lorsque l'on considère des événements de fission ou de capture. En effet, pour la capture, nous connaissons l'énergie de réaction et nous avons la distribution en énergie des gammas de capture de l'élément considéré. Nous tirons de façon aléatoire suivant cette distribution, l'énergie du premier photon, du deuxième, etc, tant que l'énergie totale des photons émis reste inférieure à l'énergie de réaction.

La fission étant un phénomène beaucoup plus complexe, nous ne pouvons pas procéder de la même façon. Connaître l'énergie de réaction ne suffit plus. Il s'est avéré trop complexe d'implémenter les distributions en énergie des neutrons, des fragments de fission, etc. Nous avons décidé d'imposer la multiplicité des photons de fission. Nous la prenons égale à 7. En effet, des mesures expérimentales (ref) nous indiquent que la multiplicité des photons gamma de fission est de  $6.9 \pm 0.85$ . Nous tirons donc aléatoirement 7 énergies pour chacun des photons de fission, selon la distribution en énergie des photons gamma de fission de l'élément considéré, donnée par MCNP. Nous verrons par la suite que

cette hypothèse ( $M=7$ ) induit une erreur.

Les fichiers de GEANT4 ont été modifiés afin d'estimer les taux de détection sans coïncidence et en coïncidence des photons gamma. Nous distinguons aussi le taux de diaphonie du taux de coïncidence.

1. Pour le taux de comptage sans coïncidence (“single”), il suffit de compter le nombre de photons gamma touchant au moins un scintillateur YAP.
2. Pour le taux en coïncidence dite “vraie”, nous nous intéressons aux cas où au moins deux photons d'un même événement ont touché au moins deux scintillateurs YAP différents. Peu importe si un de ces deux photons dépose à nouveau de l'énergie dans un autre scintillateur.
3. Nous appelons diaphonie hors coïncidence, tout événement dont les photons auront touché au moins deux scintillateurs YAP mais sans qu'il y ait coïncidence vraie. Cela correspond donc seulement au cas où un même photon gamma touche au moins 2 scintillateurs, sans qu'un autre photon gamma émis par le même événement ne dépose de l'énergie dans un des 8 scintillateurs. La figure 6.6 nous donne un exemple illustrant la différence entre la coïncidence pure et la diaphonie hors coïncidence.
4. La diaphonie, quelle que soit la coïncidence, est simplement calculée, pour chaque type d'événement, en imposant une multiplicité égale à 1.

Nous relevons le taux de coïncidence vraie pour 2 photons, 3 photons, etc tout comme pour le taux de diaphonie hors coïncidence.

Le temps de transport d'un photon gamma créé à une distance  $d$  du système de détection est égal au maximum à 2.7 ns ( $d \sim 80$  cm). Comme les temps mesurés sont de l'ordre de la  $\mu$ s, la résolution temporelle de nos mesures est très largement supérieure à la variation temporelle induite par le transport des photons gamma. Dans ce cas, nous pouvons alors considérer qu'un photon créé génère instantanément un signal, s'il est détecté. Cette hypothèse est toujours valable.

Par contre, il est très important de remarquer qu'en premier lieu, nous nous intéressons au signal “vrai” c'est à dire qu'il n'y a coïncidence ou diaphonie que pour des événements de capture ou de fission.

Cependant, il est probable expérimentalement que des photons gamma soient émis, non pas d'un même événement, mais de deux événements distincts suffisamment proches en temps pour être détectés dans la plage de coïncidence. C'est ce que nous appellerons par la suite, les coïncidences fortuites. La première version de notre code GEANT4 est simplifiée : les événements ne sont pas tirés initialement selon une distribution en temps. Nous ne pourrions pas en déduire, dans un premier temps, le taux de coïncidence fortuite. Celui-ci sera déterminé de façon expérimentale (cf chapitre 8).

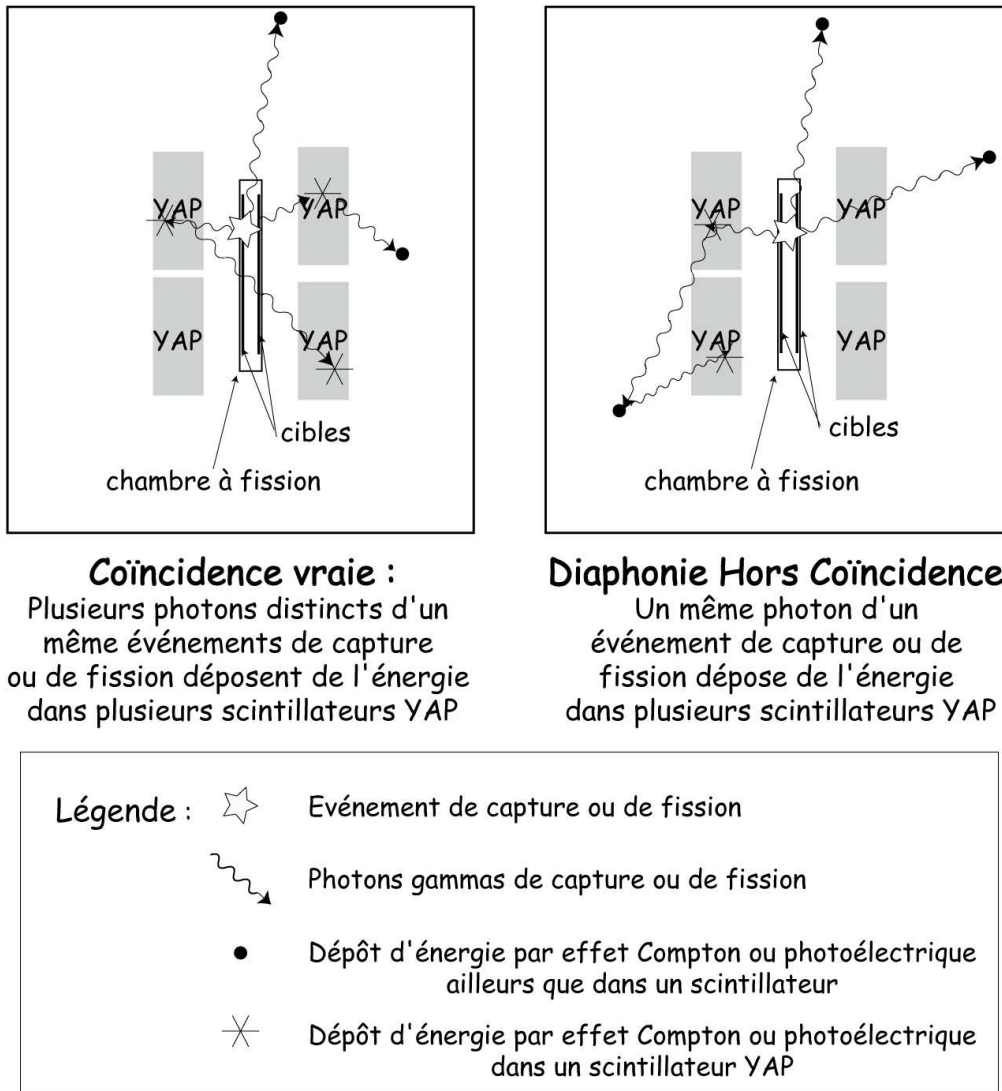


FIG. 6.6 – Schéma illustrant la différence entre les coïncidence dites “vraies” et les diaphonies dites “hors coïncidence”.

### 6.1.2.2 Influence de la multiplicité gamma de la fission

Nous venons de voir que, en ce qui concerne la fission, nous avons choisi d'imposer la multiplicité. Une étude des taux de coïncidence en fonction de la multiplicité des photons gamma de fission est alors effectuée (cf tableau 6.1). Les seuils des discriminateurs sont fixés à 140 keV pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur et ceux de 2 mm. Nous pouvons remarquer que plus la multiplicité est importante et plus l'efficacité de détection est élevée, que ce soit pour les coïncidences “vraies” ou les diaphonies. Les résultats obtenus varient d'environ 50 % si l'on modifie la multiplicité de 2 (en plus ou en moins autour de la valeur 7). Le dispositif expérimental a été fabriqué de façon à détecter au

maximum les photons provenant des cibles. Il est donc tout à fait prévisible que l'on soit extrêmement sensible à la multiplicité.

Multiplicité	Efficacité de détection de la fission en coïncidence "vraie"	Efficacité de détection de la fission en diaphonie hors coïncidence	Efficacité totale de détection de la fission en coïncidence
5	5.77 %	0.71 %	6.48 %
6	8.22 %	0.80 %	9.02 %
7	10.92%	0.82%	11.74 %
8	13.65 %	0.85 %	14.50 %
9	16.68 %	0.92 %	17.60 %

Multiplicité	Efficacité de détection de la fission en coïncidence "vraie"	Efficacité de détection de la fission en diaphonie hors coïncidence	Efficacité totale de détection de la fission en coïncidence
5	0.80 %	0.11 %	0.91 %
6	1.17 %	0.13 %	1.30 %
7	1.58 %	0.14 %	1.74 %
8	2.11 %	0.16 %	2.27 %
9	2.64 %	0.17 %	2.82 %

TAB. 6.1 – Efficacité de détection de la fission en coïncidence dans les scintillateurs YAP, en fonction de la multiplicité, pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur en haut et pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur en bas. Ces résultats sont obtenus avec GEANT4, le seuils des discriminateurs étant fixés à 140 keV.

Multiplicité	Rapport de l'efficacité de détection de fission en coïncidence avec des YAP de 10 mm sur celle avec des YAP de 2 mm		
	coïncidence "vraie"	diaphonie hors coïncidence	efficacité totale
5	7.23	6.35	7.12
6	7.03	6.33	6.96
7	6.91	5.84	6.74
8	6.47	5.20	6.38
9	6.31	5.29	6.25

TAB. 6.2 – Rapport de l'efficacité totale de détection de fission en coïncidence dans les scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur sur celle avec des YAP de 2 mm d'épaisseur, en fonction de la multiplicité.

La multiplicité a été fixée à 7 pour toute la suite de l'étude. Les efficacités de détection seront connus à 50 % près. Notez que cela ne pénalise pas véritablement l'analyse pour deux raisons principales. Tout d'abord, nous nous intéressons à comprendre le rapport signal sur bruit. Nous verrons que celui-ci est de l'ordre de 0.2 % pour la mesure avec les scintillateurs de 10 mm (cf chapitre 8). Il est donc surtout important de retrouver de tels ordres de grandeur ! De plus, c'est la compréhension

du bruit de fond et des proportions relatives de chacune des contributions qui est capitale. Or, ces dernières proviennent d'événements de capture, dont la multiplicité n'est pas introduite par hypothèse au départ.

La deuxième raison qui rend de telles erreurs induites par l'hypothèse  $M_{fission} = 7$  peu importantes est que nous étudierons, par la suite, des rapports de rapport  $\frac{signal}{bruit}$  dans des configurations différentes, afin d'estimer les différentes contributions du bruit de fond. Nous comparerons en effet les rapports  $\frac{signal}{bruit}$  obtenus avec les scintillateurs de 10 mm et de 2 mm. Or, le rapport des efficacités de coïncidence dans des configurations expérimentales différentes varie beaucoup moins, quelle que soit la multiplicité. Nous effectuons le rapport de l'efficacité de détection totale de fission en coïncidence obtenue avec des scintillateurs de 10 mm sur celle obtenue avec des scintillateurs de 2 mm en fonction de la multiplicité (cf tableau 6.2). Nous n'obtenons plus qu'une variation de 6 % si l'on modifie la multiplicité de 2 (en plus ou en moins). Nous sommes donc beaucoup moins sensibles à cette hypothèse. Nos conclusions resteront donc valables, lors de l'étude du bruit de fond. Par contre, lors de l'estimation du rapport  $\alpha$ , nous devons porter une attention toute particulière au calcul d'efficacité.

### 6.1.2.3 Première validation et adaptation du code à l'expérience : Spectre d'énergie déposée dans un YAP par des photons gamma provenant d'une source de $^{137}\text{Cs}$

Autant MCNP est un code qui a été validé et utilisé à de très nombreuses reprises dans l'utilisation que nous en faisons, autant GEANT4, très bien adapté au transport des photons gamma dans d'autres domaines, n'est pas utilisé et connu dans notre groupe de travail. Il est rarement utilisé pour ce type d'application. La mise en place des simulations sous GEANT4 mérite donc toute notre attention.

Afin de vérifier qu'il n'y a aucune erreur de programme sur la physique du photon, nous avons effectué un premier test simple. Nous plaçons une source ponctuelle de Césium  $^{137}\text{Cs}$  émettant des photons gamma de 662 keV centrée par rapport aux huit scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur et de 10 mm de diamètre. Nous traçons alors le spectre obtenu dans un scintillateur YAP (cf figure 6.7). Nous retrouvons un spectre de la forme attendue avec le front Compton (jusqu'à 478 keV) et le pic photoélectrique à 662 keV. La vallée multi-Compton est présente. Mais, nous ne voyons pas le pic de rétrodiffusion à 184 keV contrairement aux mesures expérimentales. L'efficacité de détection est très faible et de l'ordre de 2.6 %.

Afin de se rapprocher du spectre expérimental, deux considérations supplémentaires ont été indispensables :

- prise en compte de la résolution de chacun des scintillateurs. Nous avons ajouté la résolution expérimentale. A chaque fois qu'il y a dépôt d'énergie dans le détecteur, l'énergie effectivement relevée sera choisi selon une distribution gaussienne de moyenne égale à l'énergie déposée calculée et d'écart type égal à celui estimé de façon expérimental.
- prise en compte du seuil en énergie provenant des discriminateurs. Les signaux représentant une énergie déposée totale dans le scintillateur inférieure à ce seuil ne sont pas relevés. Notez

qu'afin d'être plus proche de la réalité, nous n'avons pas utilisé une fonction passe-haut mais une fonction erreur  $\text{erf}^3$ .

De nombreuses simplifications sont faites : nous ne prenons pas en compte la géométrie réelle de la source de  $^{137}\text{Cs}$  (elle n'est pas ponctuelle), ni l'électronique d'acquisition, ni la physique du photomultiplicateur. Nous ne relevons que l'énergie totale déposée dans le YAP par un photon gamma incident. Par contre, nous prenons en compte les photons gamma secondaires. Toutefois, malgré les simplifications, nous ne relevons aucune incohérence majeure. Nous pouvons donc supposer que le code implémentant la physique sous GEANT4 est correct.

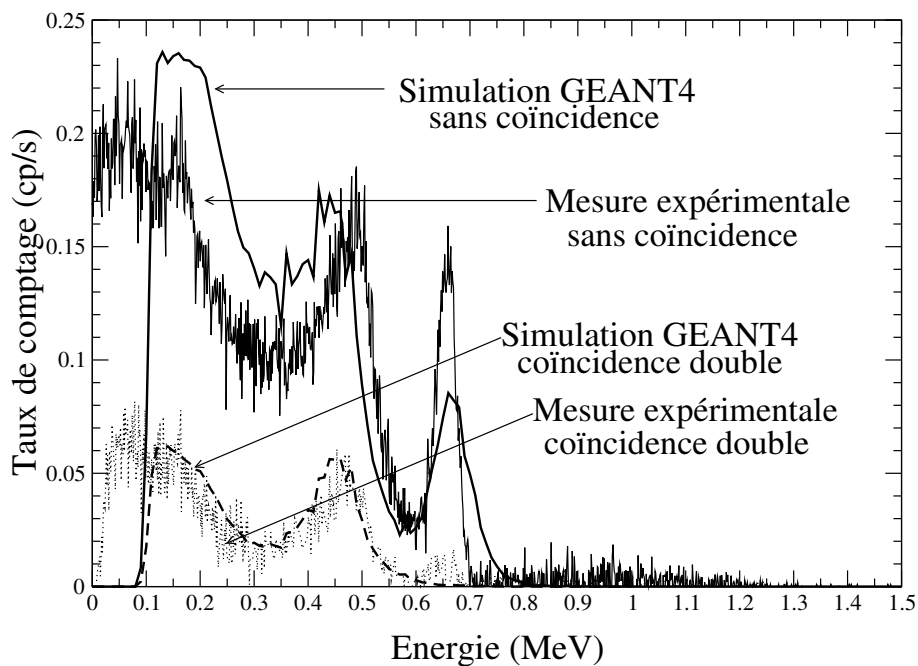


FIG. 6.7 – Comparaison entre le spectre en énergie d'un scintillateur YAP de 10 mm d'épaisseur avec une source de  $^{137}\text{Cs}$  obtenu avec GEANT4 (courbe pleine), et le spectre expérimental (courbe pointillée), en fonction de la coïncidence.

Nous pouvons aussi vérifier le programme que j'ai dû implémenté dans GEANT4 pour gérer les coïncidences. Notez que pour le  $^{137}\text{Cs}$ , les coïncidences sont uniquement des diaphonies ou des coïncidences fortuites. Nous comparons les spectres en énergie obtenus expérimentalement et avec GEANT4, en changeant le taux de coïncidence. En effet, imposer une coïncidence double ou triple change la forme du spectre en énergie : plus le taux de coïncidence demandé est élevé, plus les pics de rétrodiffusion et le maximum de front Compton prennent une proportion relative importante. La figure 6.7 montrent ces modifications de spectre pour la simulation et pour l'expérience. La coïncidence triple n'a pas pu être comparé à l'expérience, le spectre expérimental ayant trop peu de comptage. La

<sup>3</sup>En mathématique, la fonction d'erreur (aussi appelée fonction d'erreur de Gauss), définie par  $\text{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-u^2} du$ , est une fonction utilisée en analyse. Cette fonction se note erf et fait partie des fonctions spéciales.



différence majeure provient du réglage du seuil des discriminateurs sous GEANT4. GEANT4 ne reproduit pas parfaitement ces modifications et les spectres simulés par GEANT4 seront entâchés de ces imperfections. Par contre, si nous nous intéressons aux efficacités de détection (pour un même seuil imposé), l'écart entre la simulation et l'expérience s'élève à 2.4 % sans coïncidence et à 1.5 % en coïncidence double. Nous pourrions donc être relativement confiants dans les valeurs d'efficacité données par GEANT4.

### 6.1.3 Couplage MCNP - GEANT4

Nous allons voir dans ce chapitre comment nous avons utilisé MCNP et GEANT4 afin d'obtenir les résultats présentés dans le chapitre suivant. Rappelons que le but essentiel des simulations n'est pas d'extraire les sections efficaces voulues mais de comprendre le dispositif et de quantifier proprement les différentes sources de bruit de fond. Elles seront un outil d'interprétation indispensable des mesures expérimentales.

Le schéma représenté figure 6.8 explique rapidement comment nous couplons ces deux codes de simulations. Nous procédons en trois étapes :

1. Utilisation de MCNP : A partir de la source de neutrons connue, nous pouvons calculer la répartition des taux de réaction ( $n, \gamma$ ) ou ( $n, f$ ) dans les différentes cellules géométriques. Une cellule géométrique peut être, par exemple, une cible d'uranium, un scintillateur YAP, un élément du bloc de plomb, ... Nous pouvons déduire de ces simulations les distributions en énergie des photons de capture ou de fission, données d'entrée indispensables pour GEANT4. Ces distributions sont uniquement fonction de l'élément pris en compte ainsi que de la réaction ayant lieu (cf figure 6.9). Enfin, si nécessaire, nous pouvons connaître les distributions en temps en fonction de l'élément et de la cellule géométrique prise en compte.
2. GEANT4 transporte les photons gamma à partir d'une cellule géométrique donnée (tirage de la position et de la direction de propagation aléatoire dans cette cellule) afin d'estimer le nombre d'événements qui déposent de l'énergie dans les scintillateurs. Ce nombre d'événements est calculé suivant le type de coïncidence demandée (coïncidence "vraie" ou diaphonie hors coïncidence) ainsi que le taux de coïncidence (sans, double, triple, ...).
3. Enfin, connaissant, pour chaque cellule géométrique définissant le dispositif expérimental, à la fois le taux de capture (c'est-à-dire la quantité de photons émis par neutrons source) et l'efficacité de détection en coïncidence pour les photons émis par chacune de ces cellules, nous pouvons en déduire le taux de photons gamma effectivement détectés dans les scintillateurs en coïncidence. Par comparaison entre les résultats obtenus pour les différentes cellules, nous connaissons les proportions relatives des contributions du bruit de fond.

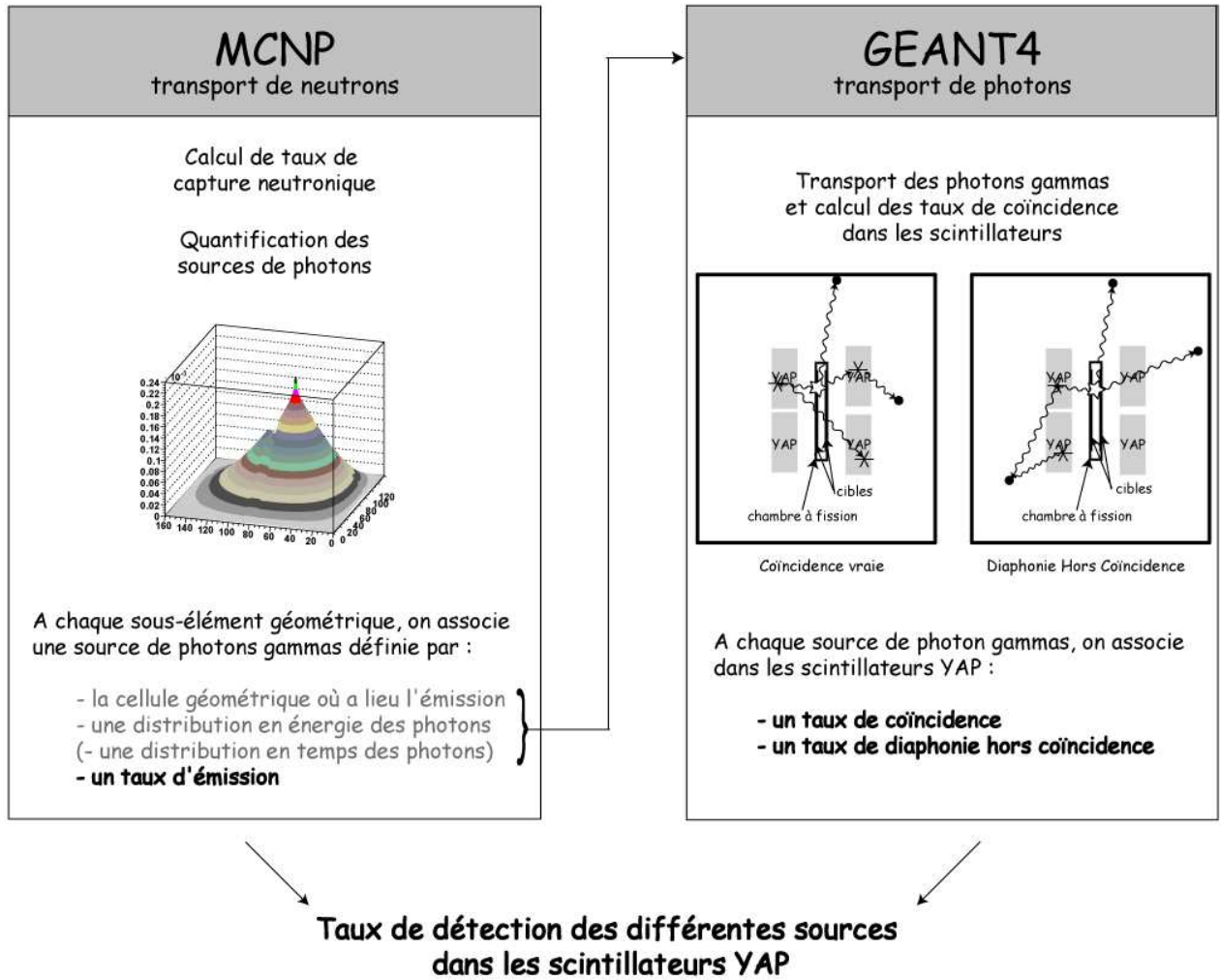


FIG. 6.8 – Schéma explicatif du couplage MCNP et GEANT4 utilisé.

Toute cette étude est effectuée avec la géométrie finale c'est-à-dire avec une chambre à fission carrée, contenant deux cibles séparées de 7 mm, et entourée de 8 scintillateurs YAP. Les deux sous-systèmes comportant 4 scintillateurs YAP sont séparés de 11 mm tandis que, dans un même sous-système, les scintillateurs YAP sont distants les uns des autres de 25 mm. La géométrie est similaire à celle implémentée dans MCNP. De façon à accélérer les calculs et ne pas simuler une géométrie trop lourde, nous avons utilisé une géométrie simplifiée dans certains cas justifiés. Par exemple, nous ne représentons pas la cible TiT lorsque nous nous intéressons uniquement aux photons provenant des scintillateurs YAP eux-mêmes. Le bloc de plomb est alors simulé par un simple cube avec le canal d'air central. Ceci permet d'alléger le calcul.

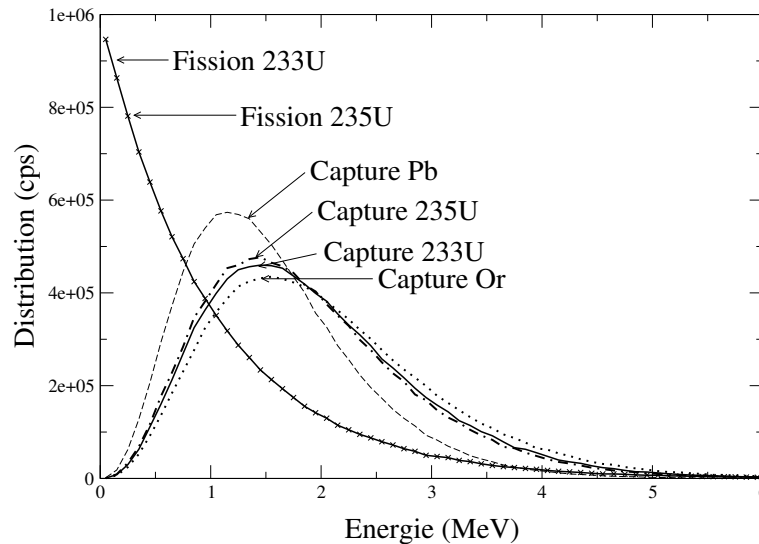


FIG. 6.9 – Distribution en énergie des photons gamma émis suite à une capture ou une fission neutronique en fonction de l’élément considéré.

## 6.2 Premiers résultats de simulations : Variation des taux de coïncidence et de diaphonie

Dans cette section, nous allons tout d’abord utiliser les simulations pour comprendre en détail le dispositif expérimental, c’est-à-dire essentiellement l’apport de l’utilisation de la coïncidence. Nous rappelons que GEANT4 peut nous donner les taux de coïncidence vraie et le taux de diaphonie hors coïncidence (cf figure 6.10). Ces valeurs sont résumées dans le tableau 6.3, pour différents éléments du dispositif expérimental. Par la suite, tous les termes d’efficacité seront notés  $\epsilon$ , indicés du type de coïncidence en question. D’après ces données, nous pouvons extraire plusieurs conclusions :

- Le taux de diaphonie est d’autant plus élevé que les photons gamma sont émis loin du dispositif expérimental dans le plomb. Le taux de coïncidences vraies s’écroule (4 ordres de grandeur) pour le plomb en périphérie. Seuls les événements de diaphonie restent. Par contre, pour la fission et la capture de l’ $^{235}\text{U}$ , ce sont les événements de coïncidences vraies qui dominent. Ces résultats sont parfaitement attendus : la géométrie du dispositif expérimental a été pensée de façon à privilégier la coïncidence des événements de signal tout en minimisant celle provenant des éléments éloignés du dispositif expérimental. Nous ne réduisons pas le bruit de fond provenant d’éléments proches des scintillateurs. De plus, lors des acquisitions, il nous est impossible de distinguer les coïncidences vraies, des diaphonies hors coïncidence. Seule la diminution totale de  $\epsilon_{\text{coïncidence vraie}} + \epsilon_{\text{diaphonie hors coïncidence}}$  est à prendre en compte et non pas seulement celle de  $\epsilon_{\text{coïncidence vraie}}$ .

- Les événements de coïncidences vraies sont plus importants pour les événements de fission que ceux de capture. Ce résultat est parfaitement cohérent au vu de la plus grande multiplicité des photons gamma de fission que de capture.
- Les taux de diaphonie et de coïncidences vraies sont plus importants pour les scintillateurs de 10 mm que pour les scintillateurs de 2 mm. Ceci est parfaitement attendu. Nous savons que l'efficacité totale de détection d'un scintillateur de 2 mm d'épaisseur est 2 fois inférieure à celui d'un scintillateur de 10 mm d'épaisseur, pour des événements sans coïncidence ("single"). La mise en place de la coïncidence dégrade les efficacités d'un facteur 6 à 12 (fonction de l'élément source de photons pris en compte et du type de coïncidence, coïncidence vraie ou diaphonie). Par contre, la proportion relative d'événements de coïncidences vraies est systématiquement plus élevée pour des scintillateurs de 10 mm, par rapport à ceux de 2 mm.

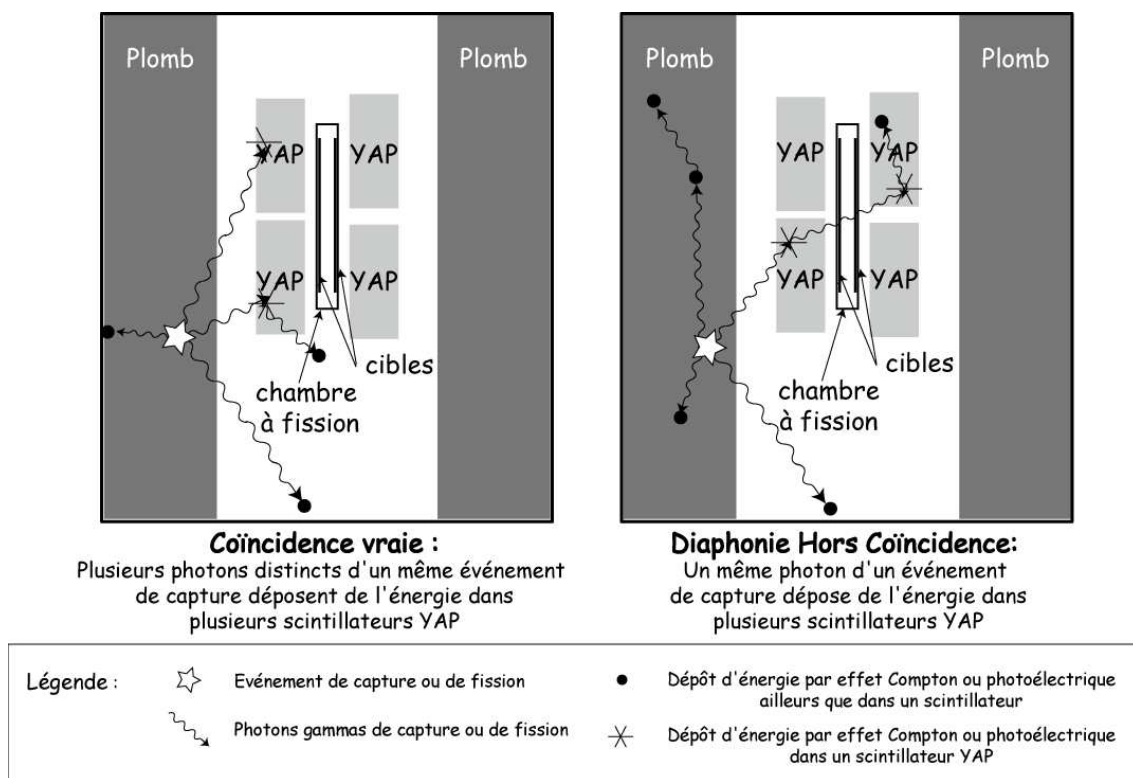


FIG. 6.10 – Schéma illustrant la différence entre les coïncidences dites "vraies" et les diaphonies dites "hors coïncidence" pour le cas particulier des événements de capture provenant du plomb.

Pour conclure, remarquez que, la diaphonie hors coïncidence augmente fortement le bruit de fond provenant du bloc de plomb : il est 10 fois plus important lorsque l'on prend en compte la coïncidence vraie et la diaphonie par rapport au bruit de fond en coïncidence vraie seulement.

De plus, si l'on s'intéresse au rapport d'efficacité du  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit plomb}}$ , alors nous remarquons qu'il est 100 fois supérieur à ce qu'on atteindrait si n'avaient lieu que les coïncidences vraies. L'amélioration

du rapport d'efficacité du  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit plomb}}$ , lors du passage du système contenant les scintillateurs de 10 mm à celui avec les scintillateurs de 2 mm, est seulement de 10 %.

<b>YAP de 10 mm</b>	$\epsilon_{\text{diaphonie hors coincidence}}$	$\epsilon_{\text{coincidence vraies}}$	Proportion relative de la diaphonie
plomb proche des détecteurs (épaisseur 7 cm)	$3.78 \cdot 10^{-4}$	$4.27 \cdot 10^{-5}$	89.8 %
plomb loin des détecteurs (épaisseur 30 cm)	$4.67 \cdot 10^{-6}$	$7.66 \cdot 10^{-9}$	98.4 %
globalité du bloc de plomb	$5.11 \cdot 10^{-4}$	$5.18 \cdot 10^{-5}$	90.8 %
scintillateur YAP	$1.03 \cdot 10^{-2}$	$2.21 \cdot 10^{-2}$	31.9 %
fission de $l^{235}\text{U}$	$7.80 \cdot 10^{-3}$	0.11	6.7 %
capture de $l^{235}\text{U}$	$8.87 \cdot 10^{-3}$	0.11	7.7 %

<b>YAP de 2 mm</b>	$\epsilon_{\text{diaphonie hors coincidence}}$	$\epsilon_{\text{coincidence vraie}}$	Proportion relative de la diaphonie
plomb proche des détecteurs (épaisseur 7 cm)	$3.12 \cdot 10^{-5}$	$3.29 \cdot 10^{-6}$	90.5 %
plomb loin des détecteurs (épaisseur 30 cm)	$3.38 \cdot 10^{-7}$	$1.53 \cdot 10^{-9}$	99.6 %
globalité du bloc de plomb	$4.32 \cdot 10^{-5}$	$3.45 \cdot 10^{-6}$	92.6 %
scintillateur YAP	$1.45 \cdot 10^{-3}$	$2.62 \cdot 10^{-3}$	35.7 %
fission de $l^{235}\text{U}$	$1.33 \cdot 10^{-3}$	$1.58 \cdot 10^{-2}$	7.8 %
capture de $l^{235}\text{U}$	$1.48 \cdot 10^{-3}$	$1.55 \cdot 10^{-2}$	8.7 %

TAB. 6.3 – Taux de coïncidences vraies et de diaphonie hors coïncidence pour différents éléments émetteurs de photons gamma, pour le dispositif contenant des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur (tableau du haut), ou des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur (tableau du bas). Les seuils des discriminateurs sont imposés à 140 keV, quelle que soit l'épaisseur des scintillateurs.



# Chapitre 7

## Les données expérimentales

Dans ce chapitre, nous allons détailler l'ensemble des mesures expérimentales effectuées pour obtenir le rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ . Nous donnerons les premières conclusions de l'analyse de ces données. Enfin, nous expliquerons comment déterminer le rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  à partir des spectres expérimentaux.

### 7.1 Description des différentes expériences pour la mesure du rapport $\alpha$ de $^{235}\text{U}$

#### 7.1.1 Mesures du rapport $\alpha$ de $^{235}\text{U}$

La mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  a été effectuée dans deux configurations différentes. La première expérience (configuration A) a été effectuée avec des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur. Nous nous sommes aperçus que le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}^1$  est de l'ordre de 1/500. Afin d'améliorer le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ , nous avons alors effectué une deuxième série de mesures (configuration B) avec des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur. Nous avons récapitulé les caractéristiques de ces différentes expériences dans le tableau 7.1. Chaque expérience dans une configuration donnée, est composée de deux séries de mesures : les mesures de "signal", c'est-à-dire avec la chambre à fission contenant les cibles d' $^{235}\text{U}$  et les mesures de "bruit de fond" avec la chambre à fission ne contenant que les supports de cible. De plus, les valeurs des seuils des discriminateurs ne sont qu'indicatives. Elles ont été choisies de façon à couper ou pas le pic des photons gamma de  $^{235}\text{U}$  situés à 186 keV. Pour plus de lisibilité, nous appellerons par la suite, la configuration A (resp. B), la configuration "10 mm" (resp. "2 mm").

#### 7.1.2 Mesure de l'activation des matériaux

L'analyse du spectre de "bruit de fond", c'est à dire du spectre expérimental obtenu avec la chambre à fission sans les cibles, sera effectuée en détail au chapitre 9. Dans ce paragraphe, nous

---

<sup>1</sup>Le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  est égal dans un premier temps au rapport du signal de fission sur le bruit de fond, puisque le signal de capture n'est pas accessible directement.

	Epaisseur des scintillateurs	Valeur des seuils des discriminateurs
Configuration A	10 mm	300 keV
Configuration B	2 mm	80 keV

	Aquisitions de "signal"			Aquisitions de "bruit de fond"		
	Nb total de runs	Nb total d'heures	Nb total d' $\alpha$	Nb total de runs	Nb total d'heures	Nb total d' $\alpha$
Configuration A	30	104	7.04e7	16	160	3.88e7
Configuration B	16	70	1.05e8	12	57	9.05e7

TAB. 7.1 – Récapitulatif des différentes mesures effectuées. Le "nombre d' $\alpha$ " signifie le nombre de particules  $\alpha$  vues dans le détecteur Silicium. C'est ce terme qui permettra la normalisation entre les acquisitions de signal et de bruit de fond.

nous intéressons à un autre type de bruit, présent dans les spectres obtenus aussi bien avec la chambre à fission avec cibles que ceux obtenus avec la chambre sans cibles. Il s'agit du bruit de fond gamma provenant de l'activation des matériaux. Plusieurs mesures nous ont permis d'étudier ce bruit de fond, dont les résultats sont regroupés dans ce paragraphe.

### 7.1.2.1 Mesures d'activation

Des mesures d'activation des matériaux ont été effectuées. Après une prise de mesure avec faisceau, nous avons amené un échantillon de plomb, un scintillateur YAP et un photomultiplicateur au Laboratoire Basses Activités (LBA) possédant des détecteurs semi-conducteurs Germanium. La spectroscopie gamma (identification des radioéléments) nous a permis de connaître l'activation des matériaux et d'identifier les impuretés présentes dans les scintillateurs YAP et les photomultiplicateurs. Entre le temps d'arrêt du faisceau (fin de l'irradiation) et le début de la mesure au LBA, il s'écoule environ une trentaine de minutes. Les périodes courtes (inférieures à quelques minutes) ne sont donc pas visibles. Les isotopes reconnus sont récapitulés dans les tableaux 7.2, 7.3 et 7.4.

Isotope	Période	Réaction de création de l'élément	Activité (Bq)	incertitude sur A (%)
$^{203}\text{Pb}$	51.87 h	$^{204}\text{Pb} (n,2n) ^{203}\text{Pb}$	1.26	9.3
$^{204}\text{Pb}$	67.20 min	$^{204}\text{Pb} (n,n') ^{204m}\text{Pb}$	0.23	16.0
$^{210}\text{Pb}$	22.20 ans	chaîne de décroissance de l' $^{238}\text{U}$	0.17	23.9

TAB. 7.2 – Isotopes détectés par spectroscopie gamma d'un échantillon de plomb de 28 g après trois jours d'irradiation.



De plus, pour le scintillateur YAP et le photomultiplicateur, nous avons fait une deuxième spectroscopie gamma 7 heures après la fin de l'irradiation. Pour le scintillateurs YAP, nous détectons alors en plus des raies des isotopes précédents, des raies des isotopes  $^{139}\text{Ce}$  (137.64 jours) et  $^{141}\text{Ce}$  (32.50 jours). En ce qui concerne le photomultiplicateur, les isotopes  $^{124}\text{Sb}$  (60.20 jours),  $^{134}\text{Cs}$  (2.07 ans) et  $^{182}\text{Ta}$  (114.43 jours) ont été détectés.

Isotope	Période	Réaction de création de l'élément	Activité (Bq)	incertitude sur A (%)
$^{64}\text{Cu}$	12.70 h	$^{63}\text{Cu} (n,\gamma) ^{64}\text{Cu}$	4200	11
$^{40}\text{K}$	1.26e9 ans	—	352	27
$^{122}\text{Sb}$	2.70 jours	$^{121}\text{Sb} (n,\gamma) ^{122}\text{Sb}$	54.8	14
$^{56}\text{Mn}$	2.58 h	$^{55}\text{Mn} (n,\gamma) ^{56}\text{Mn}$	46.7	22
$^{58}\text{Co}$	70.78 jours	$^{59}\text{Co} (n,2n) ^{58}\text{Co}$	45.7	16
$^{76}\text{As}$	26.32 h	$^{75}\text{As} (n,\gamma) ^{76}\text{As}$	39.9	19
$^{24}\text{Na}$	14.86 h	$^{23}\text{Na} (n,\gamma) ^{24}\text{Na}$	36.5	27
$^{60}\text{Co}$	5.25 ans	$^{59}\text{Co} (n,\gamma) ^{60}\text{Co}$	27.2	22
$^{57}\text{Co}$	271.77 jours	$^{59}\text{Co} (n,3n) ^{57}\text{Co}$	20.0	14
$^{57}\text{Ni}$	36 h	$^{58}\text{Ni} (n,2n) ^{57}\text{Ni}$	7.30	79

TAB. 7.3 – Isotopes détectés par spectroscopie gamma d'un photomultiplicateur après quatre jours d'irradiation.

Isotope	Période	Réaction de création de l'élément	Activité (Bq)	incertitude sur A (%)
$^{24}\text{Na}$	14.86 h	$^{27}\text{Na} (n,\alpha) ^{24}\text{Na}$	25.8	6.2
$^{88}\text{Y}$	106.62 jours	$^{89}\text{Y} (n,2n) ^{88}\text{Y}$	17.7	5.9
$^{90}\text{Y}$	3.19 h	$^{89}\text{Y} (n,\gamma) ^{90m}\text{Y}$	3.33	5.8
$^{56}\text{Mn}$	2.58 h	$^{55}\text{Mn} (n,\gamma) ^{56}\text{Mn}$	2.93	11.5

TAB. 7.4 – Isotopes détectés par spectroscopie gamma d'un scintillateur YAP (diamètre 1 cm, épaisseur 1 cm) après quatre jours d'irradiation.

### 7.1.2.2 Loi d'activation du système

Le bruit de fond provenant de l'activation est simple à reproduire : il correspond à un spectre blanc en fonction de l'énergie du neutron incident. Par contre, le taux de comptage de ce bruit varie en fonction des acquisitions. Bien que nous connaissions les éléments créés par activation et leur période respective, nous avons effectuées des mesures expérimentales afin d'estimer cette variation en fonction du temps d'irradiation.

Nous pouvons définir l'activation de ce système par deux constantes de temps. La constante de temps rapide est de l'ordre de la minute. La constante de temps longue, quant à elle, est estimée à 79 600 secondes soit de l'ordre de 22 heures (cf figure 7.1). Cette constante de temps étant de l'ordre de la journée, nous avons dû attendre plusieurs jours avant d'obtenir un bruit de fond provenant de

l'activation stable. Pendant les premiers jours d'irradiation, le bruit de fond varie donc beaucoup. De plus, nous n'avons jamais véritablement obtenu l'équilibre puisque nous arrêtons systématiquement le faisceau le dimanche. Il est donc impératif de corriger ce bruit de fond pour chaque acquisition.

Nous retrouvons ce même résultat en s'intéressant au spectre en temps absolu après irradiation : nous pouvons ajuster ce spectre par 2 décroissances exponentielles. Une décroissance du taux de comptage de 6 min et une de 20.5 heures sont alors observées (cf figure 7.2).

Tous les spectres étudiés pour l'analyse doivent donc subir une correction indispensable supprimant cette composante de bruit. Nous devons avoir accès, pour chaque acquisition, à cette valeur constante. Pour cela, nous utilisons une propriété du spectromètre à temps de ralentissement : pour des temps longs, c'est-à-dire après les résonances, la distribution obtenue expérimentalement s'ajuste par une fonction du type :

$$f(t) = A * \exp\left(\frac{-t}{600}\right) + B$$

Dans ce cas, le paramètre B représente le terme d'activation à supprimer. Un programme écrit sous ROOT [62] permet de calculer les coefficients de la fonction d'ajustement. Puis, il supprime cette contribution constante au spectre étudié. Cet ajustement est effectué pour des temps relatifs compris entre 1 000  $\mu$ s et 1 800  $\mu$ s, soit en énergie entre 5.2e-2 eV et 0.17 eV. La figure 7.3 nous donne un exemple de spectre avant et après correction.

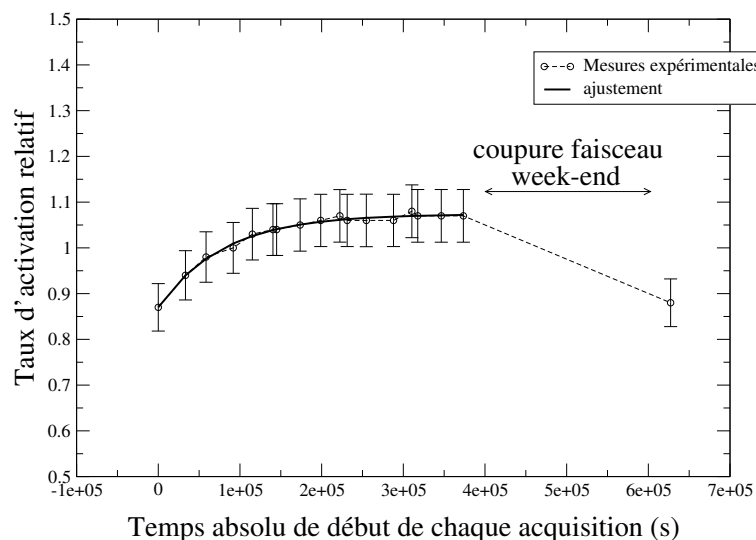


FIG. 7.1 – Taux d'activation relatif en fonction du temps absolu de début de chaque acquisition.

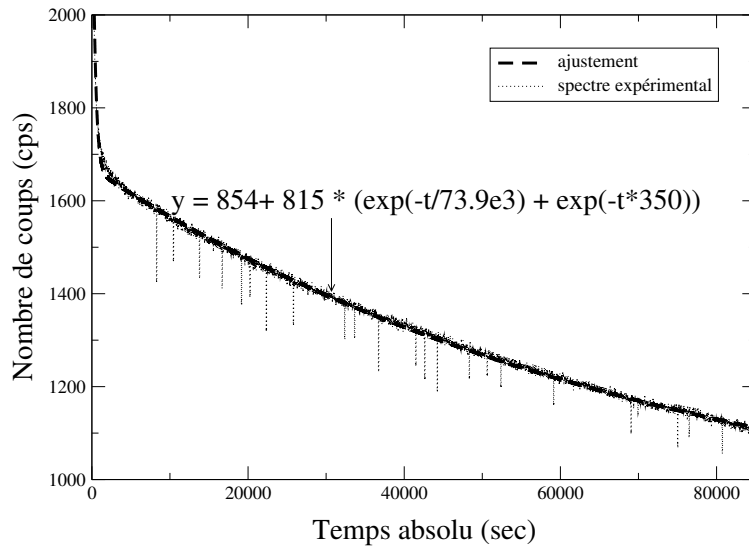


FIG. 7.2 – Exemple de décroissance du taux de comptage juste après une coupure du faisceau GENEPI.

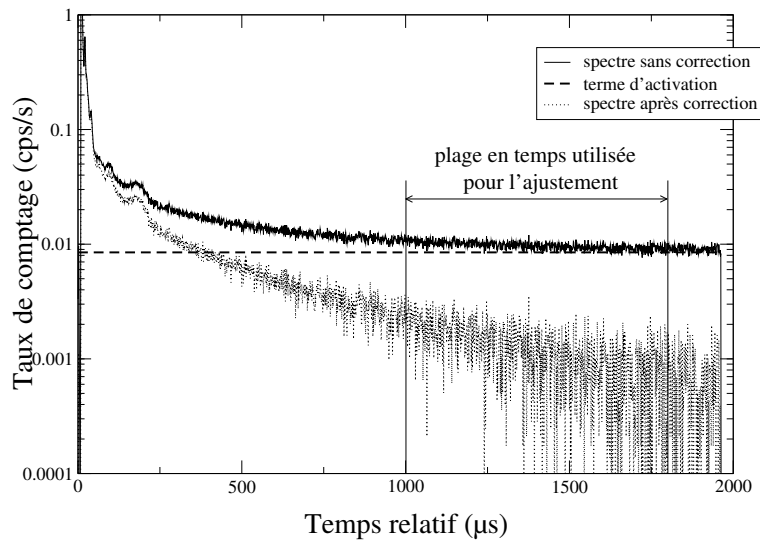


FIG. 7.3 – Exemple pour un spectre du traitement pour supprimer la contribution du bruit de fond provenant de l'activation des matériaux.

### 7.1.2.3 Validation

Pour vérifier que la correction du terme d'activation est faite avec précision, nous avons effectué cette correction sur des acquisitions ayant des contributions d'activation très différentes. Puis, nous avons calculé le rapport entre chacun des spectres et un autre, quelconque et pris comme référence. Les résultats sont représentés figure 7.4. Les spectres sont parfaitement parallèles entre eux, à la fluctuation statistique près. Il ne reste donc que le signal, et l'activation a été parfaitement supprimée.

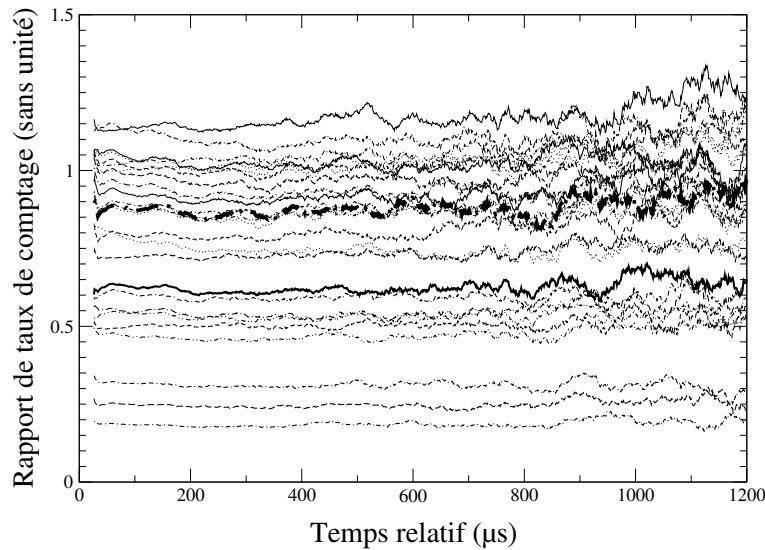


FIG. 7.4 – Rapport entre les spectres et un autre, pris comme référence, une fois la correction de l’activation effectuée.

L’incertitude liée à cette correction provient essentiellement de l’incertitude statistique. Dans la très grande majorité des cas, cette dernière est parfaitement négligeable puisque nous pouvons sommer de nombreuses acquisitions avant de faire cette correction. En effet, comme ce bruit de fond correspond à un bruit de fond blanc, nous pouvons le supprimer aussi bien avant qu’après avoir fait la somme des acquisitions. Nous le ferons donc systématiquement après. Dans le pire des cas, si nous ne prenons qu’une seule acquisition typique, l’erreur statistique est inférieure à 1 %. Ces cas correspondent, non pas à des prises de données utilisées dans le but de mesurer le rapport  $\alpha$ , mais à des mesures effectuées pour mieux comprendre les différentes contributions du bruit de fond. Ainsi, le bruit de fond provenant de l’activation n’est donc pas véritablement gênant pour notre mesure puisqu’il se simule et se soustrait de façon simple.

## 7.2 Premiers résultats expérimentaux

### 7.2.1 Reconstruction des spectres expérimentaux

Le choix des largeurs de coïncidence est crucial pour l’analyse. Pour définir la coïncidence entre les scintillateurs YAP, nous avons tracé les spectres de différence entre les temps de deux scintillateurs distincts (cf figure 7.5). Nous avons tracé ces spectres en imposant une plage en temps relatif, différente d’un spectre à l’autre. En imposant une certaine plage en énergie des neutrons incidents, nous pouvons vérifier que les spectres obtenus ne sont pas dépendants de l’énergie du neutron incident. Nous pouvons observer que la largeur la plus adaptée correspond à 4 canaux soit 100  $\mu$ s.

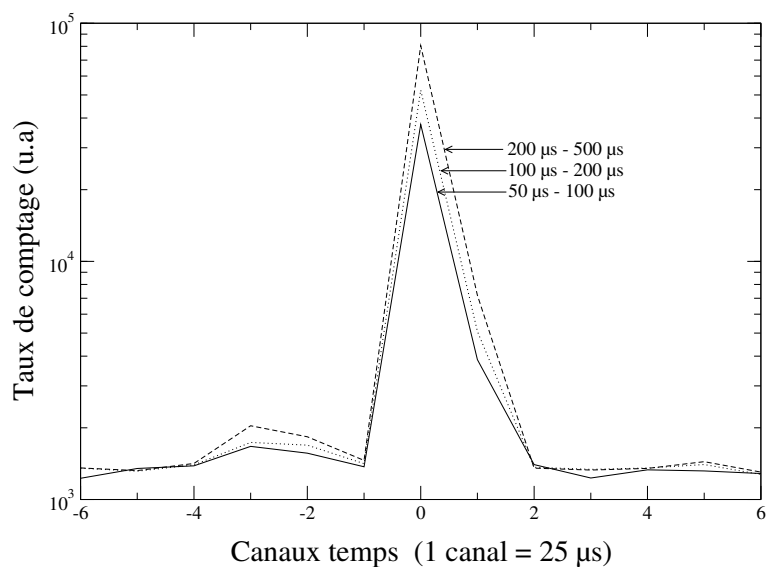


FIG. 7.5 – Distributions de la différence entre les temps des événements de deux scintillateurs distincts, pour différentes plages en temps relatifs.

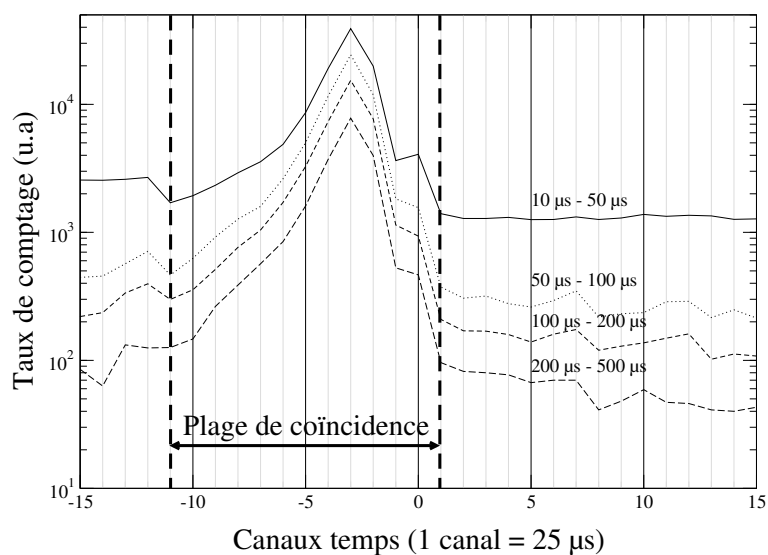


FIG. 7.6 – Distributions de la différence entre le temps d'un événement en single dans les scintillateurs YAP et et le temps d'un événement de fission, pour différentes plages en temps relatifs. La plage de coïncidence choisie en conséquence est représentée sur le graphique.

En ce qui concerne la coïncidence entre les scintillateurs YAP et la chambre à fission, nous devons estimer deux paramètres : le retard de la chambre à fission par rapport aux signaux des scintillateurs et la longueur de coïncidence la mieux adaptée. Pour cela, nous traçons les spectres représentant la différence en temps entre un événement sans coïncidence dans les scintillateurs YAP et un événement de fission. De plus, afin de vérifier qu'il n'y a pas de dépendance en fonction de l'énergie incidente du neutron, nous traçons ces spectres pour des événements appartenant à une plage en temps relatif

donnée. Les courbes obtenues sont représentées sur la figure 7.6. Nous avons alors choisi d'imposer un retard aux événements de fission de 5 canaux soit ( $125 \mu\text{s}$ ) et une longueur de coïncidence de 12 canaux ( $300 \mu\text{s}$ ). Nous verrons par la suite qu'un tel choix induit un taux de coïncidences fortuites faible.

## 7.2.2 Spectres expérimentaux obtenus dans les scintillateurs YAP

Pour une même configuration, deux types d'acquisition sont effectuées :

1. Les acquisitions de signal, effectuées avec la chambre à fission contenant les cibles d' $^{235}\text{U}$ .
2. Les acquisitions de bruit de fond, effectuées avec la chambre à fission contenant uniquement les supports de cibles, mais sans uranium.

Le taux de comptage des événements de fission (qu'on appellera par la suite "spectre de fission") est obtenu à partir des acquisitions de signal, en imposant une coïncidence entre les scintillateurs YAP et la chambre à fission : nous ne prenons en compte que les événements gamma associés à une fission vue dans la chambre à fission.

### 10 mm

Coïncidence	Plage en temps ( $\mu\text{s}$ )	Nombre d'événements de signal	Nombre d'événements de bdf	Nombre d'événements de fission
1	50 - 500	$3.60 \cdot 10^8$	$1.87 \cdot 10^8$	$1.96 \cdot 10^6$
2	50 - 500	$7.35 \cdot 10^6$	$3.85 \cdot 10^6$	$1.70 \cdot 10^5$
3	50 - 500	$1.13 \cdot 10^5$	$5.78 \cdot 10^4$	$9.38 \cdot 10^3$

### 2 mm

Coïncidence	Plage en temps ( $\mu\text{s}$ )	Nombre d'événements de signal	Nombre d'événements de bdf	Nombre d'événements de fission
1	50 - 500	$4.91 \cdot 10^8$	$4.16 \cdot 10^8$	$3.17 \cdot 10^6$
2	50 - 500	$1.17 \cdot 10^7$	$9.12 \cdot 10^6$	$4.01 \cdot 10^5$
3	50 - 500	$2.35 \cdot 10^5$	$1.70 \cdot 10^5$	$3.41 \cdot 10^4$

TAB. 7.5 – Nombre d'événements obtenus pour les spectres de signal, avec la chambre à fission avec les cibles d' $^{235}\text{U}$ , de bruit de fond (noté bdf) et de fission. Ces valeurs, intégrées sur une plage en temps relatif de [ $50 \mu\text{s}$  ;  $500 \mu\text{s}$ ], sont données en fonction du taux de coïncidence, pour la configuration "10 mm" (en haut), et "2 mm" (en bas).

Nous devons normaliser les spectres de bruit de fond aux spectres de signaux, au nombre de neutrons vus, c'est-à-dire au même flux de neutrons. Le terme de normalisation est déterminé grâce au détecteur Silicium. Il est égal à 1.81 pour la configuration "10 mm" et à 1.17 pour la configuration "2 mm".

<b>10 mm</b>				
Taux de coïncidence imposée	Plage en temps ( $\mu s$ )	Nombre d'événements de signal	Nombre d'événements de bdf	Nombre d'événements de fission
1	50 - 100	$1.00 \cdot 10^8$	$5.18 \cdot 10^7$	$1.02 \cdot 10^6$
	100 - 200	$1.23 \cdot 10^8$	$6.37 \cdot 10^7$	$6.46 \cdot 10^5$
	200 - 500	$1.40 \cdot 10^8$	$7.27 \cdot 10^7$	$3.09 \cdot 10^5$
	500 - 1500	$1.04 \cdot 10^8$	$5.40 \cdot 10^7$	$5.04 \cdot 10^5$
	50 - 1500	$4.64 \cdot 10^8$	$2.40 \cdot 10^8$	$2.47 \cdot 10^6$
2	50 - 100	$2.23 \cdot 10^6$	$1.15 \cdot 10^6$	$8.84 \cdot 10^4$
	100 - 200	$2.45 \cdot 10^6$	$1.28 \cdot 10^6$	$5.63 \cdot 10^4$
	200 - 500	$2.74 \cdot 10^6$	$1.46 \cdot 10^6$	$2.72 \cdot 10^4$
	500 - 1500	$2.48 \cdot 10^6$	$1.29 \cdot 10^6$	$4.35 \cdot 10^4$
	50 - 1500	$9.83 \cdot 10^6$	$5.14 \cdot 10^6$	$2.14 \cdot 10^5$
3	50 - 100	$3.74 \cdot 10^4$	$1.83 \cdot 10^4$	$4.78 \cdot 10^3$
	100 - 200	$3.76 \cdot 10^4$	$1.90 \cdot 10^4$	$3.19 \cdot 10^3$
	200 - 500	$3.93 \cdot 10^4$	$2.11 \cdot 10^4$	$1.49 \cdot 10^3$
	500 - 1500	$3.58 \cdot 10^4$	$1.98 \cdot 10^4$	$2.44 \cdot 10^3$
	50 - 1500	$1.49 \cdot 10^5$	$7.75 \cdot 10^4$	$1.18 \cdot 10^4$

<b>2 mm</b>				
Taux de coïncidence imposée	Plage en temps ( $\mu s$ )	Nombre d'événements de signal	Nombre d'événements de bdf	Nombre d'événements de fission
1	50 - 100	$1.33 \cdot 10^8$	$1.12 \cdot 10^8$	$1.65 \cdot 10^6$
	100 - 200	$1.69 \cdot 10^8$	$1.44 \cdot 10^8$	$1.04 \cdot 10^6$
	200 - 500	$1.92 \cdot 10^8$	$1.63 \cdot 10^8$	$5.14 \cdot 10^5$
	500 - 1500	$1.29 \cdot 10^8$	$1.07 \cdot 10^8$	$8.24 \cdot 10^5$
	50 - 1500	$6.20 \cdot 10^8$	$5.23 \cdot 10^8$	$3.99 \cdot 10^6$
2	50 - 100	$3.31 \cdot 10^6$	$2.52 \cdot 10^6$	$2.07 \cdot 10^5$
	100 - 200	$4.06 \cdot 10^6$	$3.17 \cdot 10^6$	$1.3 \cdot 10^5$
	200 - 500	$4.42 \cdot 10^6$	$3.49 \cdot 10^6$	$6.55 \cdot 10^4$
	500 - 1500	$3.26 \cdot 10^6$	$2.53 \cdot 10^6$	$1.06 \cdot 10^5$
	50 - 1500	$1.50 \cdot 10^7$	$1.16 \cdot 10^7$	$5.07 \cdot 10^5$
3	50 - 100	$7.25 \cdot 10^4$	$4.87 \cdot 10^4$	$1.74 \cdot 10^4$
	100 - 200	$8.26 \cdot 10^4$	$5.96 \cdot 10^4$	$1.15 \cdot 10^4$
	200 - 500	$8.20 \cdot 10^4$	$6.32 \cdot 10^4$	$5.58 \cdot 10^3$
	500 - 1500	$6.75 \cdot 10^4$	$5.06 \cdot 10^4$	$8.98 \cdot 10^3$
	50 - 1500	$3.03 \cdot 10^5$	$2.21 \cdot 10^5$	$4.31 \cdot 10^4$

TAB. 7.6 – Nombre d'événements obtenus pour les spectres de signal avec la chambre à fission contenant les cibles d' $^{235}\text{U}$ , de bruit de fond (noté bdf), et de fission. Ces valeurs, intégrées sur des plages en temps relatif distinctes, sont données en fonction du taux de coïncidence, pour la configuration "10 mm" (en haut), et "2 mm" (en bas).

L'ensemble des valeurs expérimentales sont résumées dans les tableaux 7.5 et 7.6. Les données pour le bruit de fond sont brutes (non normalisées). Les largeurs de coïncidence correspondent à celles spécifiées dans le paragraphe 7.2.1.

### 7.2.3 Mesure de section efficace de fission de $^{235}\text{U}$

La chambre à fission nous permet d'obtenir le spectre de fission de  $^{235}\text{U}$  (cf figures 7.7 et 7.8). Grâce à une simulation MCNP nous permettant de connaître le flux neutronique, nous pouvons en déduire la section efficace de fission de  $^{235}\text{U}$ , à l'efficacité de détection près. Cette dernière peut être estimée en comparant la section efficace de fission ainsi obtenue avec celle évaluée. Nous l'estimons à  $76 \pm 5 \%$ . Or, comme nous avons vu que nous collectons seulement  $92 \pm 7 \%$  des fissions du fait que nous n'appliquons pas la tension de polarisation optimale, l'efficacité de sortie de cible peut être estimée à  $83 \pm 12 \%$ . Les résultats obtenus avec le code MCTPF indiquaient des efficacités de sortie de cible de l'ordre de  $97 \%$  (cf chapitre 5). Toutefois, si l'on tient compte de la perte des événements de fission à cause du seuil bas imposé sur le spectre en énergie de la fission pour supprimer le bruit de fond des particules  $\alpha$ , l'efficacité déduite de MCTPF est de  $94.5 \%$ . La valeur estimée est en accord avec celle mesurée.

## 7.3 Méthode de reconstruction du rapport $\alpha$ à partir des données expérimentales

### 7.3.1 Notations utilisées et définition du rapport $\alpha$

Nous allons détailler dans cette partie comment obtenir le rapport  $\alpha$  à partir des spectres expérimentaux. Pour plus de clarté, nous noterons  $\alpha_{exp}$ , le rapport  $\alpha$  déduit des spectres expérimentaux, et  $\alpha_{eval}$ , le rapport  $\alpha$  évalué (ENDF/B-VI).

Comme le traitement des spectres s'effectue pour un taux de coïncidence donné, nous indiquerons ce taux en indice lorsque cela sera nécessaire. Bien que, par la suite, nous nous focaliserons surtout sur les spectres en coïncidence double, voire triple, nous noterons pour plus de généralité ce taux de coïncidence par un indice  $i$ . Nous posons les notations suivantes :

- C : nombre d'événements de capture ayant réellement eu lieu
- F : nombre d'événements de fission ayant réellement eu lieu
- S : nombre d'événements total de signal ayant réellement eu lieu
- B : nombre d'événements total de bruit de fond ayant réellement eu lieu
  
- $s_i$  : nombre d'événements dans les scintillateurs YAP obtenus en présence de la chambre à fission avec les cibles d'uranium



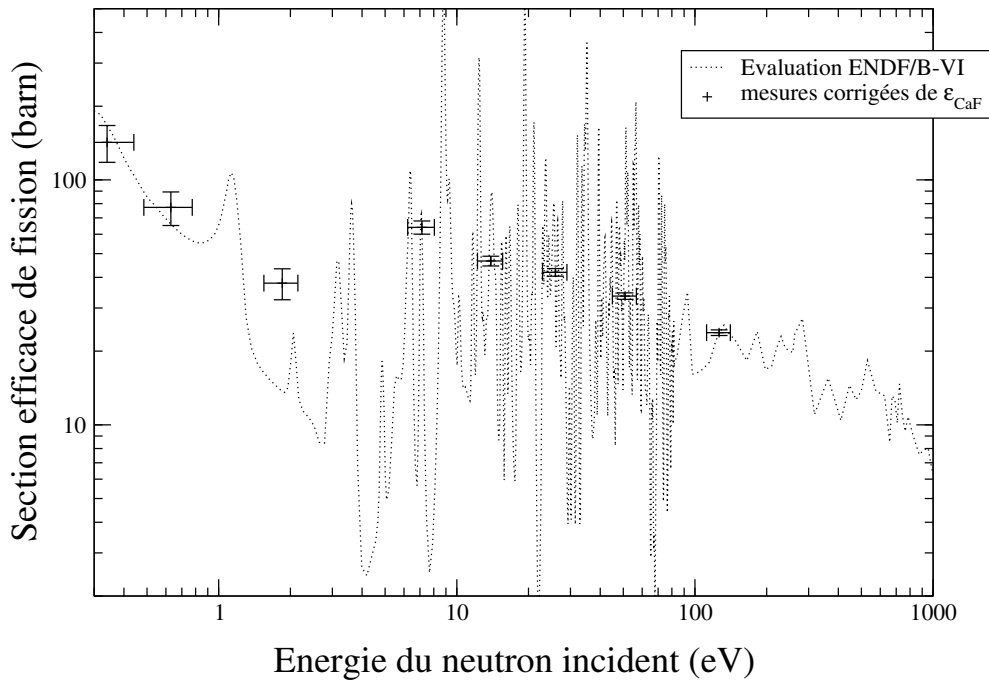


FIG. 7.7 – Comparaison entre la section efficace de fission de  $^{235}\text{U}$  obtenue grâce à la chambre à fission et la section efficace de fission évaluée (ENDF/B-VI).

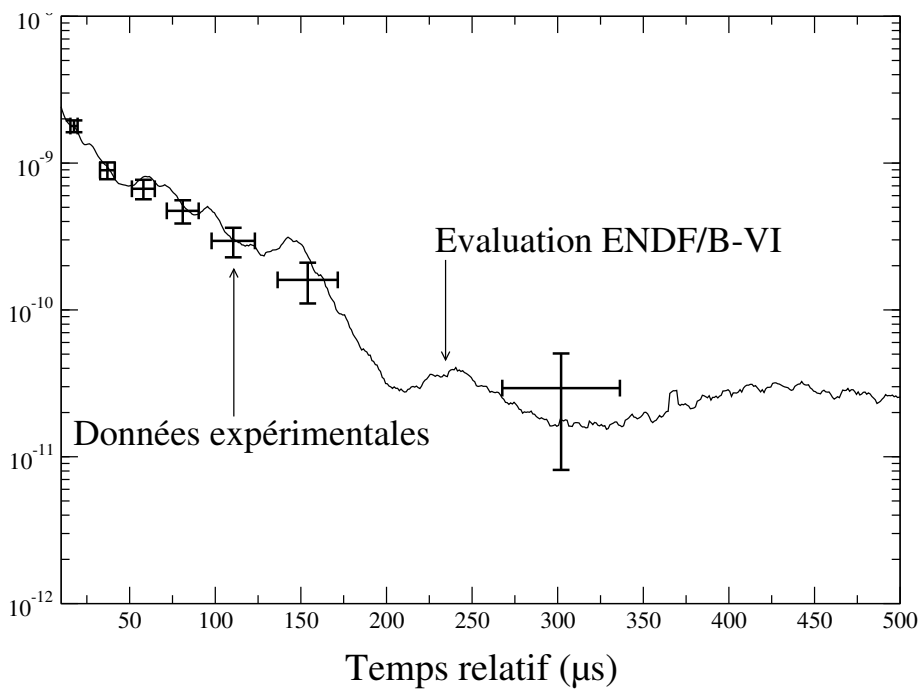


FIG. 7.8 – Comparaison entre le taux de fission de  $^{235}\text{U}$  obtenu expérimentalement grâce à la chambre à fission et celui évalué (ENDF/B-VI) par une simulation MCNP.

- $b_i$  : nombre d'événements dans les scintillateurs YAP obtenus en présence de la chambre à fission sans les cibles d'uranium
- $f_i$  : nombre d'événements dans les scintillateurs YAP obtenus en présence de la chambre à fission avec les cibles d'uranium et en coïncidence avec la chambre à fission.
- $N$  : facteur de normalisation entre les acquisitions de bruit de fond (chambre à fission sans cible) et les acquisitions de signal (chambre à fission avec cible d' $^{235}\text{U}$ ).
- $\epsilon_{CaF}$  : efficacité de détection de fission dans la chambre à fission et y son inverse ( $y = \frac{1}{\epsilon_{CaF}}$ ).

Nous devons aussi distinguer les efficacités de détection dans les scintillateurs YAP :

- $\epsilon_i^{capture\ 235U}$  : l'efficacité de détection des photons de capture radiative de l' $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs en coïncidence  $i$
- $\epsilon_i^{fission\ 235U}$  : l'efficacité de détection des photons de fission dans les scintillateurs en coïncidence  $i$
- $\epsilon_i^{bruit}$  : l'efficacité de détection des photons de bruit dans les scintillateurs en coïncidence  $i$

La dernière efficacité est une efficacité effective que nous ne pourrons évidemment pas mesurer. De toutes ces notations, nous pouvons déjà définir les relations suivantes :

$$f_i = \epsilon_{CaF} * \epsilon_i^{fission\ 235U} * F \quad (7.1)$$

$$b_i = \epsilon_i^{bruit} * B \quad (7.2)$$

$$s_i = \epsilon_{CaF} * \epsilon_i^{fission\ 235U} * F + \epsilon_i^{capture\ 235U} * C + \epsilon_i^{bruit} * N * B \quad (7.3)$$

d'où :

$$C = \frac{1}{\epsilon_i^{capture\ 235U}} * (s_i - \epsilon_{CaF} * \epsilon_i^{fission\ 235U} * F - \epsilon_i^{bruit} * N * B) \quad (7.4)$$

De plus, le rapport  $\alpha$  est égal, par définition, à :

$$\alpha_{exp} = \frac{C}{F} = \frac{\epsilon_i^{fission\ 235U} * \epsilon_{CaF}}{\epsilon_i^{capture\ 235U}} \frac{s_i - f_i - N * b_i}{f_i} \quad (7.5)$$

Nous rappelons que le bruit de fond provenant de l'activation a été systématiquement supprimé des spectres avant d'effectuer les analyses (cf partie 7.1.2).

Nous pouvons alors noter :

$$\beta_i = \frac{s_i - f_i - N * b_i}{f_i}$$

Ce terme correspond au taux de réaction de capture mesuré divisé par le taux de fission mesuré. Il est égal au rapport  $\alpha$  moyennant des corrections indispensables :

$$\alpha_{exp} = \frac{\epsilon_i^{fission\ 235U} * \epsilon_{CaF}}{\epsilon_i^{capture\ 235U}} \beta_i \quad (7.6)$$

Il est capital, pour bien comprendre la difficulté de cette mesure, de ne pas oublier que nous avons plusieurs inconnues pour déterminer le rapport  $\alpha$  : les efficacités de détection et le facteur de normalisation N. Les sources d'incertitudes sur le rapport  $\alpha$  proviennent de la méconnaissance de ces données, en plus des erreurs statistiques. Un calcul rapide nous indique que :

$$\frac{d\alpha_{exp}}{\alpha_{exp}} = \frac{\partial\alpha}{\partial\epsilon_i^{fis\ 235U}} * d\epsilon_i^{fis\ 235U} + \frac{\partial\alpha}{\partial\epsilon_i^{capt\ 235U}} * d\epsilon_i^{capt\ 235U} + \frac{\partial\alpha}{\partial\epsilon_{CaF}} * d\epsilon_{CaF} + \frac{\partial\alpha}{\partial N} * dN \quad (7.7)$$

Ce qui donne :

$$\frac{d\alpha_{exp}}{\alpha_{exp}} = \frac{d\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{fis\ 235U}} + \frac{d\epsilon_i^{capt\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}} + \frac{d\epsilon_{CaF}}{\epsilon_{CaF}} + \frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N} \quad (7.8)$$

Nous avons plusieurs méthodes pour déterminer les efficacités de détection dans les scintillateurs YAP,  $\epsilon_{CaF}$  et le facteur de normalisation N, soit de façon expérimentale soit par les simulations. Nous allons voir que la précision sur ces facteurs est déterminante pour la mesure. Toute l'analyse exposée dans le chapitre suivant sera donc particulièrement centrée sur la détermination de ces termes et de leur précision.

# Chapitre 8

## Détermination du rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$

Dans ce chapitre, nous nous proposons de calculer, de façon expérimentale et/ou par simulation, les termes indispensables pour déterminer le rapport  $\alpha$  à partir des spectres expérimentaux. Les formules 7.6 et 7.8, établies dans le chapitre précédent, nous indiquent quels sont ces termes et comment ils interviennent dans le calcul de l'incertitude sur le rapport  $\alpha$ .

Nous étudierons un à un ces termes avant de donner les valeurs du rapport  $\alpha$  déduites de l'expérience. Nous verrons que l'incertitude sur le rapport  $\alpha$  est très élevée principalement à cause du dernier terme d'incertitude, tout particulièrement du facteur  $\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i}$ . Nous étudierons alors plus en détail dans une dernière partie comment l'améliorer.

### 8.1 Efficacités de détection des scintillateurs YAP

Pour effectuer l'analyse, il est indispensable de connaître les efficacités de détection des événements de fission et de capture dans les scintillateurs, en fonction du taux de coïncidence. Nous pouvons obtenir ces efficacités grâce à GEANT4 ainsi que de façon purement expérimentale.

#### 8.1.1 Efficacité de détection des scintillateurs YAP pour les événements de fission

##### 8.1.1.1 Efficacités mesurées expérimentalement

Nous nous intéressons à l'efficacité de détection de la fission dans les scintillateurs YAP. Comme nous avons le signal de fission dans la chambre à fission, il est aisé de connaître cette efficacité : nous comparons le taux de comptage des événements de fission dans la chambre à fission avec le taux de comptage dans les scintillateurs YAP en coïncidence avec la chambre à fission<sup>1</sup>, l'efficacité de détection de la fission dans la chambre n'intervenant pas. La figure 8.1 montre l'efficacité de détection

---

<sup>1</sup>On rappelle que "en coïncidence avec la chambre à fission" signifie avec les fissions et sans les particules  $\alpha$  de l'uranium. Pour supprimer les particules  $\alpha$  du spectre de fission, nous imposons un seuil minimal sur le spectre en énergie de la chambre à fission. Pour cela, nous imposons un critère supplémentaire lors de la coïncidence correspondant à une coupure sur le spectre en énergie de la chambre à fission.

de la fission dans les scintillateurs YAP en fonction de la coïncidence imposée. Elle est parfaitement constante en fonction de l'énergie du neutron incident. La figure 8.2 nous confirme ce résultat puisque les spectres en temps relatif dans la chambre à fission ou dans les scintillateurs sont parfaitement superposés, une fois corrigés de l'efficacité de détection de fission dans les scintillateurs. Sur cette figure, les variations importantes pour les temps relatifs inférieurs à  $10\ \mu\text{s}$  environ ne sont pas à prendre en compte. Il y a un veto pulse pour les signaux temps des scintillateurs YAP tandis qu'il n'y en a pas pour la chambre à fission. L'efficacité de détection de la fission dans les scintillateurs YAP ne dépend pas de l'énergie du neutron incident. Le tableau 8.1 résume les efficacités de détection de la fission dans les scintillateurs YAP en fonction du taux de coïncidence imposé.

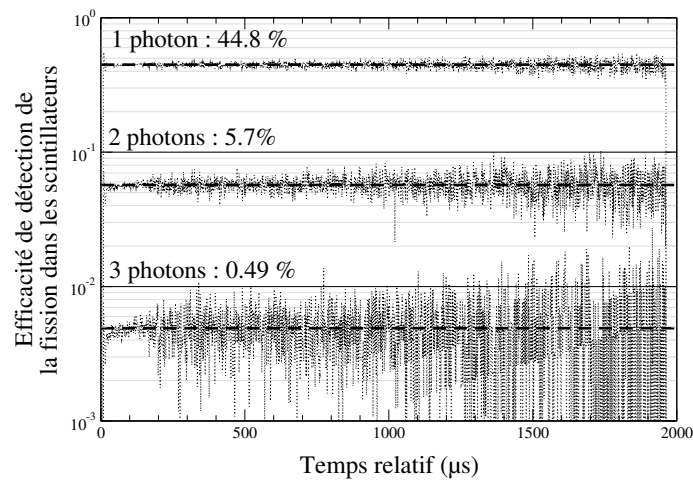


FIG. 8.1 – Rapport du spectre de fission dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur, sur celui dans la chambre à fission, en fonction de la coïncidence imposée.

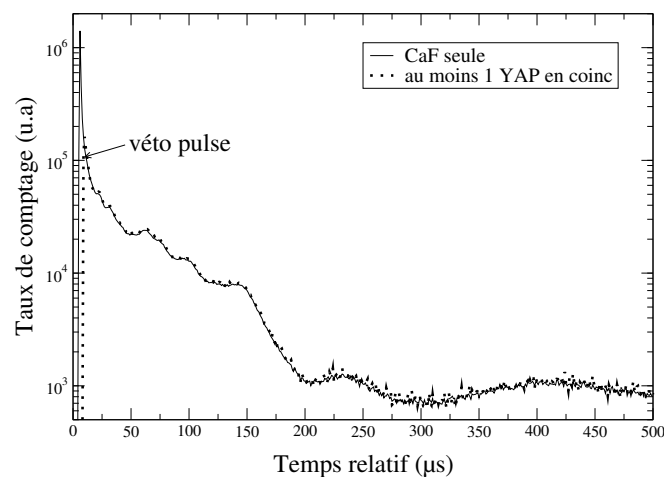


FIG. 8.2 – Spectres en temps relatif de la chambre à fission comparé à celui obtenu dans les scintillateurs YAP, sans coïncidence imposée, en coïncidence avec la chambre à fission et corrigé de l'efficacité de détection de la fission dans les scintillateurs.

Taux de coïncidence	Plage en temps ( $\mu\text{s}$ )	Efficacité de détection YAP de 10 mm (%)	Efficacité de détection YAP de 2 mm (%)
$1 \gamma$	50 100	35.18	45.34
	100 200	35.12	45.22
	200 500	34.81	44,84
	50 500	34.77	44.78
$2 \gamma$	50 100	3.041	5,700
	100 200	3.061	5,794
	200 500	3.054	5,714
	50 500	3.047	5.704
$3 \gamma$	50 100	0.164	0,480
	100 200	0.173	0,500
	200 500	0.168	0,487
	50 500	0.167	0,487
$\frac{2 \gamma}{1 \gamma}$	50 100	0.086	0.126
	100 200	0.087	0.128
	200 500	0.088	0.127
	50 500	0.088	0.127
$\frac{3 \gamma}{2 \gamma}$	50 100	0.054	0.084
	100 200	0.057	0.086
	200 500	0.055	0.085
	50 500	0.055	0.085

TAB. 8.1 – Efficacités de détection de la fission dans les scintillateurs YAP en fonction du taux de coïncidence et de la plage en temps considérés. On notera que les seuils des discriminateurs ont été diminués lors du passage des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur à ceux de 2 mm d'épaisseur.

### 8.1.1.2 Efficacités déduites des simulations GEANT4

Dans ce paragraphe, nous souhaitons vérifier les valeurs obtenues expérimentalement grâce à GEANT4. Le tableau 8.2 résume les efficacités de détection de la fission dans les scintillateurs YAP en fonction du taux de coïncidence imposé. Ces résultats, indépendants de l'énergie du neutron incident, sont obtenus avec GEANT4 uniquement.

Avant de comparer ces résultats avec les mesures expérimentales, nous avons voulu valider le code en vérifiant si les efficacités de détection correspondent bien, au premier ordre, à une loi binomiale. Si l'on note  $P$ , la probabilité de détecter un photon gamma, alors l'efficacité de détection d'un photon gamma pour une multiplicité égale à  $N$  s'écrit :  $C_N^1 P (1 - P)^{N-1}$ . Plus généralement, l'efficacité de détection de  $i$  photons gamma pour une multiplicité égale à  $N$  vaut :  $C_N^i P^i (1 - P)^{N-i}$ . Grâce à GEANT4, nous avons pu évaluer le terme  $P$  : il est égal à 0.029. Nous pouvons calculer les efficacités données par une loi binomiale. Elles sont regroupées dans le tableau 8.2 et comparées aux valeurs données directement par GEANT4. Nous avons fait varier la multiplicité pour vérifier la cohérence des résultats. Pour l'efficacité de détection d'un seul photon, les deux méthodes donnent des résultats

similaires, à l'erreur statistique près (0.3 %). Plus le taux de coïncidence est élevé, plus l'écart devient important. Ceci s'explique facilement : GEANT4 prend en compte les phénomènes de diaphonie, ce qui n'est pas le cas pour la loi binomiale.

Pour pouvoir comparer avec les mesures expérimentales, nous devons prendre en compte plusieurs phénomènes :

- La multiplicité des photons de fission peut ne pas être égale à 7 dans la réalité. Comme nous avons mesuré une efficacité de détection de fission pour un seul photon égale à 44.6 %, nous ajustons la multiplicité de façon à ce que la valeur de GEANT4 coïncide (cf chapitre 6, partie 6.1.2.2). Cela nous amène à imposer une multiplicité égale à 10 au lieu de 7. Ceci peut parfaitement se comprendre en prenant en compte les empilements de photons X émis lors d'une fission ainsi que les photons gamma émis par les fragments de fission.
- Le taux de coïncidences fortuites doit être pris en compte. Celui-ci est variable selon la plage en temps considérée. Le taux de comptage des coïncidences fortuites est d'autant plus important que la plage en temps relatif considérée est faible. Le bruit de fond provenant de la coïncidence fortuite sera donc d'autant plus important que le temps sera faible. GEANT4 ne fournit pas de tel résultat. Nous le mesurons de façon expérimentale.
- La diaphonie doit être implémentée. GEANT4 nous indique qu'elle est de 0.83 % pour les événements de fission.
- Le seuil des discriminateurs doit être simulé. En effet, pour la mesure avec les scintillateurs de 10 mm et ceux de 2 mm, les seuils des discriminateurs ne sont pas égaux. Ils sont estimés à environ 300 keV dans le premier cas et à 80 keV dans le second. Ce ne sont que des estimations puisque nous rappelons que les signaux énergie ne sont pas enregistrés. Comme les efficacités de détection sont très dépendantes de ce seuil, nous l'avons aussi pris comme paramètre.

Multiplicité fission	7			10		
	1 $\gamma$	2 $\gamma$	3 $\gamma$	1 $\gamma$	2 $\gamma$	3 $\gamma$
Taux de coïncidence						
Efficacité de détection (GEANT4)	17.04 %	1.437 %	0.0636 %	22.42 %	2.84 %	0.181 %
Efficacité de détection (loi binomiale)	17.01 %	1.524 %	0.0759 %	22.25 %	2.99 %	0.238 %
Ecart	0.2 %	6.05 %	19 %	0.8 %	5.3 %	31 %

TAB. 8.2 – Efficacités de détection de la fission dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur en fonction du taux de coïncidence et calculées avec GEANT4 et par une loi binomiale. Le seuil des discriminateurs est fixé à 200 keV.

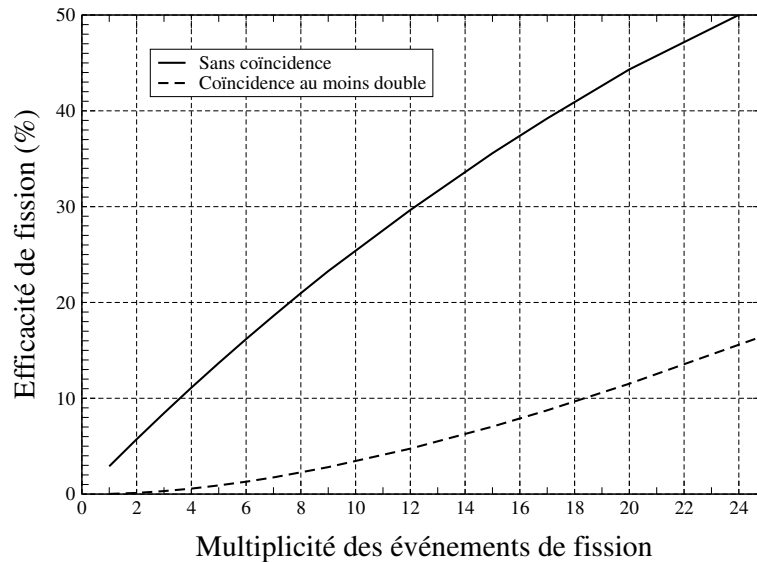


FIG. 8.3 – Efficacité de détection de la fission dans les scintillateurs YAP de 2 mm d’épaisseur en fonction de la multiplicité des événements de fission.

### Multiplicité des événements de fission

La seule augmentation de la multiplicité n’explique pas l’obtention d’une efficacité de détection de la fission de 44.8 %. La figure 8.3 représente la variation de cette efficacité en fonction de la multiplicité des photons de fission, obtenue avec GEANT4. Nous avons fait varier la multiplicité sur une plage volontairement exagérée afin de visualiser son effet sur l’efficacité de fission. Pour que cette dernière soit de l’ordre de 45 %, la multiplicité d’un événement de fission serait d’environ 20 ! Ceci n’est pas imaginable. L’influence de la multiplicité sur l’efficacité de détection n’est pas le phénomène majeur expliquant des valeurs expérimentales aussi élevées sans coïncidence imposée.

### Estimation expérimentale des coïncidences fortuites

Une autre source de bruit de fond provient des coïncidences fortuites. Il est dépendant de la largeur en coïncidence que nous avons choisie lors du traitement des données. Nous rappelons que nous avons imposé une coïncidence entre les scintillateurs YAP de 100 ns. Pour estimer le taux de coïncidences fortuites, nous calculons le temps entre 2 événements  $\gamma$ , à un instant donné. Le taux de coïncidence fortuites est effectivement dépendant du temps : lorsqu’a lieu un burst, le taux de comptage instantané est très élevé (de l’ordre de la centaine de coups/seconde sans coïncidence entre les scintillateurs, juste après le véto pulse). Ce taux de comptage diminue exponentiellement avant un nouveau burst (de l’ordre de quelques coups/seconde sans coïncidence entre les scintillateurs, 2 ms après le burst) à cause de la diminution du flux.

On estime le taux de coïncidences fortuites en calculant le nombre de fissions en fonction de la largeur de coïncidence entre les scintillateurs YAP et la chambre à fission. Les spectres obtenus, dont nous pouvons voir un exemple typique sur la figure 8.4, peuvent se diviser en deux parties : pour



de faibles largeurs de coïncidence, le nombre d'événements de fissions croît de façon logarithmique avec la largeur de coïncidence. Puis, la courbe devient croissante linéaire. Dans cette zone linéaire, le nombre de fissions vraies est constant et seul le nombre de fissions provenant de coïncidences fortuites augmente. Ainsi, nous avons quantifié ce bruit de fond en fonction du nombre de photons détectés et de la plage en temps relative considérée (cf figure 8.5). Ce bruit de fond est assez faible puisqu'il est au maximum de 1.25 % pour 2 photons gamma et de 0.29 % pour 3 photons gamma.

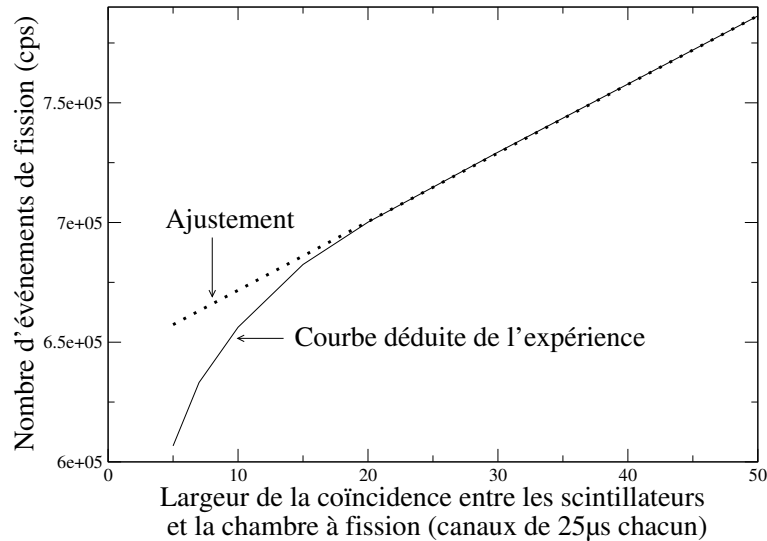


FIG. 8.4 – Variation du nombre de fissions en fonction de la largeur de coïncidence entre les scintillateurs YAP et la chambre à fission pour une plage en temps relatif des neutrons incidents donnée (ici, de 100 μs à 200 μs). La pente et l'ordonnée à l'origine de la courbe d'ajustement nous permettent de calculer le taux de coïncidence fortuite.

### Influence des seuils des discriminateurs

Nous avons représenté les efficacités de détection de fission en fonction du seuil des discriminateurs grâce à GEANT4 (cf figure 8.6), et comparées à la valeur expérimentale correspondante. De plus, nous avons tracé, sur la figure 8.7, les écarts relatifs des rapports  $\frac{\epsilon_{\text{coïncidence double}}}{\epsilon_{\text{single}}}$  et  $\frac{\epsilon_{\text{coïncidence triple}}}{\epsilon_{\text{coïncidence double}}}$ , par rapport à ceux calculés expérimentalement. Ces courbes nous permettent d'obtenir la valeur des seuils des discriminateurs imposés lors des acquisitions. Pour la mesure avec les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur, le seuil est de  $475 \pm 5$  keV. Pour celle de 2 mm, le seuil est de  $125 \pm 10$  keV.

Nous avons calculé les efficacités de détection de fission en fonction du seuil des discriminateurs grâce à GEANT4. Ils sont indiqués en fonction de la plage en temps considérée. Les résultats sont exposés dans le tableau 8.3.

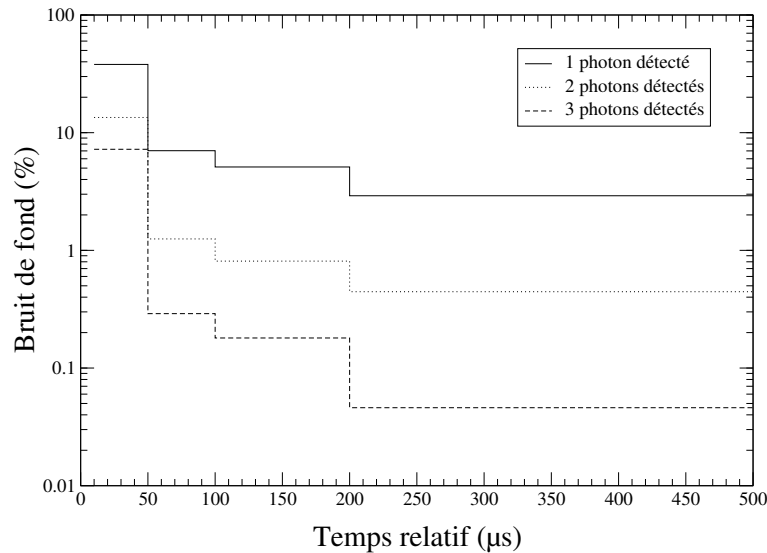


FIG. 8.5 – Bruit de fond provenant de coïncidences fortuites en fonction du nombre de photons détectés et de la plage en temps relatif considérée.

Les efficacités de détection de fission étant calculées sous GEANT4 en fonction du seuil, nous pouvons alors apporter les diverses corrections indispensables pour pouvoir les comparer aux données d’efficacités mesurées, c’est-à-dire en prenant en compte, une multiplicité de 10 au lieu de 7, les coïncidence fortuites et la diaphonie. Les résultats, pour les scintillateurs de 2 mm d’épaisseur, sont résumés dans le tableau 8.3. Aucun ensemble de données pour une valeur de seuil donnée n’est vraiment satisfaisant. Il n’y a aucun cas où les valeurs simulées sans coïncidence sont égales à celles obtenues de façon expérimentale. Une façon d’obtenir 44.5 % d’efficacité sans coïncidence est de diminuer très fortement le seuil. Cependant, lorsque le seuil diminue, les rapports d’efficacités varient et les efficacités en coïncidence double et triple deviennent différentes des valeurs expérimentales à plus de 100 % d’écart.

Un seuil de 120 keV serait celui qui correspondrait le plus aux valeurs expérimentales, si on tient compte à la fois des efficacités et des rapports d’efficacités. En effet, pour un tel seuil, les rapports d’efficacités obtenus sont corrects. Toutefois, les valeurs absolues de GEANT4 sont sous-estimées systématiquement de 30 %.

Les résultats précédents ont été obtenus en imposant une valeur de seuil rigoureusement identique à tous les discriminateurs. Nous avons voulu étudier l’influence des seuils des discriminateurs sur l’efficacité de détection. Pour cela, nous imposons des seuils différents à chaque scintillateurs YAP dans une plage de 20 % (ce qui est probable du point de vue expérimental). Nous comparons alors les efficacités de détection de fission alors obtenus avec celles obtenues lorsque les seuils des discriminateurs sont supposés égaux. La variation est de -3.5 % sans coïncidence, de -6.85 % en coïncidence au moins double, et de -22.9 % en coïncidence au moins triple. Plus nous imposons une coïncidence grande, plus nous serons sensible au “mauvais” réglage des seuils des discriminateurs. Le fait de

n'avoir pas pu acquérir les signaux énergies nous empêche d'imposer en software un seuil en énergie rigoureusement identique pour tous les scintillateurs YAP. Ainsi les efficacités mesurées expérimentalement sont sous-estimées, jusqu'à 23 % en coïncidence triple !

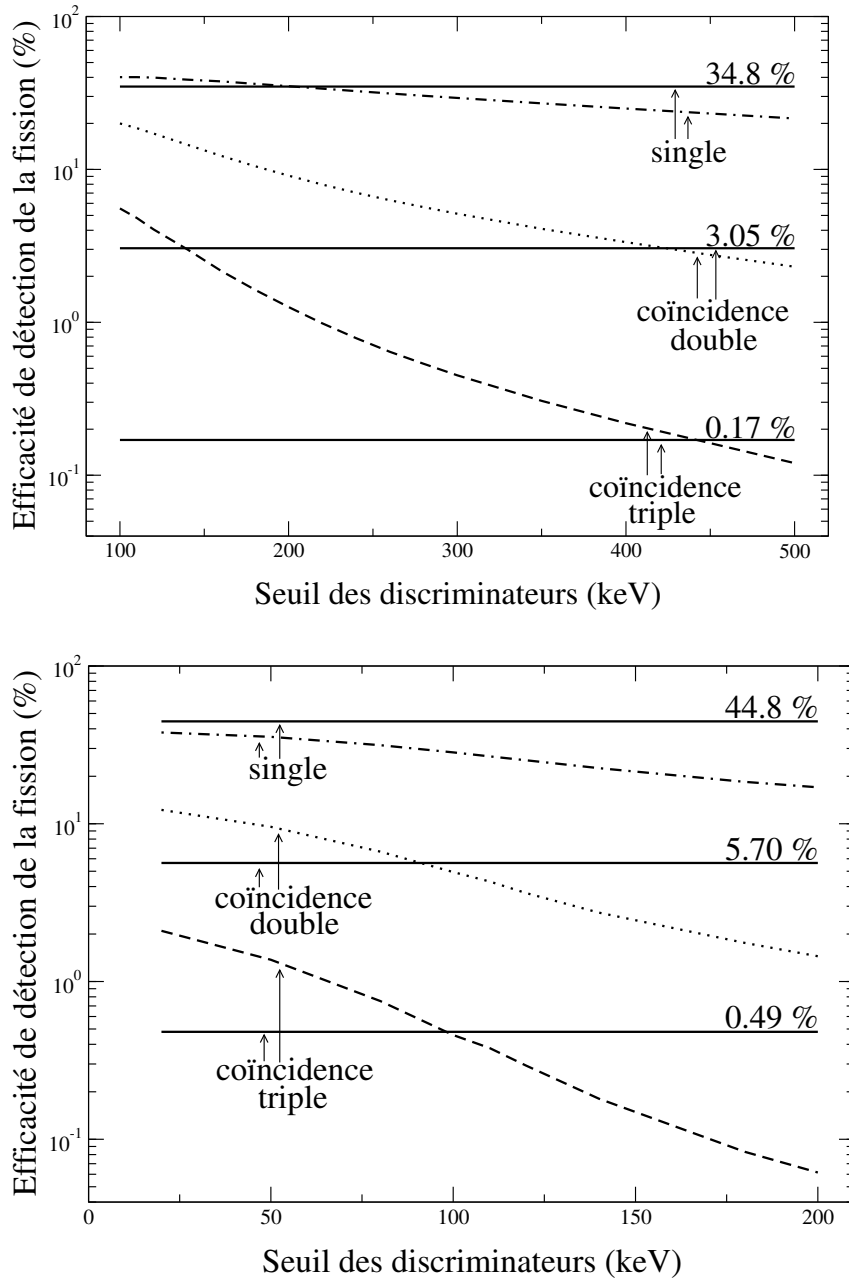


FIG. 8.6 – Efficacité de détection de la fission calculée avec GEANT4 en fonction du seuil des discriminateurs et de la coïncidence imposée. Les courbes pleines constantes dont la valeur est spécifiée sur les graphiques correspond aux valeurs expérimentales. Les efficacités sont représentées pour le cas “10 mm” (en haut) et “2 mm” (en bas).

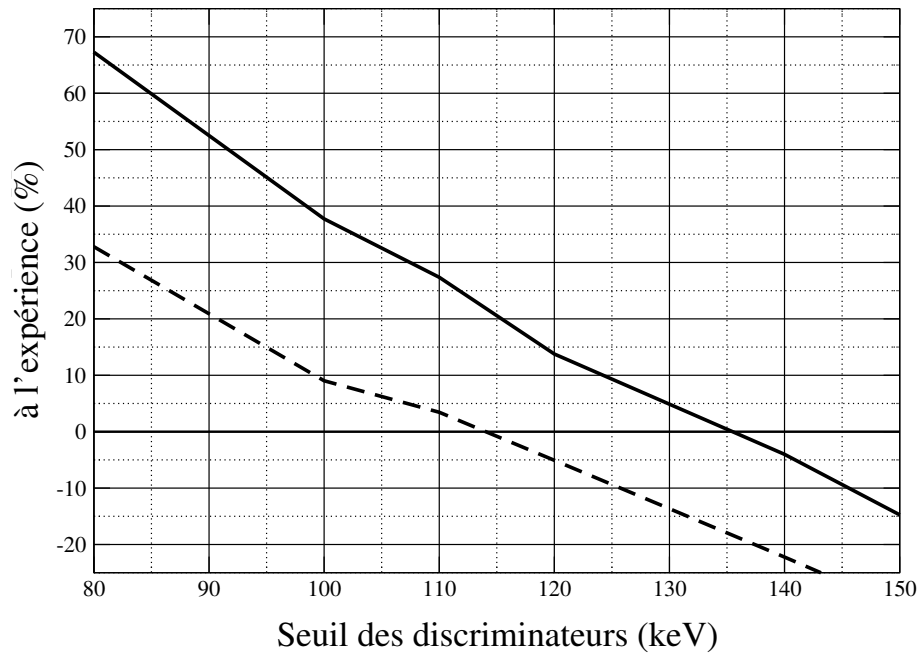
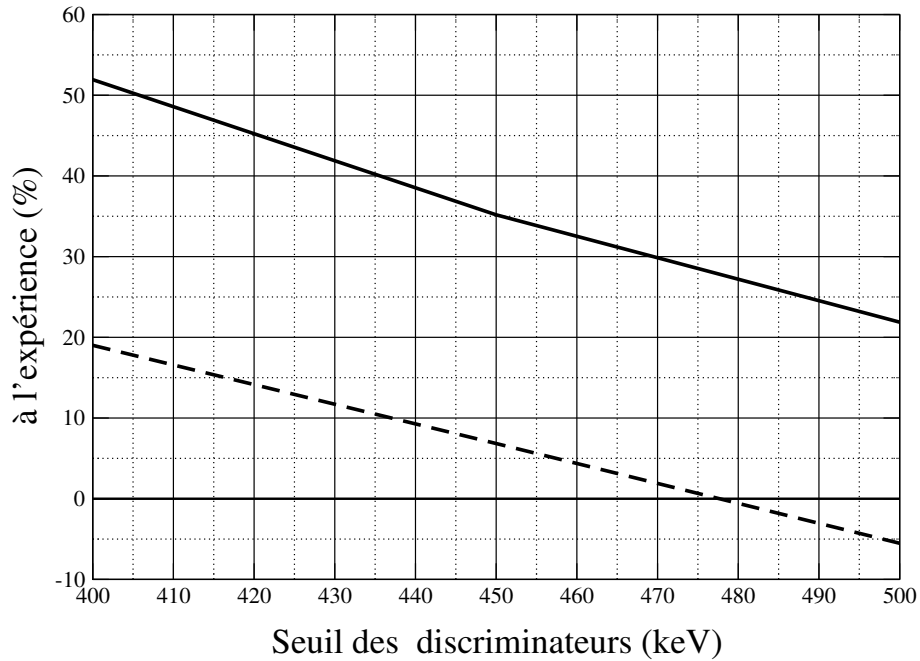


FIG. 8.7 – Ecarts relatifs des rapports  $\frac{\epsilon_{\text{coincidence double}}}{\epsilon_{\text{single}}}$  (courbe pleine) et  $\frac{\epsilon_{\text{coincidence triple}}}{\epsilon_{\text{coincidence double}}}$  (courbe pointillée), par rapport à ceux calculés expérimentalement. Les valeurs obtenues sont représentées pour le cas “10 mm” (en haut) et “2 mm” (en bas).

### 8.1.1.3 Conclusion sur les efficacités de détection de fission

Grâce au spectre dans la chambre à fission, nous pouvons estimer assez facilement les efficacités de fission dans les scintillateurs, de façon expérimentale. Les valeurs obtenues, ainsi que les incertitudes associées, sont résumées dans le tableau I.2. Les erreurs statistiques pour les efficacités de détection de fission sont de l'ordre de 1 % en coïncidence triple et négligeables dans les autres cas.

En plus des erreurs statistiques, s'ajoutent deux erreurs systématiques. La première provient du seuil en énergie dans le spectre de la chambre à fission pour supprimer les particules  $\alpha$ . Nous avons vu que 2.5 % des fissions ne sont pas prises en compte (cf chapitre 5, partie 5.2.2). La deuxième erreur systématique provient du réglage des seuils. Les écarts sur les efficacités de détection sont d'autant plus importants que le taux de coïncidence imposé est grand. Cette erreur ne peut pas être estimée de manière correcte, c'est pourquoi nous utilisons une valeur surestimée, donnée dans le paragraphe précédent.

Enfin, la comparaison entre les valeurs expérimentales et celles de GEANT4 n'est pas convaincante. GEANT4 sous estime d'environ 30 % les efficacités, malgré les corrections apportées. Ainsi, les rapports d'efficacité simulés sous GEANT4 sont corrects, ce qui n'est pas le cas pour les efficacités absolues.

Taux de coïncidence	Plage en temps ( $\mu$ s)	Efficacité détection (%)	Ecart avec les mesures expérimentales (%)	Efficacité détection (%)	Ecart avec les mesures expérimentales (%)
		Seuils à 100 keV		Seuils à 110 keV	
single	50 100	34.75	- 21.8	33.31	-25.02
	100 200	34.56	- 22.8	33.12	- 26.05
	200 500	34.34	- 23.1	32.91	- 26.33
coïnc. double	50 100	6.17	10.6	5.48	- 1.82
	100 200	6.11	6.9	5.42	- 5.11
	200 500	6.04	6.2	5.36	- 5.78
coïnc. triple	50 100	0.634	35.1	0.536	14.22
	100 200	0.624	26.1	0.528	6.57
	200 500	0.613	26.2	0.518	6.66

Taux de coïncidence	Plage en temps ( $\mu$ s)	Efficacité détection (%)	Ecart avec les mesures expérimentales (%)	Efficacité détection (%)	Ecart avec les mesures expérimentales (%)
		Seuils à 120 keV		Seuils à 140 keV	
single	50 100	31.88	- 28.2	29.07	- 34.6
	100 200	31.70	- 29.2	28.91	- 35.5
	200 500	31.50	- 29.5	28.73	- 35.7
coïnc. double	50 100	4.70	- 15.8	3.63	- 35.0
	100 200	4.65	- 18.7	3.59	- 37.2
	200 500	4.59	- 19.3	3.54	- 37.8
coïnc. triple	50 100	0.425	- 9.4	0.275	- 41.3
	100 200	0.418	-15.6	0.270	- 45.4
	200 500	0.410	- 15.6	0.265	- 45.5

TAB. 8.3 – Efficacité de détections simulées avec GEANT4, obtenu avec une multiplicité 10, et en prenant en compte les coïncidences fortuites et la diaphonie, pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur.

10 mm				2 mm			
	1	2	3		1	2	3
$\epsilon_i^{fis\ 235U}$	34.77 %	3.047 %	0.167 %	$\epsilon_i^{fis\ 235U}$	44.78 %	5.704 %	0.487 %
$\frac{d\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{fis\ 235U}}$	4.3 %	7.3 %	23 %	$\frac{d\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{fis\ 235U}}$	4.3 %	7.3 %	23 %

TAB. 8.4 – Résumé des valeurs d’efficacités expérimentales de fission de l’ $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP de 10 mm d’épaisseur (en gauche) et de 2 mm (en droite), en fonction de la coïncidence.

## 8.1.2 Efficacité de détection des scintillateurs YAP pour les événements $\gamma$ de capture

La mesure de l’efficacité de détection des photons gamma de capture dans les scintillateurs YAP est relativement complexe. Pour pouvoir estimer celle-ci, nous avons effectué une étude dédiée, avec différentes cibles de capture.

### 8.1.2.1 Les différentes cibles de capture utilisées

Nous avons effectué des mesures avec des cibles de capture résonantes à la place de la chambre à fission. Ces cibles sont caractérisées par une section efficace de capture intense et isolée à une (ou plusieurs) énergie(s)  $E_{résonance}$  connue(s) avec précision. Cela se traduira par un pic dans le spectre en temps relatif situé au temps relatif correspondant à  $E_{résonance}$ . Ces cibles doivent répondre à trois critères :

1. Elles doivent être minces. Au niveau de la résonance et pour une cible trop épaisse, les absorptions n’ont lieu qu’à proximité de la surface. Une grande épaisseur de matière est donc inutile pour le comptage, voire pénalisant puisque plus la cible, proche des détecteurs, est épaisse, plus le ralentissement des neutrons, et donc la relation énergie-temps, est modifié.
2. Elles doivent être situées très près des détecteurs afin d’éviter les pertes de photons gamma dans la matière. Lors de la mesure, nous avons placé les cibles entre les deux systèmes de détection, la chambre à fission étant enlevée.
3. Les résonances doivent être bien résolues et suffisamment intenses pour que les pics attendus soient effectivement observables.

Nous avons décidé d’utiliser 4 types de cibles dont trois déjà employées lors d’une thèse précédente [36] : Au, Ag et Mo. La quatrième cible est composée de tantale. Toutes les cibles ont une épaisseur du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen d’un neutron à l’énergie de résonance en question.

Les sections efficaces de capture correspondant aux cibles sont représentées figure 8.8 et les caractéristiques de ces cibles sont répertoriées dans le tableau 8.5. Les spectres obtenus sont représentés sur la figure 8.9.

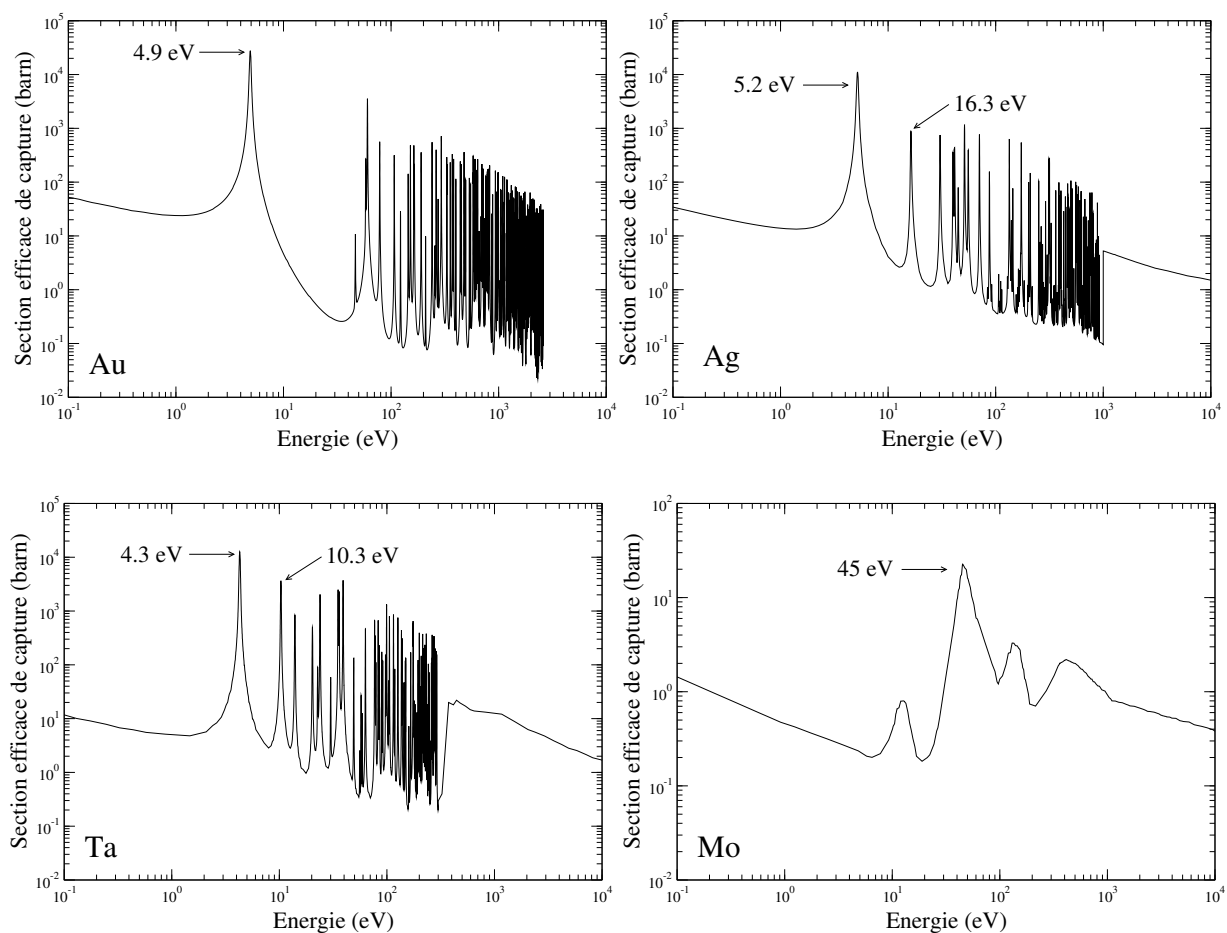


FIG. 8.8 – Sections efficaces de capture radiative des cibles résonantes utilisées : l’or (en haut à gauche), l’argent (en haut à droite), le tantale (en bas à gauche) et le molybdène (en bas à droite). Les résonances considérées pour l’analyse ont été marquées sur les graphiques.

Cible	quantité de matière (gramme)	volume ( $cm^3$ )	épaisseur ( $\mu m$ )	libre parcours moyen ( $\mu m$ )
Ta	0.65	$3.90 \cdot 10^{-2}$	100	16 (4.3 eV) et 53 (10.3 eV)
Au	0.22	$1.14 \cdot 10^{-2}$	20	6 (4.9 eV)
Ag	0.22	$2.09 \cdot 10^{-2}$	50	15 (5.2 eV) et 182 (16.3 eV)
Mo	0.65	$3.90 \cdot 10^{-2}$	60	82 (45 eV)

TAB. 8.5 – Caractéristiques des cibles résonantes utilisées.

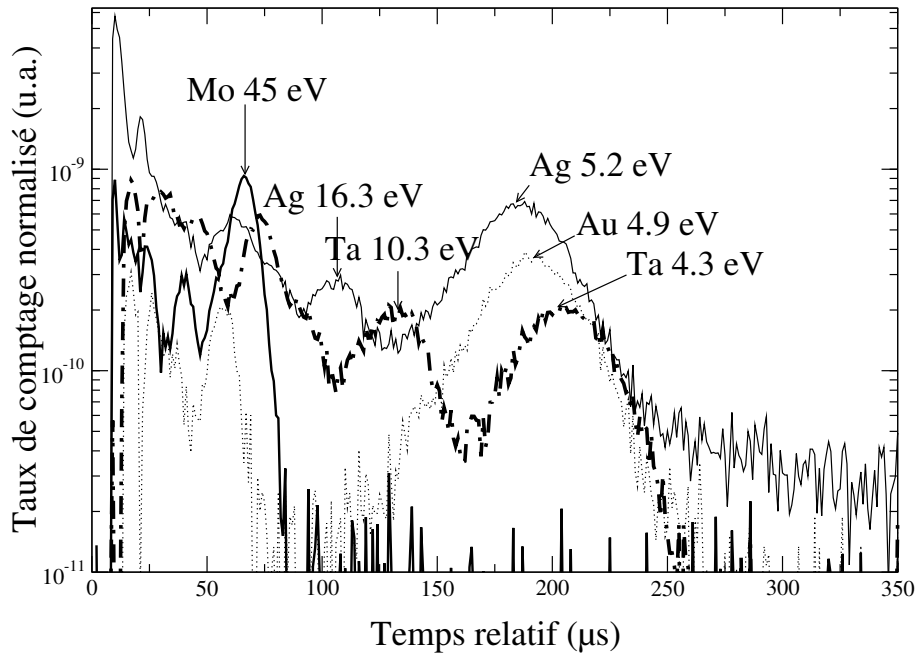
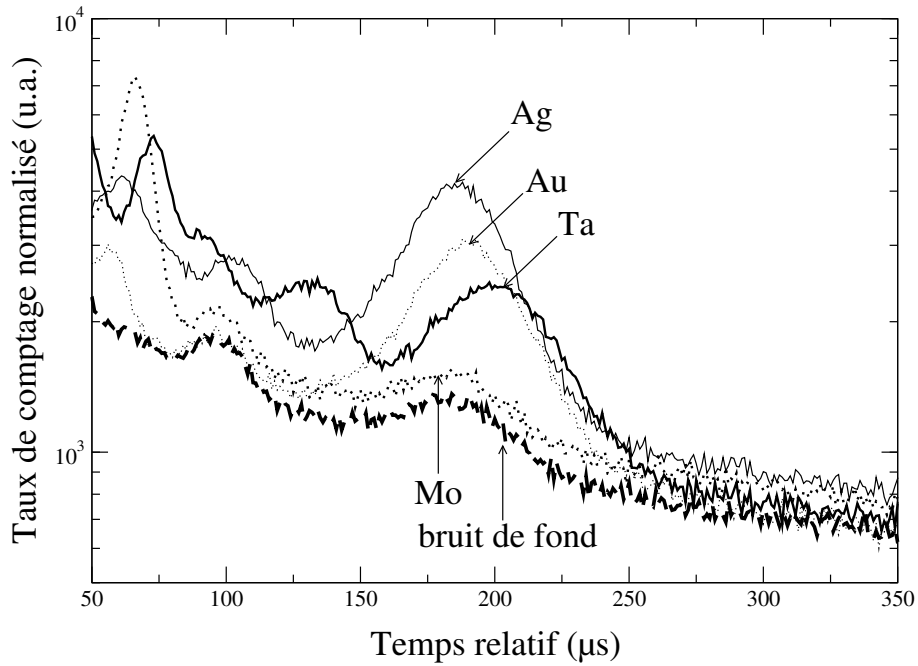


FIG. 8.9 – Spectres en temps relatif dans les scintillateurs YAP en double coïncidence, obtenus avec les cibles résonantes, normalisés au nombre de neutrons émis (en haut). Les spectres représentés dans la figure du bas correspondent aux spectres précédents après soustraction du bruit de fond.

### 8.1.2.2 Mesures expérimentales des efficacités de détection

Grâce à ces mesures, nous pouvons en déduire l'efficacité de détection dans les scintillateurs YAP, en fonction du noyau, de l'énergie du neutron incident et du taux de coïncidence. Afin de connaître l'efficacité de détection de capture de façon absolue, nous devons utiliser les simulations (MCNP).



Nous comparons les intégrales dans les pics de résonance des spectres expérimentaux à celles des spectres obtenus avec MCNP. Nous obtenons les valeurs représentées sur la figure 8.10.

Si nous voulons éviter l'introduction d'erreur provenant de simulations, il est préférable de comparer des rapports d'efficacité. Nous avons donc comparé  $\frac{\epsilon_{\text{coinc double}}}{\epsilon_{\text{single}}}$  et  $\frac{\epsilon_{\text{coinc triple}}}{\epsilon_{\text{coinc double}}}$  donnés par l'expérience, par GEANT4 et par la loi binomiale. Ces comparaisons sont résumées dans le tableau 8.6. Nous retrouvons bien que la loi binomiale est une approximation au premier ordre, même si nous avons pris en compte la distribution de multiplicité en utilisant celle obtenue dans GEANT4. Le problème du seuil des discriminateurs dans les résultats des simulations de GEANT4 intervient. La figure 8.12 indiquent les écarts relatifs des rapports  $\frac{\epsilon_{\text{coinc double}}}{\epsilon_{\text{single}}}$  et  $\frac{\epsilon_{\text{coinc triple}}}{\epsilon_{\text{coinc double}}}$ , par rapport à ceux calculés expérimentalement. Pour le seuil de 120 keV, que nous avons choisi dans le paragraphe précédent, les écarts entre les mesures et GEANT4 sont de l'ordre de 50 %.

Les efficacités de détection de la capture n'ont été mesurées expérimentalement que pour les scintillateurs de 2 mm. Il était prévu de déduire des valeurs expérimentales et des simulations, les efficacités de détection de la capture pour les scintillateurs de 10 mm. Au vu des erreurs apportées par la simulation, nous ne donnerons pas de valeurs pour ces dernières.

La différence entre simulations et mesures expérimentales pourrait provenir de la multiplicité des photons de capture de l' $^{233}\text{U}$ . Nous avons reporté le spectre obtenu dans GEANT4 sur la figure 8.13. Elle est centrée autour de 3, ce qui est cohérent. Nous rappelons aussi les distributions en énergie utilisées dans GEANT4. L'écart observé ne paraît pas provenir de ces données. Il reste donc à comprendre pourquoi il existe une telle déviation entre GEANT4 et les mesures expérimentales.

	Mesures (%)	GEANT4 (%)	Ecart par rapport à la mesure	Loi binomiale (%)	Ecart par rapport à la mesure
$\epsilon_1^{\text{capt } 235\text{U}}$	16.73	16.38	- 2.1 %	16.63	0.6 %
$\epsilon_1^{\text{cap } 235\text{U}}$	0.98	1.53	61 %	1.350	- 38.0 %
$\epsilon_1^{\text{capt } 235\text{U}}$	0.029	0.081	180 %	0.0548	- 89.4 %
$\frac{\epsilon_{\text{coinc double}}}{\epsilon_{\text{single}}}$	0.0585	0.0706	20.6 %	0.0812	33 %
$\frac{\epsilon_{\text{coinc triple}}}{\epsilon_{\text{coinc double}}}$	0.0296	0.0315	6.4 %	0.0406	65.7 %

TAB. 8.6 – Comparaison des rapports d'efficacité en fonction du taux de coïncidence, obtenus de façon expérimentale, avec GEANT4 (seuil imposé à 120 keV) ou avec une loi binomiale.

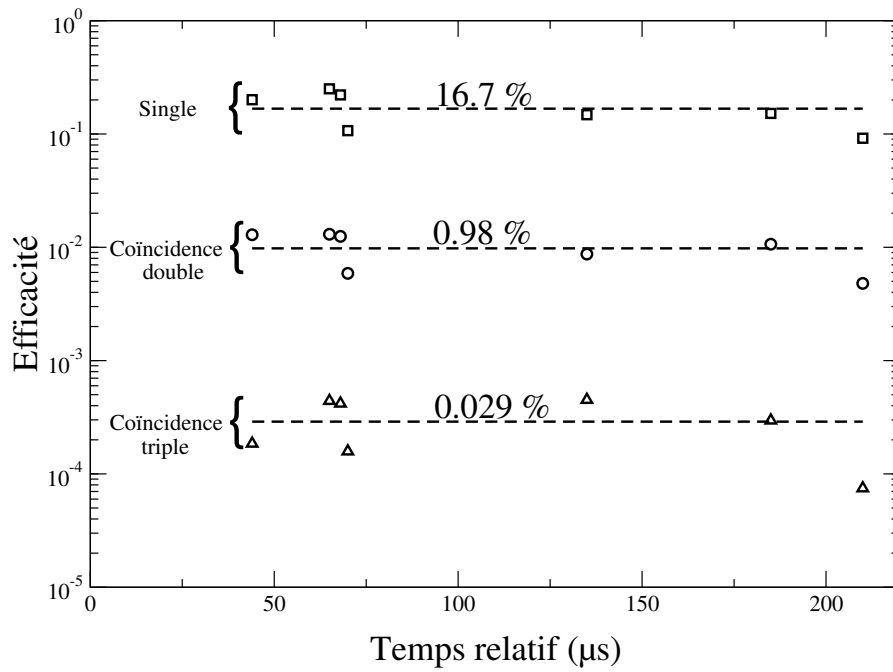


FIG. 8.10 – Efficacité de détection dans les scintillateurs YAP des événements de capture en fonction de l'énergie des neutrons et en fonction du taux de coïncidence imposé.

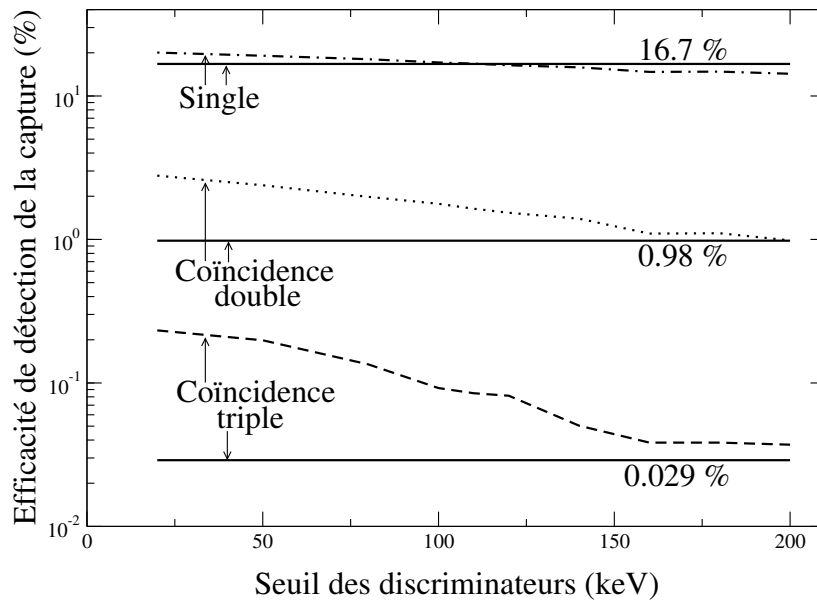


FIG. 8.11 – Efficacités de détection de la capture dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur en fonction de la coïncidence imposée, obtenues grâce à GEANT4. Les courbes pleines constantes dont la valeur est spécifiée sur les graphiques correspond aux valeurs expérimentales.

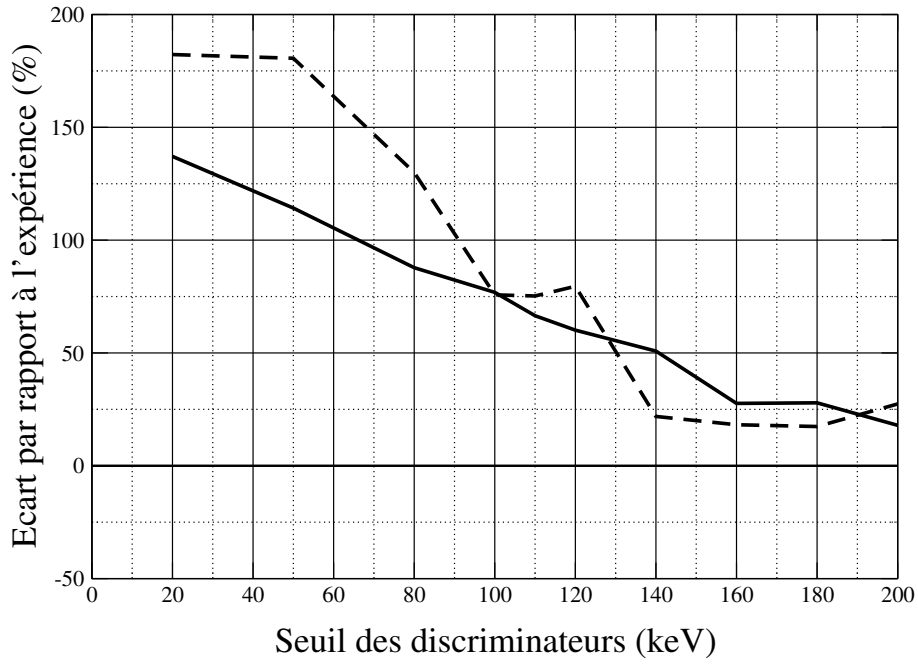


FIG. 8.12 – Ecarts relatifs des rapports  $\frac{\epsilon_{coinc\ double}}{\epsilon_{single}}$  (courbe pleine) et  $\frac{\epsilon_{coinc\ triple}}{\epsilon_{coincidence\ double}}$  (courbe pointillées), par rapport à ceux calculés expérimentalement. Les valeurs obtenues sont représentées pour le cas “2 mm”.

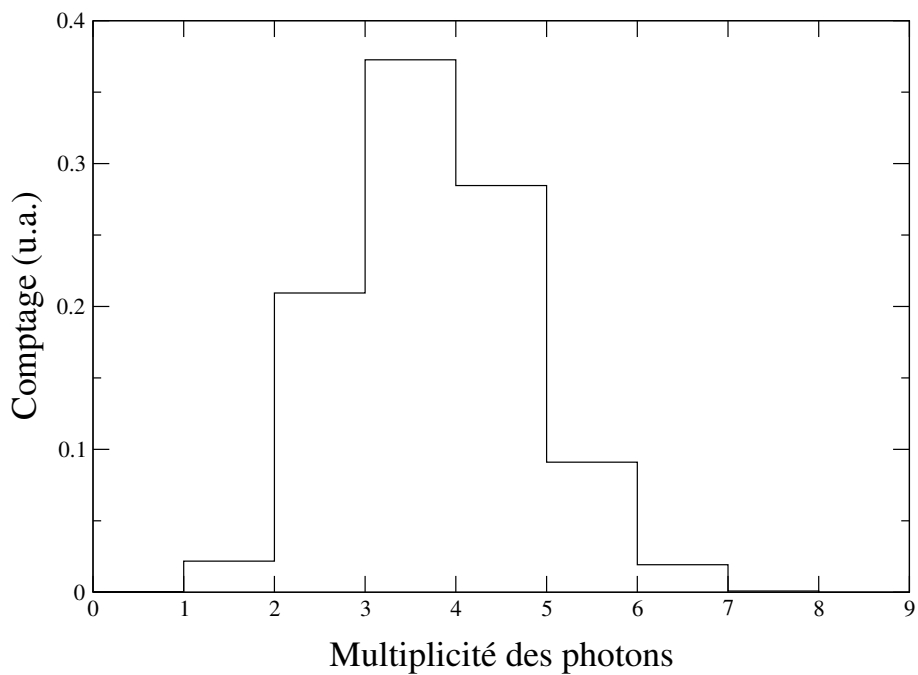


FIG. 8.13 – Spectre de multiplicité des événements de capture obtenu avec la simulation GEANT4.

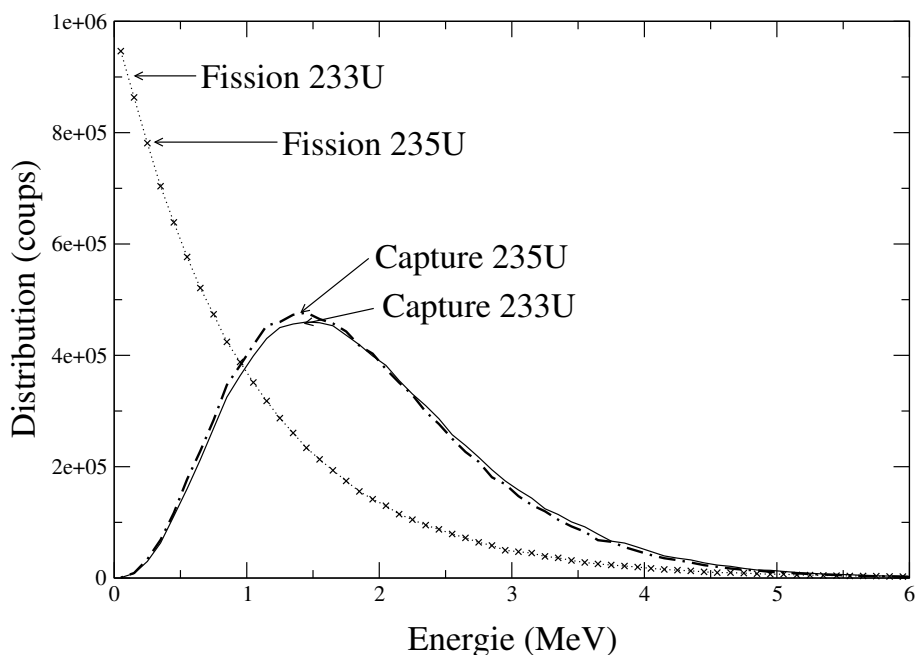


FIG. 8.14 – Distribution en énergie des photons gamma émis suite à une capture ou une fission neutronique en fonction de l'élément considéré.

### 8.1.2.3 Conclusion sur les efficacités de détection de capture

Les efficacités de la capture dans les scintillateurs sont beaucoup plus difficiles à déterminer de façon expérimentale que les efficacités de détection de fission. Les valeurs obtenues, ainsi que les incertitudes associées, sont résumées dans le tableau I.3. Les valeurs d'incertitudes proviennent du calcul de la dispersion des données expérimentales. Seules les efficacités pour les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur sont indiquées puisque l'étude avec les cibles de capture résonantes n'a été effectuée que pour ce dispositif expérimental. De plus, comme pour le calcul des efficacités de fission, les valeurs obtenues par simulation GEANT4 ne sont pas convaincantes. GEANT4 sous estime d'environ 50 % les efficacités, malgré les corrections apportées. Ainsi, nous ne pourrons pas utiliser GEANT4 pour en déduire les efficacités de détection de la capture pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur. Une étude est en cours pour comprendre les écarts observés entre les valeurs expérimentales et simulées.

### 8.1.3 Conclusion sur les efficacités de détection des scintillateurs YAP

Pour pouvoir extraire le rapport  $\alpha$  des données expérimentales, nous avons vu qu'il est impératif de connaître les efficacités de détection de la capture et de la fission de l' $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP. Les valeurs utilisées pour estimer le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  par la suite sont résumées dans le tableau I.4.

**2 mm**

	1	2	3
$\epsilon_i^{capt\ 235U}$	16.73 %	0.98 %	0.029 %
$\frac{d\epsilon_i^{capt\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}}$	31 %	34 %	52 %

TAB. 8.7 – Résumé des valeurs d’efficacité expérimentales de la capture de l’ $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP de 2 mm, en fonction de la coïncidence. Les données pour les scintillateurs de 10 mm n’ont pas été mesurées expérimentalement.

**2 mm**

	1	2	3
$\frac{\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}}$	2.66 %	5.76 %	16.6 %
$\frac{d\epsilon_i^{fis}}{\epsilon_i^{fis}} + \frac{d\epsilon_i^{capt\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}}$	35 %	41 %	75 %

TAB. 8.8 – Résumé des rapports des efficacités expérimentales de fission sur celles de capture de l’ $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP de 2 mm, en fonction de la coïncidence.

Enfin, un dernier calcul permet de comprendre pourquoi la mesure du rapport  $\alpha$  est bornée en temps à 50  $\mu\text{s}$ . L’explication provient des erreurs sur les efficacités de détection dues au positionnement du système expérimental. En effet, pour pouvoir s’assurer de la position exacte du système de détection, ce dernier a été installé sur un rail de guidage (cf figure 8.15). Initialement, il était prévu que ce rail ne soit pas déplacé : seuls les systèmes de détection devaient coulisser dessus. Toutefois, pour des raisons mécaniques, nous avons dû retirer le rail du bloc de plomb à chaque changement de chambre à fission (chambre avec cibles et chambre sans cibles). Autant nous sommes sûrs de la reproductibilité de la position en Y du système de détection au millimètre près, autant nous ne pouvons pas confirmer que le système a été rigoureusement placé à la même position X. Il y a un jeu d’1 cm en X, entre ce rail et le canal de plomb. Ce rail peut donc être dévié d’un très faible angle dans ce canal, ce qui amène à un écart de position au niveau des détecteur, selon l’axe X, de 1 cm au maximum. Or, si nous simulons sous GEANT4 la variation de l’efficacité “effective” de détection du bloc de plomb, nous nous apercevons que celle-ci ne varie pas sans coïncidence, mais elle varie de 22 % en coïncidence double. Les résonances des impuretés du bloc de plomb sont donc détectés avec une efficacité pouvant varier de 22 % en coïncidence double et 53 % en coïncidence triple.

Les efficacités de détection des événements ne sont absolument pas les mêmes lors des différentes acquisitions. La figure 8.16 montre l’effet sur les spectres de ces variations d’efficacité. L’effet est d’autant plus marqué que la coïncidence est élevée. C’est la raison principale pour laquelle nous ne nous intéressons pas aux temps inférieurs à 50  $\mu\text{s}$  ( $E_n > 66\text{ eV}$ ). L’extrême sensibilité à ces efficacités

de détection, quelle que soit la plage en énergie considérée, mise en exergue par l'utilisation de la coïncidence pourtant indispensable pour améliorer le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ , interdit toute analyse fiable sur cette plage en énergie.

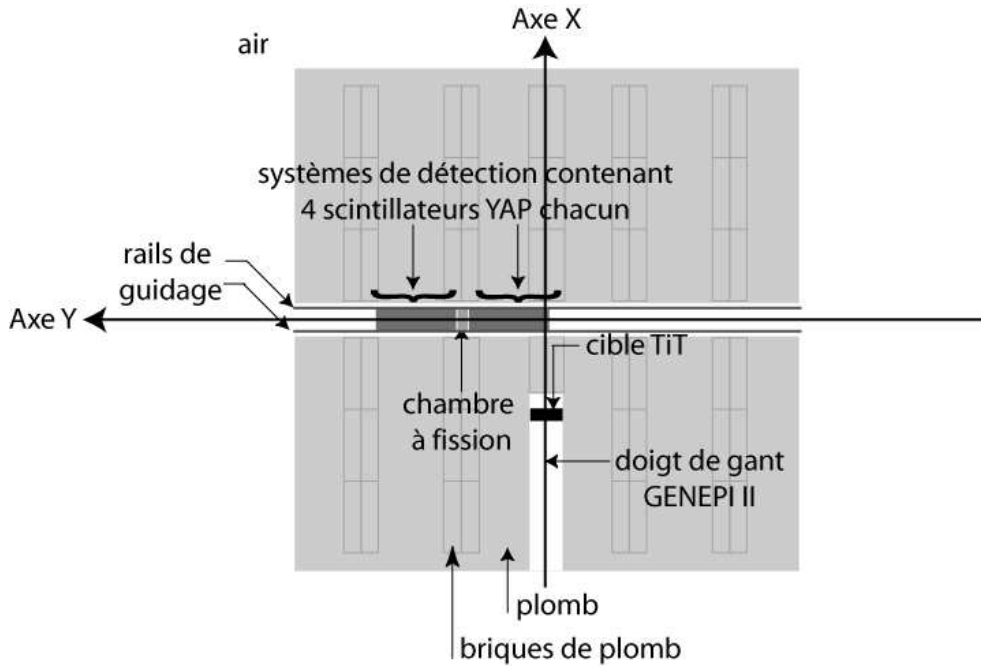


FIG. 8.15 – Schéma du bloc de plomb avec le rail de guidage.

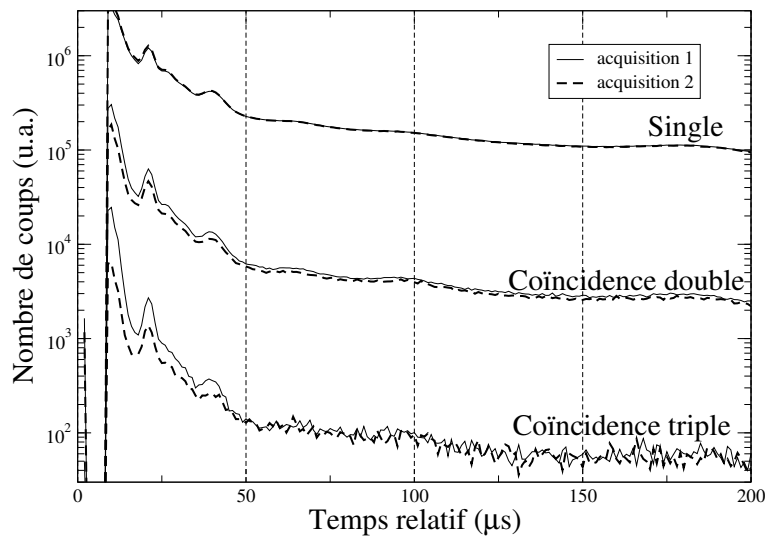


FIG. 8.16 – Spectres en temps relatif pour deux acquisitions identiques, en fonction du taux de coïncidence imposé. Les acquisitions sont normalisées grâce au détecteur Silicium.

## 8.2 Efficacité de détection de la chambre à fission $\epsilon_{CaF}$

Grâce à MCNP, nous avons simulé le flux de neutrons au niveau des détecteurs. En divisant le taux de réaction de fission obtenu expérimentalement dans la chambre à fission par ce flux, nous obtenons la section efficace de capture à  $\epsilon_{CaF}$  près. En utilisant l'évaluation de la section efficace de fission de  $^{235}\text{U}$  (ENDF/B-VI), l'efficacité  $\epsilon_{CaF}$  a été estimée à 76 %.

Le calcul d'erreur est difficile à effectuer puisque nous devons estimer l'erreur apportée par la simulation MCNP<sup>2</sup>. La relation énergie-temps dans le bloc de plomb est connue à quelques pourcents près. Il s'avère donc, pour notre dispositif expérimental actuel, que le terme d'incertitude  $\frac{d\epsilon_{CaF}}{\epsilon_{CaF}}$  dans l'équation I.3 est faible et ne compte quasiment pas en comparaison des autres incertitudes.

## 8.3 Le facteur de normalisation N

Le dernier terme d'incertitude de l'équation I.3 provient de l'incertitude apportée par le facteur de normalisation N. Comme nous avons vu dans le chapitre précédent, ce terme permet de normaliser les spectres de signaux obtenus avec la chambre à fission contenant les cibles d' $^{235}\text{U}$  et ceux de bruit de fond obtenus avec la chambre à fission sans les cibles. L'incertitude  $\frac{dN}{N}$  intervient de la façon suivante :

$$\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$$

N et  $\frac{dN}{N}$  sont connus : N est déterminé grâce au détecteur Silicium. Nous normalisons les spectres aux nombres de neutrons vus, c'est-à-dire au même flux de neutrons. Il est égal à 1.81 pour la configuration "10 mm" et à 1.16 pour la configuration "2 mm". L'incertitude sur ces valeurs est faible mais difficilement estimable très précisément. Les erreurs statistiques sur le taux de comptage des particules  $\alpha$  sont négligeables. Par contre, des phénomènes comme la position du faisceau sur la cible ou la forme même du faisceau ne sont pas connus et sont sources d'erreurs. Nous estimerons par la suite que  $\frac{dN}{N}$  est inférieur au pourcent.

Nous allons donc nous focaliser sur le terme  $\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i}$  uniquement. Le dénominateur ( $s_i - f_i - N * b_i$ ), qu'on appellera par la suite  $c_i$ , correspond aux événements de capture mesurés, non corrigés des efficacités de détection. Ainsi,  $\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i}$  est égal au nombre d'événements de bruit mesurés sur celui de capture. Or, nous savons que le rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  est de l'ordre de 0.5 sur la plage en temps considérée [50  $\mu\text{s}$  ; 500  $\mu\text{s}$ ]. Ainsi, nous pouvons écrire :

$$\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} = \frac{b_i}{c_i} \sim 2 * \frac{b_i}{f_i}$$

Les valeurs obtenues pour le dernier terme d'incertitude sur le rapport  $\alpha$  sont résumées dans le tableau I.5. Elles sont très élevées, non pas parce que le terme de normalisation est mal connu mais parce que le facteur multiplicatif de  $\frac{dN}{N}$  est particulièrement élevé. Les erreurs sur le rapport  $\alpha$  seront

<sup>2</sup>Il existe une méthode purement expérimentale (c'est-à-dire sans introduction de simulation) pour estimer  $\epsilon_{CaF}$ . Celle-ci ne peut pas aboutir à cause du faible rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  ou du faible taux de comptage.

### 10 mm

Coïncidence	$2 * \frac{b_i}{f_i}$	N	$\frac{dN}{N}$	$\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$
1	95	1.81	1 %	172 %
2	23	1.81	1 %	42 %
3	6	1.81	1 %	11 %

### 2 mm

Coïncidence	$2 * \frac{b_i}{f_i}$	N	$\frac{dN}{N}$	$\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$
1	131	1.17	1 %	153 %
2	23	1.17	1 %	27 %
3	5.0	1.17	1 %	5.8 %

TAB. 8.9 – Calcul du dernier terme d’erreur sur la mesure du rapport  $\alpha$  de l’ $^{235}\text{U}$ , en fonction de la coïncidence, pour les mesures avec des scintillateurs de 10 mm (en haut) et de 2 mm (en bas). Les valeurs données sont intégrées sur la plage en temps relatif comprise entre 50  $\mu\text{s}$  et 500  $\mu\text{s}$ .

d’autant plus faibles que la coïncidence sera élevée. Ceci est cohérent : la coïncidence a été mise en place volontairement pour augmenter le rapport  $\frac{f_i}{b_i}$ .

## 8.4 Section efficace de capture de l’ $^{235}\text{U}$ et rapport $\alpha$ de l’ $^{235}\text{U}$

Nous rappelons que le spectre de capture et le rapport  $\alpha$  s’obtiennent à partir des spectres par les formules suivantes :

$$C = \frac{1}{\epsilon_i^{capt\ 235U}} (s_i - f_i - N * b_i) \quad (8.1)$$

$$\alpha = \frac{C}{F} = \frac{\epsilon_i^{fis\ 235U} * \epsilon_{CaF}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}} \frac{s_i - f_i - N * b_i}{f_i} \quad (8.2)$$

Le bruit de fond provenant de l’activation a été systématiquement soustrait des spectres avant d’effectuer les analyses. Ce rapport est donc dépendant de :

1.  $\frac{\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}}$ . Ce terme a été obtenu de façon purement expérimentale. (cf paragraphe 8.1).
2. L’efficacité de détection de la chambre à fission  $\epsilon_{CaF}$  (cf paragraphe 8.2).
3. Le facteur de normalisation N. Ce terme est donné par le détecteur silicium (cf paragraphe 8.3).
4. Un terme supplémentaire et constant a été rajouté qui intervient dans le numérateur :  $s_i - f_i - N * b_i$ . Il provient du fait que nous avons enlevé un terme constant d’activation connu avec une certaine précision, elle aussi insuffisante. Il va surtout modifier le rapport  $\alpha$  aux basses énergies.

Ces facteurs sont tous connus, cependant ils sont connus avec des précisions insuffisantes pour mesurer la capture et donc le rapport  $\alpha$  de l’ $^{235}\text{U}$ . La mesure de la capture est extrêmement sensible à



ces termes, dont tout particulièrement à celui de normalisation à cause du rapport signal sur bruit<sup>3</sup> particulièrement faible dans notre dispositif expérimental.

Nous avons donc 4 paramètres :  $\frac{\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}}$ ,  $N$ ,  $\epsilon_{CaF}$  et le terme de correction d'activation, à disposition. Le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  peut être obtenu en faisant varier ces facteurs d'une amplitude inférieure à la précision estimée. Il doit pouvoir se superposer au rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  évalué. Celui-ci est donné par une simulation MCNP. Elle prend en compte le fait que les cibles ne sont pas composées uniquement d' $^{235}\text{U}$  mais aussi d' $^{234}\text{U}$ , d' $^{236}\text{U}$  et d' $^{238}\text{U}$ . La figure 8.17 nous indique les sections efficaces de capture de ces différents éléments, renormalisées à la quantité de matière présente. Ainsi, nous voyons que la résonance de capture située à 5 eV des impuretés sera visible sur le spectre.

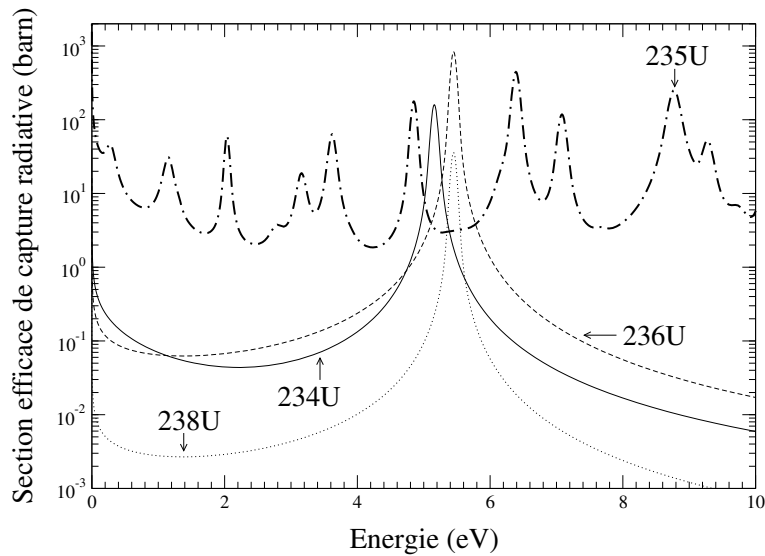
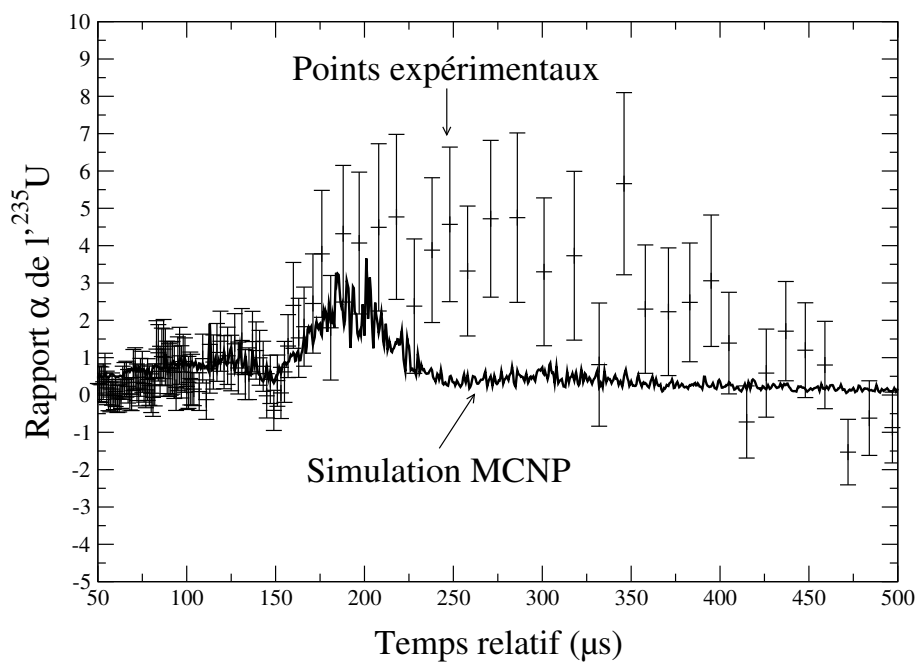


FIG. 8.17 – Sections efficaces de capture des différents éléments composant les cibles d' $^{235}\text{U}$ , normalisées au prorata de la quantité de matière présente.

Les quatre facteurs cités ci-dessus n'interviennent pas tous de la même façon. Une mesure du rapport des rapports  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  sur celui de l' $^{233}\text{U}$  ne permet pas de s'affranchir de toutes les variables. L'erreur apportée par le terme  $\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$  restera véritablement problématique pour la mesure. Le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  obtenu est représenté sur la figure 8.18. Les valeurs obtenues sur la plage  $[50\ \mu\text{s} ; 200\ \mu\text{s}]$  sont cohérentes avec la simulation. Par contre, sur la plage  $[200\ \mu\text{s} ; 350\ \mu\text{s}]$ , le bruit de fond semble surestimé. Aucune impureté présentant une résonance sur cette plage en énergie et pouvant être présente lors des acquisitions de bruit de fond seulement n'a été trouvée.

<sup>3</sup>Dans toute la suite de l'analyse, nous appellerons rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  le rapport  $\frac{f_i}{b_i}$ , celui-ci étant facilement calculable à partir des spectres expérimentaux.



Coïncidence triple

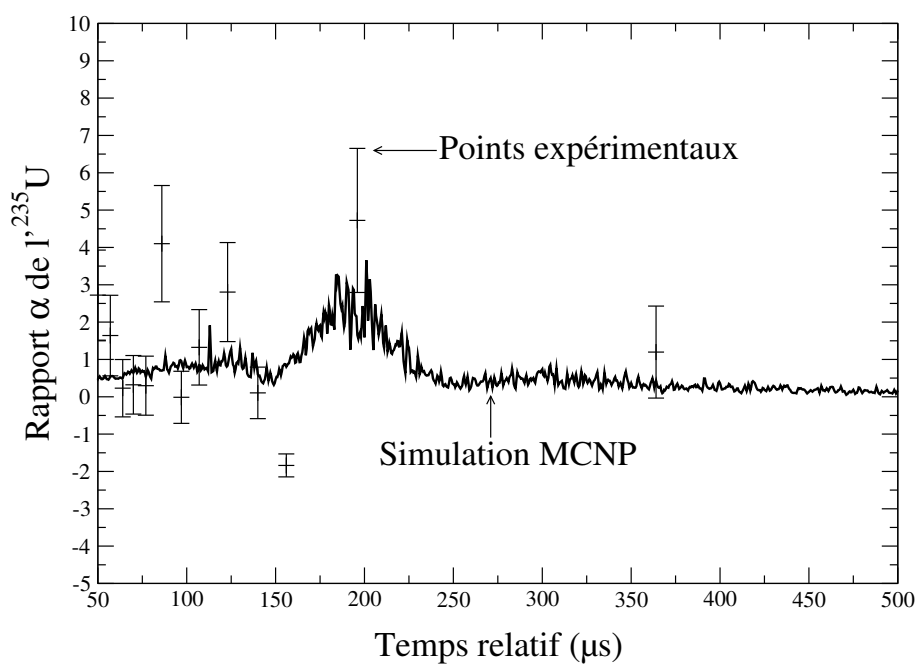


FIG. 8.18 – Comparaison du rapport  $\alpha$  de  $I'^{235}\text{U}$  obtenu expérimentalement avec celui obtenu par simulation MCNP, pour une coïncidence double (en haut) et triple (en bas). Les simulation MCNP, prenant en compte la composition exacte des cibles, utilisent les évaluations ENDF/B-VI.

## 8.5 Conclusion

La mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  est particulièrement remise en question à cause du terme  $\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i}$ , principal cause d'incertitude. Or, ce terme sera d'autant plus faible que le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}} = \frac{f_i}{b_i}$  sera élevé. Nous avons donc cherché à l'améliorer, en utilisant des scintillateurs 5 fois plus fins. La partie suivante va développer les résultats obtenus lors de ce changement de dispositif expérimental.

## 8.6 Rapport signal sur bruit

Cette section est consacrée à l'étude du rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ , et tout particulièrement à l'amélioration de ce terme lors du passage du dispositif contenant des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur à celui contenant les scintillateurs de 2 mm.

Nous avons déterminé le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  obtenu expérimentalement. Comme nous ne connaissons pas l'efficacité de détection dans la chambre à fission, nous simplifions en considérant le rapport signal sur bruit égal au rapport des événements de fission sur le bruit de fond normalisé. Les valeurs obtenues sont résumées dans le tableau 8.10. Le rapport signal sur bruit est très faible : 0.115 au mieux en coïncidence triple.

Le rapport signal sur bruit est amélioré par le passage de scintillateurs de 10 mm à 2 mm. Cependant, l'amélioration reste assez faible : 50 % en coïncidence double et 80 % en coïncidence triple. Ceci sera expliqué dans le chapitre 9, dédié à la compréhension des différentes contributions constituant le bruit du fond.

### 8.6.0.1 Variation du taux de comptage et du rapport signal sur bruit en fonction du taux de coïncidence

La mise en place de la coïncidence améliore le rapport signal sur bruit. En effet, la seule mise en coïncidence double l'améliore d'un facteur 5 par rapport à la mesure sans coïncidence imposée. La coïncidence triple (resp. quadruple) augmente le rapport signal sur bruit d'un facteur 20 (resp. 60). Par contre, plus nous imposons un taux de coïncidence élevé, plus le taux de comptage diminue (cf figure 8.19). En coïncidence double, le taux de comptage a déjà été divisé par un facteur 7 par rapport à la mesure sans coïncidence. En coïncidence triple (resp. quadruple), le taux de comptage est divisé par un facteur 80 (resp. 1300) par rapport à la mesure sans coïncidence.

Les résultats montrés sont ceux obtenus avec des scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur. Pour des scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur, les résultats sont similaires (cf tableau 8.11). Le taux de comptage diminue donc beaucoup plus rapidement que le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  est amélioré. Nous avons calculé l'amélioration globale. Celle-ci est égale à l'amélioration du rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  divisée par la racine de la dégradation du taux de comptage. Ainsi, nous pouvons conclure que la mise en place d'une coïncidence triple est le meilleur compromis. Cependant, comme l'amélioration en coïncidence double est

quasiment similaire à celle apportée par la coïncidence triple, nous nous intéressons aussi bien aux spectres en coïncidence double, que triple, lors de l'analyse.

Coïncidence imposée	Plage en temps ( $\mu\text{s}$ )	Scintillateurs de 10 mm	Scintillateurs de 2 mm	Passage de 10 mm à 2 mm
		Rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$	Rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$	Amélioration du rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ (10 mm $\rightarrow$ 2 mm)
1	50 - 100	1.03e-02	1.24e-02	1.18
	100 - 200	5.12e-03	5.95e-03	1.16
	200 - 500	2.47e-03	3.02e-03	1.22
	500 - 1500	5.17e-03	6.95e-03	1.34
	<u>50 - 1500</u>	<u>4.78e-03</u>	<u>6.24e-03</u>	<u>1.31</u>
2	50 - 100	4.12e-02	6.31e-02	1.53
	100 - 200	2.25e-02	3.17e-02	1.41
	200 - 500	1.08e-02	1.65e-02	1.54
	500 - 1500	1.79e-02	3.45e-02	1.93
	<u>50 - 1500</u>	<u>1.75e-02</u>	<u>3.15e-02</u>	<u>1.80</u>
3	50 - 100	1.34e-01	2.39e-01	1.78
	100 - 200	8.20e-02	1.33e-01	1.62
	200 - 500	3.89e-02	7.17e-02	1.85
	500 - 1500	5.97e-02	1.11e-01	1.86
	<u>50 - 1500</u>	<u>5.94e-02</u>	<u>1.09e-01</u>	<u>1.83</u>

TAB. 8.10 – Rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  en fonction de l'épaisseur des scintillateurs YAP, du taux de coïncidence imposé, et de la plage en temps considérée.

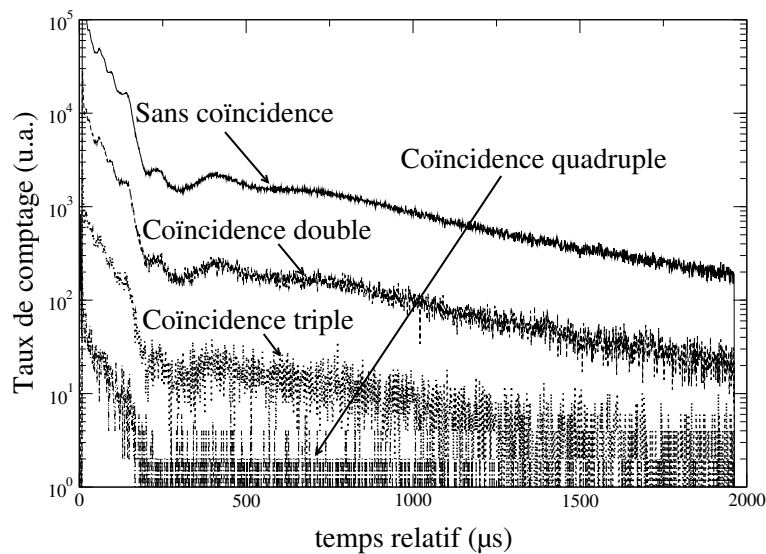


FIG. 8.19 – Spectre en temps relatif de la fission dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur, en fonction de la coïncidence.

Scintillateurs de 10 mm			
Coïncidence imposée	Amélioration du rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$	Dégradation du taux de comptage	Amélioration globale
1	1	1	1
2	4.5	7	1.70
3	17	86	1.83
4	74	1500	1.91

Scintillateurs de 2 mm			
Coïncidence imposée	Amélioration du rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$	Dégradation du taux de comptage	Amélioration globale
1	1	1	1
2	5.2	7	1.96
3	20	79	2.25
4	57	1350	1.55

TAB. 8.11 – Comparaison des caractéristiques en fonction de la coïncidence imposée, pour les scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur en haut, et ceux de 2 mm d'épaisseur en bas.

### 8.6.0.2 Variation du taux de comptage pour les scintillateurs pris 2 à 2, en fonction des positions des scintillateurs

La forme des scintillateurs YAP influe les spectres. En effet, le taux de comptage en coïncidence au moins double varie en fonction des scintillateurs choisis pour effectuer la coïncidence. La figure 8.20 rappelle la disposition des 8 scintillateurs YAP. Nous pouvons considérer 5 cas différents :

- ff : scintillateurs Face à Face (exemple : YAP5, YAP4)
- fc : scintillateurs n'appartenant pas au même dispositif expérimental (en Face) et de Côté (exemple : YAP5, YAP3)
- cc : scintillateurs appartenant au même dispositif expérimental et Côte à Côte (exemple : YAP5, YAP6)
- d : scintillateurs appartenant au même dispositif expérimental et placés en Diagonale (exemple : YAP5, YAP7)
- fd : scintillateurs n'appartenant pas au même dispositif expérimental (en Face) et placés en Diagonale (exemple : YAP5, YAP2)

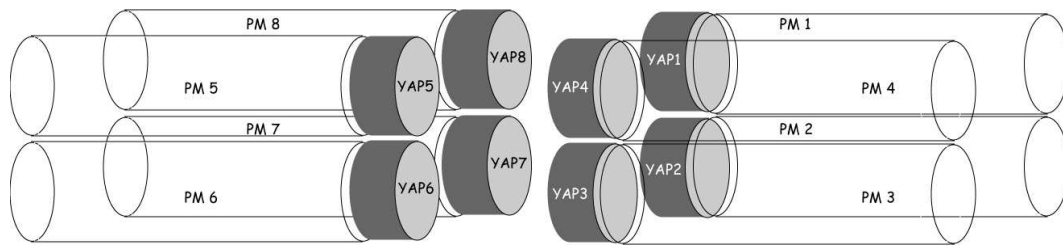


FIG. 8.20 – Position des différents scintillateurs.

### Cas des scintillateurs de 10 mm

Dans le cas de scintillateurs de 10 mm d'épaisseur et de rayon, la variation du taux de comptage en coïncidence au moins double en fonction des scintillateurs choisis pour effectuer la coïncidence n'est pas mise en évidence expérimentalement. La figure 8.21 nous montre le taux de comptage d'un scintillateur en coïncidence avec chacun de ses voisins. Ceci est attendu : ces scintillateurs sont aussi hauts que larges. Il est normal qu'il n'y ait pas de direction particulière privilégiée. Les seules différences sont dues aux distances entre les scintillateurs YAP considérés.

### Cas des scintillateurs de 2 mm

Dans le cas de scintillateurs de 2 mm d'épaisseur et de 10 mm de rayon, la variation du taux de comptage en coïncidence au moins double en fonction des scintillateurs choisis pour effectuer la coïncidence est mise en évidence expérimentalement. La figure 8.22 nous montre le taux de comptage d'un scintillateur en coïncidence avec chacun de ses voisins. Les résultats sont parfaitement attendus : le taux de coïncidence entre des scintillateurs situés face à face est très important tout comme celui des scintillateurs situés côte à côte. Les autres cas, ont des taux de comptage plus faibles. Le cas le plus pénalisant correspond à la coïncidence entre des scintillateurs appartenant à deux dispositifs de détection et situés en diagonale (cas fd). Nous mesurons un rapport de 2.75 entre le cas le plus favorable et le cas le plus pénalisant.

Nous pouvons nous interroger sur l'apport réel entre les spectres en coïncidence double et en coïncidence dans le cas ff seulement : le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  est amélioré de 10 % lorsque l'on utilise les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur.

## 8.6.1 Conclusion

Dans l'équation 7.8, la dernière source d'erreur peut être assimilée à l'erreur sur la normalisation, multipliée par le terme de normalisation (proche de 1) et par l'inverse du rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ . Toutefois, malgré nos efforts pour améliorer le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ , il reste très faible. Il est égal dans le meilleur des cas (scintillateurs de 2 mm d'épaisseur, coïncidence triple) à 0.109. L'erreur sur la normalisation est donc augmentée d'un facteur 9.2. Si la normalisation est connue à 1 % près, alors le rapport  $\alpha$  ne

pourra pas être connu à mieux de 9.2 %.

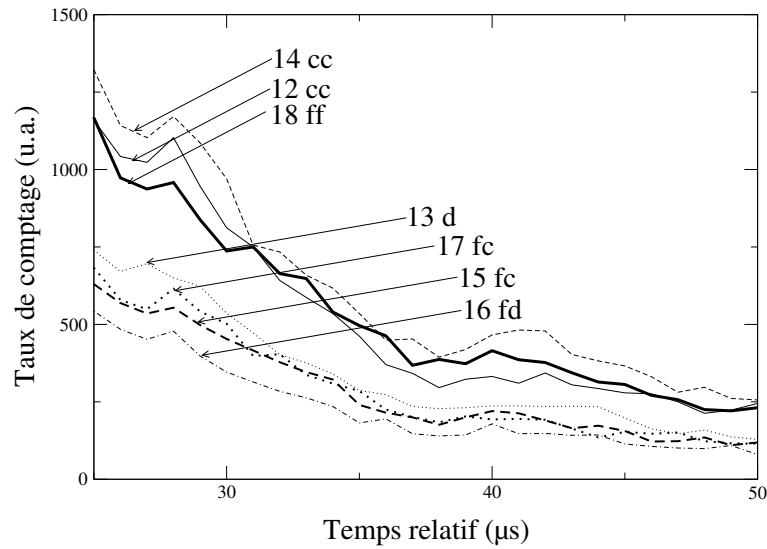


FIG. 8.21 – Spectre en temps relatif du YAP1 en coïncidence ( $\geq 2$ ) avec le YAP n°2 à 8, pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur.

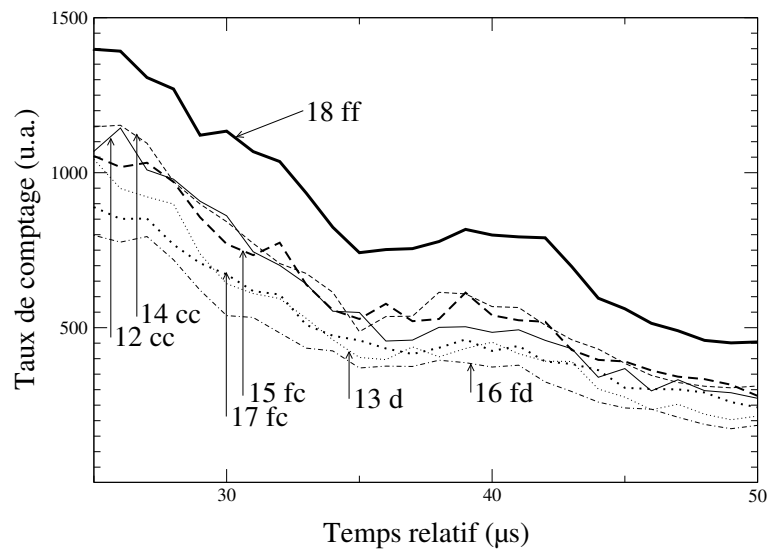


FIG. 8.22 – Spectre en temps relatif du YAP1 en coïncidence ( $\geq 2$ ) avec le YAP n°2 à 8, pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur.

Le problème du temps de comptage devient véritablement important : pour une mesure en coïncidence double et effectuée avec les premiers scintillateurs utilisés (10 mm), nous obtenons un rapport signal sur bruit de l'ordre de 3.1 %. Afin d'obtenir un signal statistiquement viable, nous avons pris des données plus de 15 jours d'affilée, soit un total d'environ 104 heures de comptage de signal et quelques heures de comptage pour la mesure de l'activation, des T0, etc. Pour obtenir autant

de statistiques pour le bruit de fond ( $N$  proche de 1), il est nécessaire d'obtenir aussi une centaine d'heures de comptage. En d'autres termes, la mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  s'effectue en un bon mois de comptage. Cela nous a permis d'obtenir sur la plage en énergie [5e-2 eV ; 700 eV], un total de 783 600 fissions détectés en coïncidence double dans les scintillateurs ce qui donne une erreur statistique moyenne de 0.11 %. Cependant, la plage en temps relatif pour laquelle les spectres sont véritablement pertinents est de [50  $\mu\text{s}$  ; 500  $\mu\text{s}$ ], soit en énergie [0.67 eV ; 66 eV]. Sur cette plage, nous comptons seulement 401 100 fissions en coïncidence double dans les scintillateurs, ce qui donne une erreur statistique moyenne de 0.16 %. Pour conclure, le faible taux de comptage et le mauvais rapport signal sur bruit nous conduit à des temps de comptage extrêmement longs.

Enfin, j'aimerais souligner que, pour un même rapport signal sur bruit entre  $^{235}\text{U}$  et  $^{233}\text{U}$ , pour une coïncidence donnée, le rapport  $\frac{b_i}{c_i}$  est environ 5 fois plus grand pour  $^{233}\text{U}$ . La mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  sera donc encore plus sensible à la normalisation.

La mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  est particulièrement remise en question à cause du rapport signal sur bruit. Nous avons focalisé notre analyse sur ce problème. Le chapitre suivant détaille toute les études effectuées pour mieux comprendre les différentes contributions du bruit de fond. Seule la compréhension fine de ce bruit nous permettra de modifier le dispositif afin de pouvoir mesurer le rapport  $\alpha$  avec la précision souhaitée.





# Chapitre 9

## Etude du bruit de fond

Nous avons vu dans les chapitres précédents que la difficulté d'extraire le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  de nos mesures provient du faible rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ . Afin de mieux comprendre et d'estimer quantitativement les contributions du bruit de fond, nous avons effectué diverses mesures supplémentaires. La première partie de ce chapitre est dédiée à ces mesures expérimentales. La deuxième partie de ce chapitre détaille les résultats des simulations concernant les différentes contributions du bruit de fond, que nous avons confrontés aux résultats expérimentaux.

### 9.1 Etude expérimentale du bruit de fond

#### 9.1.1 Description des différentes expériences

Plusieurs expériences dans des configurations différentes ont été effectuées dans le but de comprendre et de quantifier les différentes contributions du bruit de fond. Nous avons récapitulé ces différentes mesures dans le tableau 9.1. Nous pouvons faire quelques commentaires supplémentaires sur ces différentes mesures :

- Les valeurs des seuils des discriminateurs ne sont qu'indicatives. Elles ont été choisies de façon à couper ou pas le pic des photons gamma de l' $^{235}\text{U}$  situés à 186 keV. Les valeurs des seuils sont identiques pour les configurations B et C. Il en est de même pour les configurations D et E. Cependant, ces valeurs ne sont pas rigoureusement identiques entre les configurations A et D.
- Lorsque le système de détection est situé en dehors du bloc de plomb, il est exactement parallèle à sa position dans le bloc mais placé à 60 cm de celui-ci et centré par rapport au bloc de plomb (cf figure 9.1).
- Dans la configuration E, c'est le deuxième dispositif (scintillateur 5 à 8) qui a été enlevé.

L'expérience A correspond à la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  dans la configuration initiale. Lors de cette mesure, nous nous sommes aperçu que le rapport signal sur bruit, pris ici comme étant le signal de fission sur le bruit de fond, est de l'ordre de 1/500. Le bruit de fond est donc très largement

prépondérant. Nous l'avons donc particulièrement étudié. Pour cela, nous avons effectué les mesures B, C, D et E afin de bien comprendre les différentes contributions du bruit de fond.

La mesure B nous permet de mieux estimer la contribution provenant des scintillateurs YAP. Comme les valeurs des seuils des discriminateurs n'étaient pas identiques entre les mesures A et B, deux paramètres entrent en jeu dans l'analyse : la valeur des seuils et l'épaisseur des scintillateurs.

La mesure D permet de dissocier ces deux paramètres. La configuration de la mesure D est identique à celle de la mesure A, hormis l'épaisseur des scintillateurs.

La mesure C, effectuée en dehors du bloc de plomb, permet de limiter le bruit de fond provenant du plomb et donc par comparaison de mieux quantifier son importance.

Enfin, la mesure E permet de quantifier le bruit de fond provenant d'un dispositif de détection contenant 4 scintillateurs YAP. Elle permet de confirmer les résultats obtenus avec les mesures précédentes.

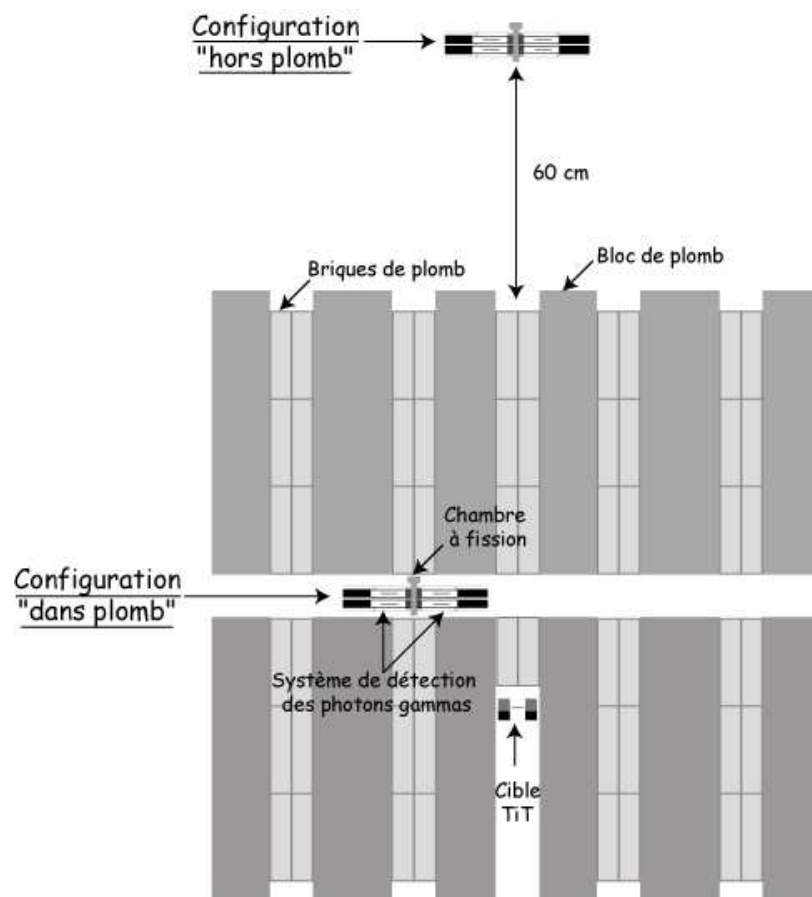


FIG. 9.1 – Schéma du dispositif expérimental : positions du système de détection dans les deux configurations “dans plomb” et “hors plomb”.

Le problème majeur de l'analyse de ces mesures est que, à chaque changement de configuration, de très nombreux paramètres changent. En effet, le flux de neutrons varie et donc le taux de capture

et de fission sur les différents éléments aussi. La quantité de matière présente n'est pas systématiquement la même. L'efficacité de détection diffère selon la configuration : il dépend de l'épaisseur des scintillateurs, de la présence ou non de certains éléments (enlever un demi-système de détection nous prive d'un certain nombre d'événements de diaphonie par exemple) ou encore de la configuration géométrique. Prenons par exemple le cas assez simple où seule l'épaisseur des scintillateurs a été changée de 10 mm à 2 mm. Le bruit de fond provenant du plomb, ainsi que celui provenant des scintillateurs, est diminué du fait des changements d'efficacité de détection. De plus, le bruit de fond provenant des scintillateurs est réduit de la quantité de matière présente, ainsi que de la diminution d'aluminium composant le dispositif maintenant les scintillateurs en place.

Plusieurs mesures ont été effectuées afin de confirmer les conclusions de chacune d'elles concernant les différentes contributions du bruit de fond. Toutes les analyses des mesures, bien que très dépendantes des simulations, doivent être parfaitement cohérentes entre elles. De plus, la dernière mesure (E) peut s'interpréter sans l'apport de données simulées ce qui confirmera définitivement nos résultats.

Configuration	Epaisseur des scintillateurs YAP	Position du système de détection	valeur des seuils des discriminateurs	Nombre de scintillateurs YAP
A	10 mm	dans plomb	300 keV	8
B	2 mm	dans plomb	80 keV	8
C	2 mm	hors plomb	80 keV	8
D	2 mm	dans plomb	300 keV	8
E	2 mm	dans plomb	300 keV	4

TAB. 9.1 – Récapitulatif des différentes mesures effectuées.

Les spectres en temps relatif dans les scintillateurs en fonction du taux de coïncidence imposé et en fonction de l'épaisseur des scintillateurs sont représentés sur la figure 9.2. Nous constatons qu'il existe une résonance autour de  $90 \mu\text{s}$  (soit 20 eV) dont l'amplitude augmente avec le taux de coïncidence et l'épaisseur du scintillateur. Nous pouvons donc conclure qu'elle provient d'un élément présent dans les scintillateurs YAP. L'aluminium, l'oxygène et l'yttrium ne présentent pas de résonance à cette énergie. Par contre, nous savons que les scintillateurs YAP sont dopés au cérium. Il est probable que cette résonance provienne de cet élément, bien que nous ne puissions l'affirmer définitivement puisque les sections efficaces de capture des différents isotopes du cérium, représentées sur la figure 9.3, sont très mal connues pour certains isotopes. C'est le cas des isotopes  $^{137}\text{Ce}$  et  $^{143}\text{Ce}$ .

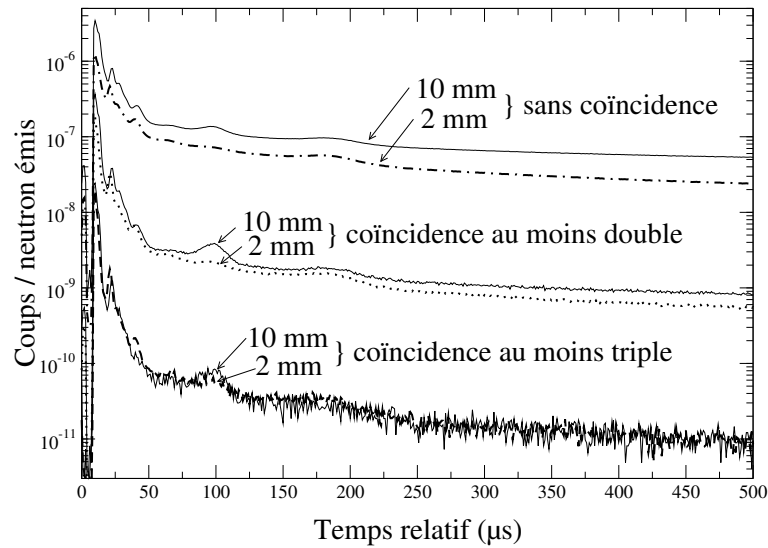


FIG. 9.2 – Spectre en temps relatif dans les scintillateurs en fonction du taux de coïncidence imposé et en fonction de l'épaisseur des scintillateurs.

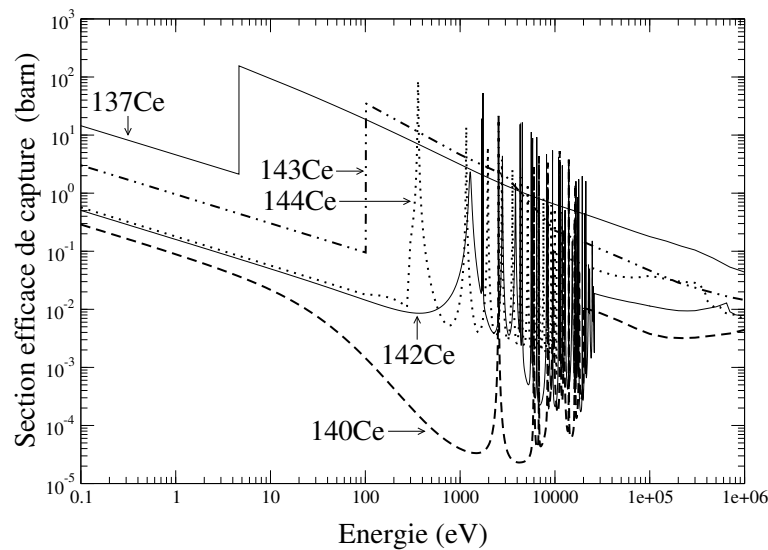


FIG. 9.3 – Sections efficaces de captures radiatives des différents isotopes du cérium.

### 9.1.1.1 Mesure en dehors du bloc de plomb : fission thermique

Nous comparons les spectres obtenus lorsque le dispositif expérimental est placé à l'extérieur ou à l'intérieur du bloc de plomb (cf figure 9.5). Le flux en dehors du bloc de plomb est plus faible et beaucoup plus thermalisé. Nous remarquons très clairement que le pic situé à  $185 \mu\text{s}$  ( $5.2 \text{ eV}$ ), correspondant à la résonance de l'argent, n'est plus présent sur le spectre de signal lorsque le dispositif est placé en dehors du bloc, ce qui est tout-à-fait cohérent. Nous assimilerons le rapport signal sur bruit au rapport du nombre d'événements de fission sur ceux de bruit de fond. Nous pouvons alors

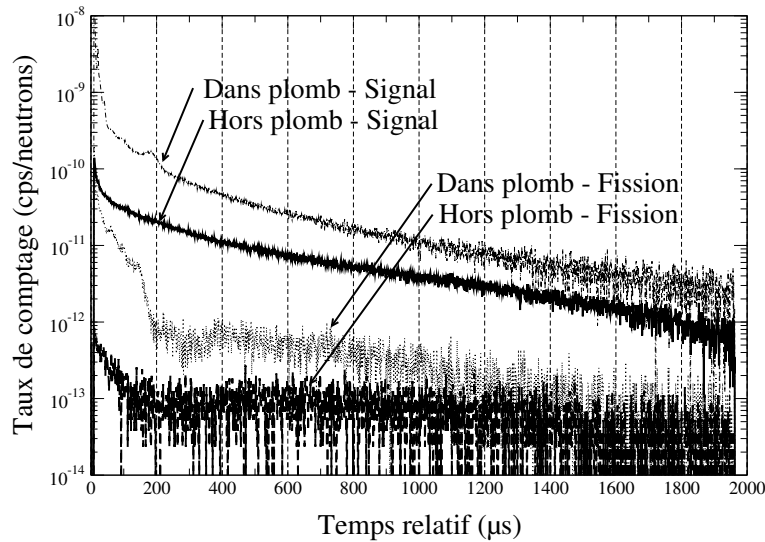


FIG. 9.4 – Spectres en temps relatif des 8 scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur en coïncidence double pour le signal (mesure avec les cibles d' $^{235}\text{U}$ ) et la fission, lorsque le dispositif expérimental est dans le bloc de plomb ou à l'extérieur.

vérifier que le rapport signal sur bruit en thermique est similaire que l'on soit dans le bloc de plomb ou en dehors. Ceci est compréhensible : le flux de neutrons thermiques est similaire dans le bloc et à l'extérieur du bloc de plomb. Par contre, le flux de neutrons épithermiques et rapides est beaucoup plus important dans le bloc qu'à l'extérieur : pour des temps relatifs inférieurs à  $200\ \mu\text{s}$ , soit 4 eV, la proportion des événements de fission par rapport aux événements de signal peut être jusqu'à 6 fois plus élevée que dans le cas en dehors du bloc de plomb.

### 9.1.2 Analyse individuelle des expériences : quantification expérimentales du bruit de fond provenant des captures sur les éléments du dispositif

Il existe de très nombreuses sources de bruit fond dans cette expérience, dont deux principales, de types très différents :

- Un bruit de fond provenant de l'activation elle-même : décroissance des éléments alors créés. Ce bruit de fond blanc présente un taux de comptage variable au cours du temps (cf chapitre 7, section 7.1.2).
- Un bruit de fond provenant des réactions promptes créant l'élément isotopique radioactif. Ce bruit de fond est fonction de l'énergie du neutron incident donc du temps relatif car il est lié au burst, mais il est indépendant du temps d'acquisition.

Dans cette partie, nous allons nous pencher tout particulièrement sur le bruit de fond de photons gamma le plus pénalisant, c'est-à-dire celui provenant des captures sur les éléments du dispositif expérimental : le bloc de plomb, les scintillateurs eux-mêmes, l'aluminium et le dural composant la

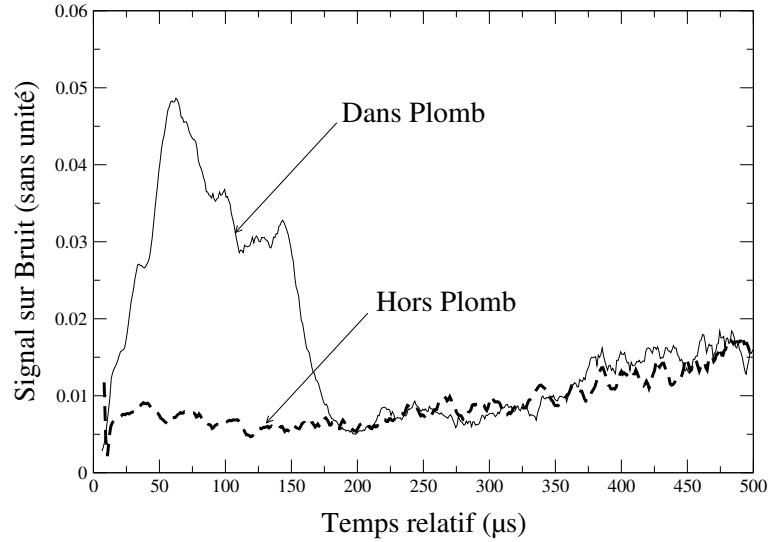


FIG. 9.5 – Comparaison des rapports entre le spectre de fission et celui de bruit de fond des 8 scintillateurs YAP de 2 mm d’épaisseur en coïncidence double, lorsque le dispositif expérimental est dans le bloc de plomb (courbe pleine) ou à l’extérieur (courbe pointillée).

structure des détecteurs, etc. Les autres sources de bruit de fond, comme l’activation ou les coïncidences fortuites ont été détaillées dans les chapitres précédents.

Grâce à la comparaison entre ces différentes mesures, nous pouvons estimer la part du bruit de fond provenant du bloc de plomb ainsi que celle provenant des scintillateurs YAP. Nous supposons dans un premier temps que le bruit de fond est constitué de ces deux contributions seulement (les autres étant négligeables en comparaison). Ainsi le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  peut s’écrire de façon générale :

$$\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right) = \frac{\epsilon^{fis} \cdot N_{235U}(\sigma\phi)_{235U}^{fis}}{\epsilon^{capt Pb} \cdot N_{Pb}(\sigma\phi)_{Pb}^{capt} + \epsilon^{capt YAP} \cdot N_{YAP}(\sigma\phi)_{YAP}^{capt}} \quad (9.1)$$

Pour comparer les résultats expérimentaux des différentes mesures, il faut prendre en compte toutes les modifications qui ont lieu, entre autres, la variation du flux (cf figure 9.6) ou d’efficacité de détection. Ces deux termes ne pourront pas être mesurés expérimentalement. Les variations de flux (respectivement d’efficacités) d’une configuration à l’autre seront calculées grâce à MCNP (respectivement GEANT4). Enfin, nous rappelons que, pour simplifier, nous avons nommé les expériences de A à E (cf tableau récapitulatif 9.1).

### 9.1.2.1 Comparaison des mesures A/D : changement de l’épaisseur des scintillateurs

On rappelle que, pour une coïncidence double et pour une plage en énergie de [0.7eV ; 260eV] soit en temps relatif [25µs ; 500µs], nous mesurons :

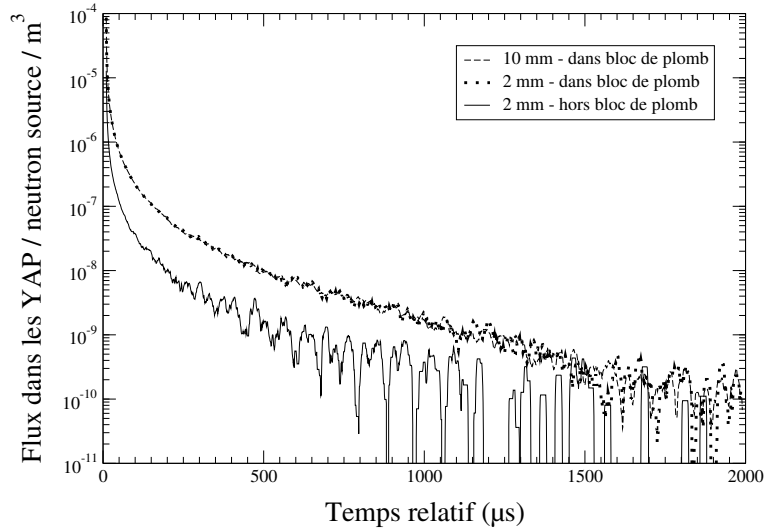


FIG. 9.6 – Flux dans les scintillateurs YAP en fonction du temps relatif pour les différentes configurations expérimentales.

$$\frac{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{2 \text{ mm}}}{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{10 \text{ mm}}} = 1.799$$

Or, nous pouvons écrire (cf formule générale 9.1) :

$$\frac{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{2 \text{ mm}}}{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{10 \text{ mm}}} = \frac{\varepsilon_{2 \text{ mm}}^{fis} N_{235U}(\sigma\phi)_{235U}^{fis}}{\varepsilon_{2 \text{ mm}}^{capt Pb} N_{Pb}(\sigma\phi)_{Pb}^{capt} + \varepsilon_{2 \text{ mm}}^{capt YAP} N_{YAP}(\sigma\phi)_{YAP}^{capt}} * \frac{\varepsilon_{10 \text{ mm}}^{capt Pb} N_{Pb}(\sigma\phi)_{Pb}^{capt} + \varepsilon_{10 \text{ mm}}^{capt YAP} N_{YAP}(\sigma\phi)_{YAP}^{capt}}{\varepsilon_{10 \text{ mm}}^{fis} N_{235U}(\sigma\phi)_{235U}^{fis}}$$

De plus, la simulation<sup>1</sup> nous donne :

$$\frac{\varepsilon_{2 \text{ mm}}^{capt Pb}}{\varepsilon_{10 \text{ mm}}^{capt Pb}} * \frac{(N(\sigma\phi)_{Pb}^{capt})_{2 \text{ mm}}}{(N(\sigma\phi)_{Pb}^{capt})_{10 \text{ mm}}} = 0.08$$

<sup>1</sup>Les rapports d'efficacités sont calculés grâce à GEANT4, et ceux de taux de réaction, grâce à MCNP.



$$\frac{\varepsilon_{2\text{ mm}}^{\text{capt YAP}}}{\varepsilon_{10\text{ mm}}^{\text{capt YAP}}} = \frac{0.407e-2}{3.245e-2} = 0.125 \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}})_{2\text{ mm}}}{(N(\sigma\phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}})_{10\text{ mm}}} = 0.23$$

$$\frac{\varepsilon_{2\text{ mm}}^{\text{fis}}}{\varepsilon_{10\text{ mm}}^{\text{fis}}} = \frac{1.71724e-2}{0.1169} = 0.147 \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\phi)_{233\text{U}}^{\text{fis}})_{2\text{ mm}}}{(N(\sigma\phi)_{233\text{U}}^{\text{fis}})_{10\text{ mm}}} = 0.997$$

Nous pouvons donc en déduire une proportion relative du bruit de fond venant des scintillateurs YAP égale à 16.57%, pour des scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur, et à 15.98 %, pour le dispositif avec des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur.

### 9.1.2.2 Comparaison des mesures B/D : influence du changement des seuils des DFC

Expérimentalement, le rapport signal sur bruit pour la mesure B est égal à 1/8.64 tandis que celui pour la mesure D est de 1/7.77. Il diminue donc (facteur 0.9) lorsque l'on augmente les seuils.

Le changement de seuils n'influe que sur l'efficacité de détection des scintillateurs (de 2 mm d'épaisseur, ici). Nous pouvons estimer, grâce à GEANT4, la variation du rapport signal sur bruit en fonction du seuil imposé. Pour cela, nous calculons :

$$\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{\text{(seuil } E_s)} = \int_{E_s}^{15\text{ MeV}} \frac{\varepsilon_{2\text{ mm}}^{\text{fis}}(E)}{\varepsilon_{\text{YAP}}^{\text{capt}}(E) + \varepsilon_{\text{Pb}}^{\text{capt}}(E)}$$

Le choix de la borne supérieure est telle que tout le spectre en amplitude est pris en compte.

Nous obtenons alors une variation du rapport signal sur bruit de 0.82 en passant d'un seuil de 80 keV à 300 keV, ce qui est en accord avec le résultat expérimental.

### 9.1.2.3 Comparaison des mesures B/C : influence du bloc de plomb

L'interprétation est non triviale et nécessite obligatoirement l'aide de simulations. En effet, le flux de neutrons en dehors du plomb est beaucoup plus faible et surtout beaucoup plus thermalisé que dans le bloc de plomb. Seule l'efficacité de détection des photons gamma provenant des scintillateurs YAP et de la fission reste identique d'une mesure à l'autre, tous les autres paramètres variant.

Nous mesurons expérimentalement

$$\frac{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{\text{hors plomb}}}{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{\text{dans plomb}}} = 0.34$$

Or, nous pouvons écrire de façon générale (cf formule 9.1) :

$$0.34 = \frac{\varepsilon_{\text{hors plomb}}^{\text{fis}} N_{233\text{U}}(\sigma\phi)_{233\text{U}}^{\text{fis}}}{\varepsilon_{\text{hors plomb}}^{\text{capt Pb}} N_{\text{Pb}}(\sigma\phi)_{\text{Pb}}^{\text{capt}} + \varepsilon_{\text{hors plomb}}^{\text{capt YAP}} N_{\text{YAP}}(\sigma\phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}}}$$

$$* \frac{\varepsilon_{\text{dans plomb}}^{\text{capt Pb}} N_{\text{Pb}}(\sigma\Phi)_{\text{Pb}}^{\text{capt}} + \varepsilon_{\text{dans plomb}}^{\text{capt YAP}} N_{\text{YAP}}(\sigma\Phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}}}{\varepsilon_{\text{dans plomb}}^{\text{fis}} N_{233\text{U}}(\sigma\Phi)_{233\text{U}}^{\text{fis}}}$$

De plus, nous avons, grâce aux simulations et à deux hypothèses :

$$\frac{\varepsilon_{\text{hors plomb}}^{\text{capt Pb}}}{\varepsilon_{\text{dans plomb}}^{\text{capt Pb}}} = 0.27 \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\Phi)_{\text{Pb}}^{\text{capt}})_{\text{hors plomb}}}{(N(\sigma\Phi)_{\text{Pb}}^{\text{capt}})_{\text{dans plomb}}} = 0.11$$

$$\varepsilon_{\text{hors plomb}}^{\text{capt YAP}} = \varepsilon_{\text{dans plomb}}^{\text{capt YAP}} \quad (\text{hypothèse}) \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\Phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}})_{\text{hors plomb}}}{(N(\sigma\Phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}})_{\text{dans plomb}}} = 0.13$$

$$\varepsilon_{\text{hors plomb}}^{\text{fis}} = \varepsilon_{\text{dans plomb}}^{\text{fis}} \quad (\text{hypothèse}) \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\Phi)_{233\text{U}}^{\text{fis}})_{\text{hors plomb}}}{(N(\sigma\Phi)_{233\text{U}}^{\text{fis}})_{\text{dans plomb}}} = 1.47 \cdot 10^{-2}$$

Ceci nous mène à  $\frac{(\varepsilon N \sigma^{\text{capt}} \Phi)_{\text{dans plomb}}^{\text{YAP}}}{(\varepsilon N \sigma^{\text{capt}} \Phi)_{\text{dans plomb}}^{\text{Pb}}} = 0.156$ . Le bruit de fond provenant des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur représente 13.50 % du bruit de fond total, le bruit de fond venant du bloc de plomb représentant alors 86.50 %.

#### 9.1.2.4 Apport de la mesure E

Nous pouvons interpréter cette mesure de deux façons différentes. D'une part, nous faisons la même analyse que précédemment en utilisant le rapport des rapports signal sur bruit. L'analyse pourrait être assez complexe puisque le demi-système enlevé diminue le phénomène de diaphonie pour le bruit et pour le signal. Cependant, nous verrons dans la partie 9.2.3.2 que ce phénomène peut être négligé dans un premier temps.

D'autre part, nous évitons de faire appel aux simulations pour quantifier le bruit de fond provenant d'un demi-système de détection. En effet, nous pouvons simplement interpréter la mesure avec les deux systèmes de détection comme une mesure avec un élément de bruit supplémentaire par rapport à la mesure avec un seul dispositif. Dans ce cas, nous estimons la proportion d'événements provenant du deuxième dispositif de détection à 0.13 % seulement par rapport au nombre d'événements total.

Si l'on néglige les événements de signal, et que l'on suppose que le bruit de fond venant du deuxième dispositif de détection est égal à celui venant d'un système de détection utilisé comme tel (l'efficacité de détection devrait en effet varier un peu), ceci nous mène alors à  $\frac{(\varepsilon N \sigma^{\text{capt}} \Phi)_{\text{dans plomb}}^{\text{YAP}}}{(\varepsilon N \sigma^{\text{capt}} \Phi)_{\text{dans plomb}}^{\text{Pb}}} = 0.18$ . Le bruit de fond provenant des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur représente donc 15 % du bruit de fond total, le bruit de fond venant du bloc de plomb représentant alors 85 %.

Pour vérifier que les résultats donnés par les simulations sont corrects, nous pouvons faire un calcul différent et indépendant. Puisqu'il y a deux systèmes de détection en présence, nous pouvons

tracer les spectres en ne considérant que les données enregistrées par le premier système de détection, ce qui donne :

$$\frac{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{1 \text{ système}}}{\left(\frac{\text{signal de fission}}{\text{bruit de fond}}\right)_{2 \text{ systèmes}}} = 1.03$$

Or, nous pouvons écrire de façon générale (cf formule 9.1) :

$$1.03 = \frac{\varepsilon_{1 \text{ système}}^{fis} N_{233U}(\sigma\phi)_{233U}^{fis}}{\varepsilon_{1 \text{ système}}^{capt Pb} N_{Pb}(\sigma\phi)_{Pb}^{capt} + \varepsilon_{1 \text{ système}}^{capt YAP} N_{YAP}(\sigma\phi)_{YAP}^{capt}} * \frac{\varepsilon_{2 \text{ systèmes}}^{capt Pb} N_{Pb}(\sigma\phi)_{Pb}^{capt} + \varepsilon_{2 \text{ systèmes}}^{capt YAP} N_{YAP}(\sigma\phi)_{YAP}^{capt}}{\varepsilon_{2 \text{ systèmes}}^{fis} N_{233U}(\sigma\phi)_{233U}^{fis}}$$

Or, on sait grâce aux simulations MCNP et GEANT4 que :

$$\frac{\varepsilon_{1 \text{ système}}^{fis}}{\varepsilon_{2 \text{ systèmes}}^{fis}} = 0.99 \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\phi)_{233U}^{fis})_{1 \text{ système}}}{(N(\sigma\phi)_{233U}^{fis})_{2 \text{ systèmes}}} = 1.02$$

$$\frac{\varepsilon_{1 \text{ système}}^{capt YAP}}{\varepsilon_{2 \text{ systèmes}}^{capt YAP}} = 0.98 \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\phi)_{YAP}^{capt})_{1 \text{ système}}}{(N(\sigma\phi)_{YAP}^{capt})_{2 \text{ systèmes}}} = 0.84$$

$$\frac{\varepsilon_{1 \text{ système}}^{capt Pb}}{\varepsilon_{2 \text{ systèmes}}^{capt Pb}} = 0.98 \quad \text{et} \quad \frac{(N(\sigma\phi)_{Pb}^{capt})_{1 \text{ système}}}{(N(\sigma\phi)_{Pb}^{capt})_{2 \text{ systèmes}}} = 1.03$$

Ceci nous mène à  $\frac{(\varepsilon N \sigma_{capture} \phi)_{dans \text{ plomb}}^{YAP 2 \text{ mm}}}{(\varepsilon N \sigma_{capture} \phi)_{dans \text{ plomb}}^{Pb}} = 0.19$ . Le bruit de fond provenant des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur représente 16 % du bruit de fond total, le bruit de fond venant du bloc de plomb représentant alors 84 %.

## 9.2 Estimation des différentes contributions du bruit de fond par la simulation

Nous avons quantifié de façon expérimentale les différentes contributions du bruit de fond dans le paragraphe précédent. Dans cette partie, nous allons les estimer à l'aide de simulations uniquement. Puis, nous comparerons les différents résultats.

Nous ne pouvons évaluer qu'un certain type de bruit de fond : celui provenant des captures sur les éléments du dispositif expérimental : le bloc de plomb, les scintillateurs eux-mêmes, l'aluminium et le dural composant la structure des détecteurs, etc... La méthode mise en place dans une thèse précédente [36] pour reconstruire les spectres de bruit de fond n'est plus valable de part la mise en place de la détection en coïncidence. Nous avons pallié ce problème en couplant MCNP à GEANT4. Dans cette partie, nous allons détailler les résultats donnés par la simulation.

## 9.2.1 Bruit de fond provenant de la capture sur le bloc de plomb

Le premier point important est de connaître la quantité de plomb autour du dispositif qui induit du bruit de fond. En effet, les photons gamma ont un libre parcours moyen dans le plomb, par exemple, de 1.2 cm ( $E_\gamma = 1 \text{ MeV}$ ) ou de 2 cm ( $E_\gamma = 2 \text{ MeV}$ ). Les photons gamma émis dans le plomb à plusieurs dizaines de centimètre des détecteurs ne contribueront pas au bruit de fond dans ceux-ci. Il est donc capital de connaître l'épaisseur de plomb induisant du bruit de fond pour pouvoir estimer correctement l'importance de celui-ci.

Un premier calcul très simple nous permet d'estimer un premier ordre de grandeur de cette épaisseur. En effet, imaginons le cas d'une géométrie parfaitement sphérique avec un scintillateur au centre d'une coquille de plomb. Dans ce cas, nous pouvons résoudre de façon analytique le problème, si nous faisons l'hypothèse supplémentaire que le taux de capture est constant dans le plomb (hypothèse abusive dans la réalité). Nous en déduisons que l'intégrale du taux de comptage en fonction de l'épaisseur de plomb prise en compte tend vers une valeur constante. 99 % de cette constante est atteint pour une épaisseur de plomb de 10 cm.

Afin d'estimer beaucoup plus précisément la valeur de l'épaisseur de plomb, source de bruit de fond, nous procédons en deux étapes :

1. Nous avons tout d'abord calculé le taux de capture dans tout le bloc de plomb (utilisation de mesh-tally sous MCNP, cf chapitre 6, section 6.1.1.2) en le divisant en cellules de  $1 \text{ cm}^3$ . Nous pouvons alors en déduire le nombre de captures totales qui ont lieu dans le bloc de plomb en fonction de l'épaisseur de plomb prise en compte. Nous faisons ce calcul pour les deux dispositifs expérimentaux que nous avons utilisés c'est-à-dire, dans le premier cas, avec des scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur et, dans le deuxième cas, avec des scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur (cf figure 9.7). Nous pouvons alors calculer le taux de capture en fonction de l'épaisseur prise en compte, selon certaines directions (celles-ci sont données sur les figures précédentes). Notez que l'hypothèse effectuée dans le calcul analytique ( $\sigma^{capture}\phi = \text{constante}$ ) est évidemment fautive. Le flux, et donc le taux de capture, varie en fonction de la position dans le bloc de plomb. Le problème n'a pas de symétrie, dans la réalité.
2. Ensuite, grâce à GEANT4, nous pouvons calculer le taux de coïncidence provenant des captures sur le plomb. Nous connaissons ainsi le nombre d'événements vus dans les scintillateurs YAP par rapport au nombre de photons émis, en fonction de l'épaisseur prise en compte de celui-ci.

L'évaluation du bruit de fond provenant des photons gamma de capture sur le bloc de plomb est le résultat le plus délicat à obtenir. En effet, pour estimer le rapport signal sur bruit uniquement grâce aux simulations, nous allons comparer le nombre d'événements gamma détectés en coïncidence dans les scintillateurs provenant des différents éléments du dispositif expérimental (bloc de plomb, scin-

tillateurs YAP, etc). Or, en fonction de la quantité de plomb que l'on décide de prendre en compte, le nombre d'événements gammas provenant du bloc de plomb et détectés en coïncidence dans les scintillateurs varie énormément. Le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  est très dépendant de l'évaluation du bruit de fond provenant du plomb.

Nous pouvons déduire de la figure 9.8 que l'épaisseur du bloc de plomb ayant une réelle influence sur le dispositif de détection contenant les scintillateur de 2 mm d'épaisseur est d'une vingtaine de centimètres. 90 % des événements proviennent des 20 premiers centimètres. Nous trouvons des résultats similaires, quelle que soit la direction étudiée, pour le dispositif de détection contenant des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur.

Nous passons ensuite à l'estimation du bruit de fond global du bloc de plomb. Nous pouvons déduire de la figure 9.9 que l'épaisseur du bloc de plomb ayant une réelle influence sur le dispositif de détection contenant les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur est de la vingtaine de centimètres : 90 % des événements proviennent d'une épaisseur de plomb de 25 cm, sans coïncidence, et d'une épaisseur de 24 cm, en coïncidence double. Pour le dispositif de détection contenant des scintillateurs de 10 mm d'épaisseur, les épaisseurs à prendre en compte, en fonction du taux de coïncidence imposé, sont identiques.

Il ne faut pas oublier que, pour le plomb, nous ne pouvons parler qu'en efficacité "effective" puisque nous avons besoin d'intégrer sur un ensemble massif. Par la suite, je donnerai directement le nombre de captures détectées dans les scintillateurs YAP sur le nombre total de captures, ce terme ayant une réalité physique.

Remarque importante : une expérience (configuration C) a été effectuée avec le dispositif en dehors du bloc de plomb, ceci afin de mieux estimer la part du bruit de fond provenant du bloc de plomb. Dans ce cas, l'efficacité de détection du plomb est très diminuée. Par contre, remarquez que la quantité de plomb émettant des photons gamma pouvant être détectés (la "source" de photons gamma provenant du plomb) est beaucoup plus importante. La source correspond en effet à une quantité de plomb de 80 cm \* 80 cm \* 20 cm soit 128 000 cm<sup>3</sup>, à comparer aux 60 000 cm<sup>3</sup> dans le cas où le système de détection est situé dans le plomb.

## 9.2.2 Rapport signal sur bruit extrait des simulations

Les simulations vont nous permettre d'estimer le rapport signal sur bruit, via le calcul de l'importance des différentes contributions du bruit de fond. Dans un premier temps, nous nous intéressons uniquement à deux contributions : celle provenant des captures sur les éléments du bloc de plomb et celle provenant des captures sur les scintillateurs eux-mêmes. En effet, l'efficacité de détection des gammas provenant du bloc de plomb est très faible mais elle est compensée par le très grand nombre de captures dû à l'énorme quantité de matière mise en jeu. Les scintillateurs YAP émettent

peu de photons gamma par capture (peu de matière mise en jeu et section efficace égale voire plus faible pour les différents composants des scintillateurs par rapport au plomb). Par contre, l'efficacité de détection de ces photons gamma est très élevée, quelque soit le taux de coïncidence. Il paraît tout à fait naturel que les contributions au bruit de fond du plomb et des scintillateurs YAP soient les plus pénalisantes.

Le bruit de fond provenant des scintillateurs YAP avait été sous-estimé lors de la conception du dispositif expérimental. En effet, la section efficace de capture de l'yttrium est du même ordre de grandeur que celle du plomb. C'est donc lors de la compréhension de l'importance de ce bruit de fond après la première mesure, que nous avons décidé de changer de scintillateurs. Nous avons finalement choisi des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur au lieu de 10 mm.

Nous pouvons déduire des simulations, le rapport signal sur bruit, en négligeant ici la capture : MCNP nous indique que l'on a en moyenne  $2.266e-7$  fission par neutron source et  $0.920e-7$  capture par neutron source. De plus, GEANT4 nous indique que la probabilité pour qu'une fission (resp. une capture) venant d'une des deux cibles soit détectée en coïncidence double est de  $1.503e-2$  ( $1.03e-2$ ). Donc, nous détectons,  $3.41e-9$  fission et  $9.48e-10$  capture en coïncidence double. Or, le bruit de fond est de  $2.82e-7$  événement par neutron source.

Le tableau 9.2 (resp. 9.3) récapitule les valeurs obtenues pour les événements sans coïncidence (resp. en coïncidence double), grâce aux simulations uniquement. Les valeurs en coïncidence triple ne sont pas fournies puisqu'il est très difficile d'obtenir une statistique suffisante. Ces tableaux indiquent en fonction de la source de photons gamma, le nombre de photons émis par neutrons source et l'efficacité de détection dans les scintillateurs YAP. Ainsi, en multipliant ces deux termes, nous pouvons en déduire le nombre de photons détectés dans les scintillateurs YAP par neutron source. Les sources de photons étudiées sont celles de signal (capture et fission de  $^{235}\text{U}$ ) mais aussi celles de bruit de fond (capture sur les scintillateurs YAP ou sur le bloc de plomb). Nous pouvons alors estimer le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ , en fonction de l'épaisseur des scintillateurs et du taux de coïncidence. Le tableau 9.4 indique les valeurs obtenues. Le rapport signal sur bruit est estimé à 1.55 % pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur et à 0.87 % pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur.

La capture sur les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur est en moyenne de l'ordre de  $5.03e-7$  capture par neutron source et par  $\text{cm}^3$ , soit  $1.21e-5$  capture/neutron source. De plus, GEANT4 nous indique que la probabilité pour qu'une capture venant d'un scintillateur YAP soit détectée en coïncidence double est de  $4.05e-3$ . Donc, nous détectons,  $4.89e-8$  capture par neutron source en coïncidence double provenant de la capture sur les scintillateurs YAP. De plus, nous avons vu que le nombre de captures par neutron source en coïncidence double provenant de la capture sur les éléments du bloc de plomb est de  $2.33e-7$ . La proportion du bruit de fond provenant des scintillateurs YAP est donc estimée à 17.4 % et celle du bloc de plomb à 82.6 %. De même, pour les scintillateurs de 10 mm

d'épaisseur, le bruit de fond provenant des scintillateurs YAP est donc estimé à 16.71 % et celle du bloc de plomb à 83.29 %.

Résultat très surprenant : nous remarquons que la proportion du bruit de fond provenant des scintillateurs YAP par rapport au bruit de fond total est similaire pour les deux séries de scintillateurs utilisés. Or, nous avons décidé d'utiliser des scintillateurs 5 fois plus fins pour réduire ce bruit de fond. En effet, si l'on prend seulement en compte les termes  $N\sigma\phi$ , nous nous attendons à une diminution de cette contribution d'un facteur 5 (facteur 4.4, avec la variation de flux). Néanmoins, changer l'épaisseur des scintillateurs a aussi entraîné une modification des efficacités de détection. Cette modification n'est pas la même pour le bruit de fond provenant du plomb et pour celui provenant des scintillateurs. Ainsi, nous remarquons que, en coïncidence double et pour un même nombre d'événements de signal, le bruit de fond provenant des scintillateurs YAP a diminué d'un facteur 1.71 lors du passage des scintillateurs de 10 mm à 2 mm. Celui du plomb a diminué d'un facteur 1.79.

Le système de détection et la mise en place de la coïncidence ont été pensés de façon à maximiser le taux de comptage en coïncidence des photons gamma émis entre les scintillateurs YAP. De cette façon, on améliore le rapport signal sur bruit, uniquement si le bruit de fond provient du plomb ! Un tel dispositif améliore la détection du bruit de fond provenant des scintillateurs YAP. Nous le voyons de façon très claire lorsque nous comparons la contribution du bruit de fond provenant des scintillateurs YAP sur le bruit de fond total, en fonction du taux de coïncidence imposé entre les scintillateurs : elle passe de 5 % pour la détection d'un seul photon gamma, à 17 % en coïncidence double. Cependant, comme le bruit de fond provient essentiellement du plomb, la mise en place de la coïncidence reste donc une bonne solution pour améliorer le rapport signal sur bruit.

L'utilisation de scintillateurs 5 fois plus fins améliore donc le rapport signal sur bruit (facteur 1.77 en coïncidence double) mais pas pour les raisons prévues initialement ! La contribution du bruit de fond provenant des scintillateurs YAP sur le bruit de fond total n'a pas véritablement changé entre les deux configurations (il est même supérieur pour des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur, compte tenu des variations de toutes les efficacités de détection !). Par contre, utiliser des scintillateurs plus fins a permis de réduire les efficacités de détection provenant du bruit de fond, de façon plus importante que les efficacités de détection de la capture et de la fission de  $^{235}\text{U}$ . Plus les scintillateurs sont fins et plus nous ne prenons en compte que les événements très proches des détecteurs.

## 9.2.3 Effets fins

### 9.2.3.1 Influence du bloc de plomb sur le signal : effet Compton sur le plomb

Le phénomène de coïncidence et de diaphonie peut être augmenté de par la présence de matériaux très diffusants, comme par exemple le plomb, autour du dispositif de détection. Nous pouvons alors nous interroger sur l'importance qu'a le bloc de plomb sur le nombre d'événements de signaux détectés : en effet, des photons ayant déjà déposé de l'énergie dans un scintillateur peuvent, suite à un effet

Compton dans le plomb entourant le dispositif de détection, revenir dans un scintillateur et re-déposer de l'énergie. Pour voir cet effet de "diffusion" des événements de signal par le plomb, nous avons comparé deux simulations (mesure impossible dans la réalité) : une avec le bloc de plomb et une sans ce bloc.

La variation du taux de coïncidence double pour la fission en présence ou non de plomb ne varie pas puisque elle est inférieure aux erreurs statistiques. Pour la coïncidence triple, l'effet est légèrement plus marqué puisque le taux de coïncidence triple est de 0.064 % avec plomb et de 0.060 % sans plomb. La variation est de 6.3 %. Il y a donc un léger effet de diffusion, visible seulement pour la coïncidence triple, du fait de la présence du plomb.

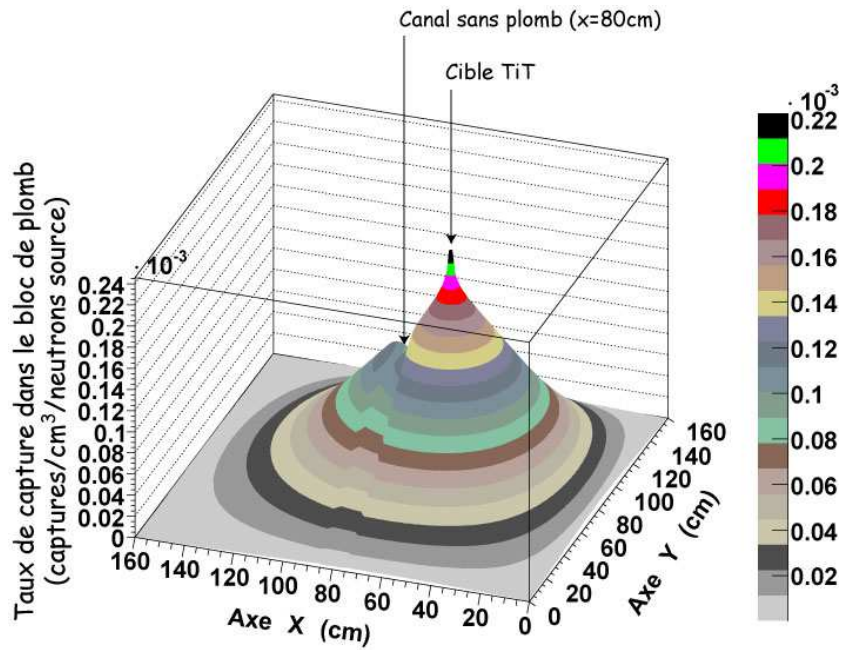
### **9.2.3.2 Influence d'un système de détection sur celui situé en face**

De même, nous pouvons aussi étudier l'influence d'un demi-système de détection vis-à-vis de l'autre système de détection. L'effet "diffuseur" de l'ensemble de détection situé en face est très faible pour les coïncidences simple et double. En effet, pour la coïncidence simple, l'écart est de 0.75 % (erreurs statistiques de 0.1 %) et pour la coïncidence double, l'écart est de 2.25 % (erreurs statistiques de 0.3 %). L'effet "diffuseur" de l'ensemble de détection situé en face peut donc être considéré comme négligeable dans un premier temps.

## **9.2.4 Conclusion**

Nous pouvons estimer, grâce aux simulations mises en place, que le rapport signal sur bruit est de l'ordre du pourcent, ce qui est extrêmement faible. L'utilisation de scintillateurs de 2 mm au lieu de 10 mm d'épaisseur a entraîné une amélioration du rapport signal sur bruit d'un facteur 1.78 seulement, cette amélioration provenant essentiellement de la réduction significative du bruit de fond provenant du plomb.





Taux de capture dans le bloc de plomb  
(captures/cm<sup>3</sup>/neutrons source)

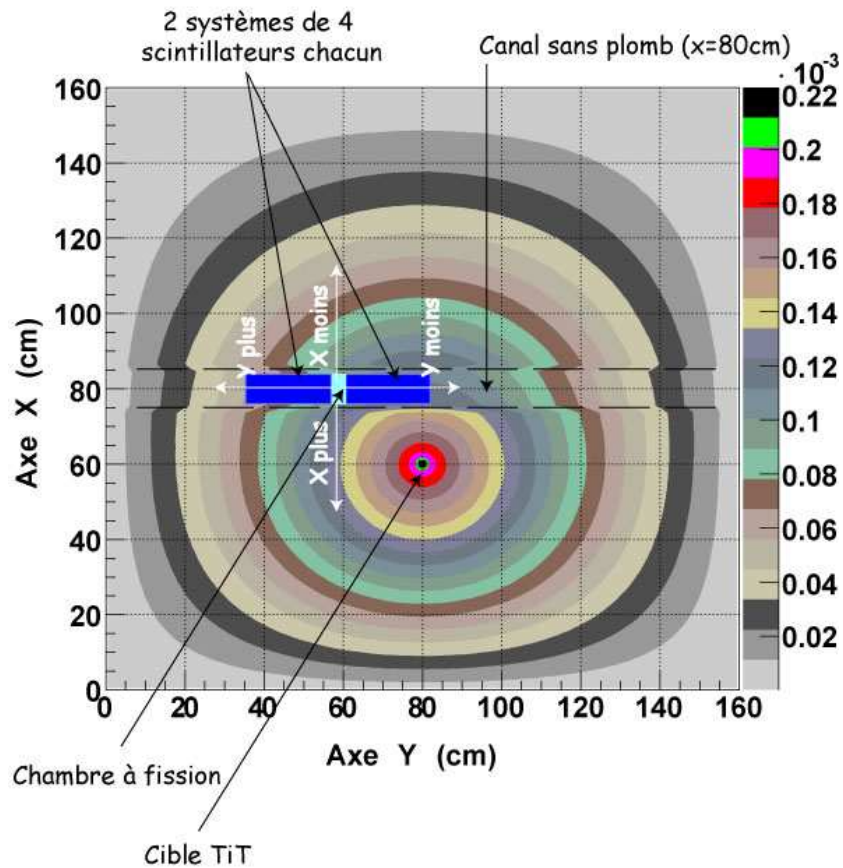


FIG. 9.7 – Taux de capture dans le bloc de plomb en fonction de la position X et Y, et intégré selon l'axe Z. Représentations en 3 dimensions (en haut) et en 2 dimensions (en bas).

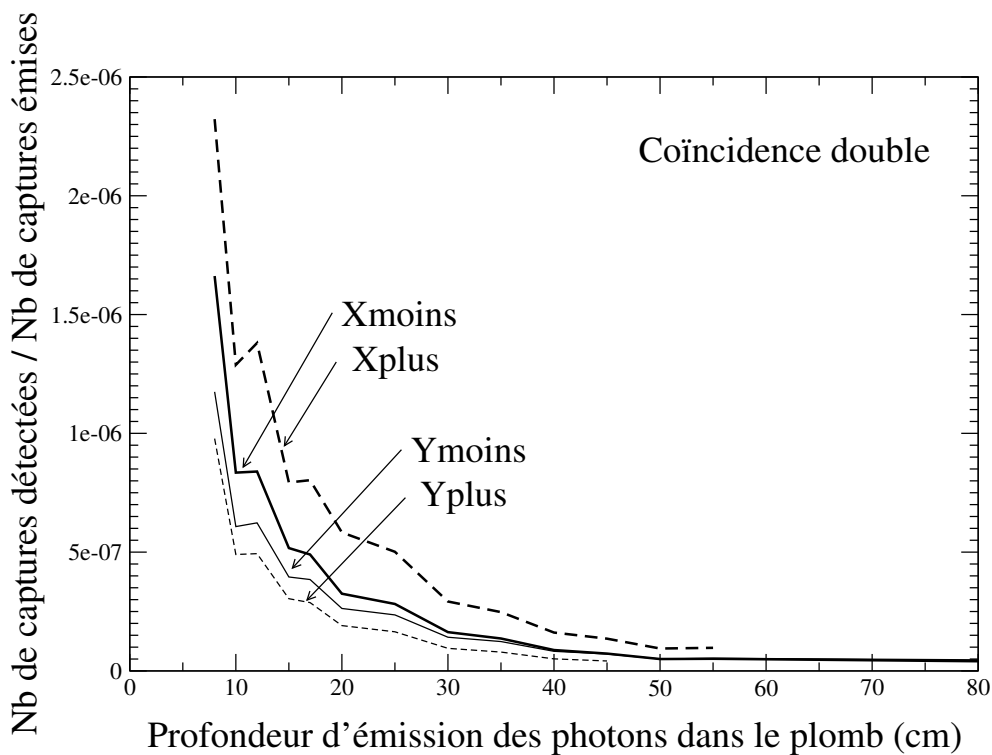
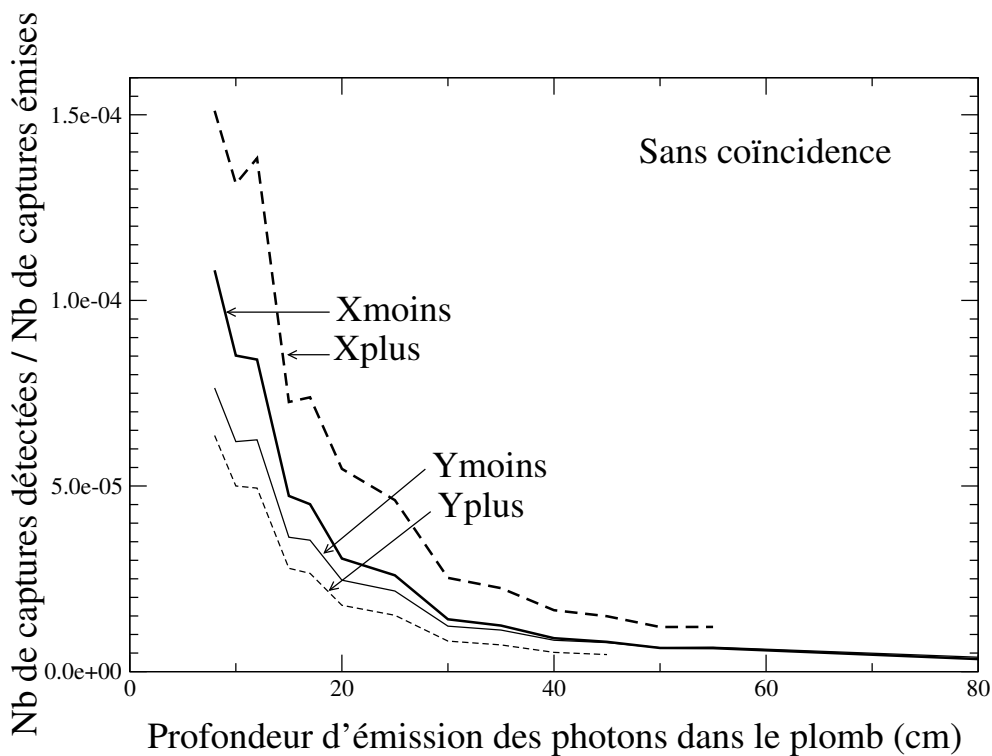


FIG. 9.8 – Nombre d'événements de capture attendus dans les détecteurs, dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur, par rapport au nombre d'événements de capture émis. Le résultat est représenté sans coïncidence imposée dans la figure du haut et en coïncidence double, dans la figure du bas. Ce taux est représenté selon les 2 directions X et Y prises en compte et en fonction de la profondeur de plomb prise en compte. Les axes X et Y sont représentés sur la figure 9.7.

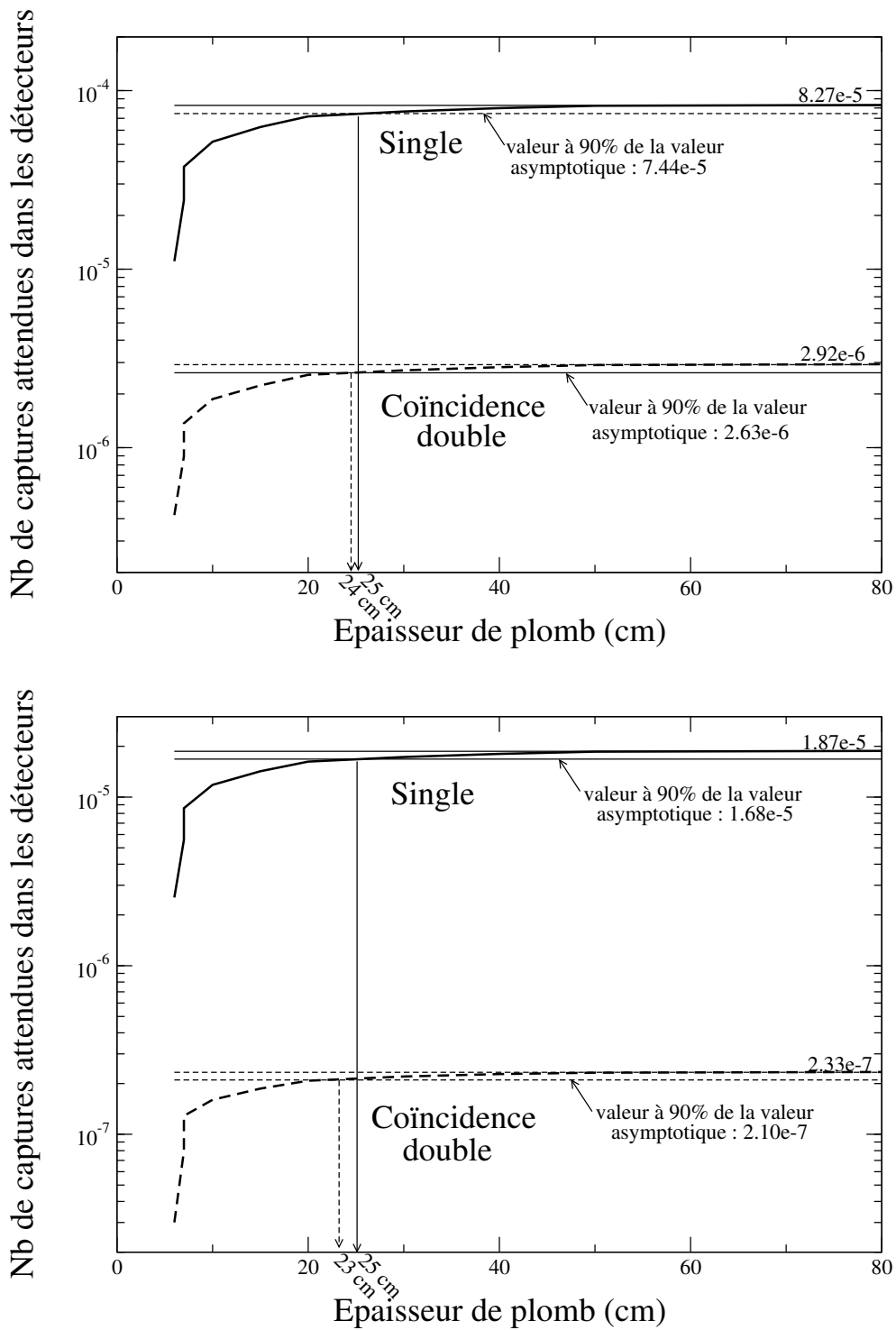


FIG. 9.9 – Nombre d'événements de capture détectés dans les scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur pour la figure du haut et de 2 mm d'épaisseur pour la figure du bas, sans coïncidence (courbe pleine) et en coïncidence double (courbe pointillée), par rapport au nombre d'événements de capture total émis dans le bloc de plomb.

**SANS COINCIDENCE**

<b>10 mm</b>	Sources de photons $\gamma$	Nombre de $\gamma$ émis par neutron source	Efficacité de détection totale	Nombre de $\gamma$ détectés dans les scintillateurs par neutron source
<b>SIGNAL</b>	Fission de l' $^{235}\text{U}$	2.2728e-7	0.3448	7.84e-8
	Capture de l' $^{235}\text{U}$	0.9238e-7	0.3136	2.90e-8
	Total			1.07e-7
<b>BRUIT</b>	Capture provenant des scintillateurs YAP	1.80513e-5	0.2494	4.50e-6
	Capture sur le bloc de plomb	—	—	8.27e-5
	Total			8.72e-5
<b>2 mm</b>	Sources de photons $\gamma$	Nombre de $\gamma$ émis par neutron source	Efficacité de détection totale	Nombre de $\gamma$ détectés dans les scintillateurs par neutron source
<b>SIGNAL</b>	Fission de l' $^{235}\text{U}$	2.266e-7	0.1704	3.86e-8
	Capture de l' $^{235}\text{U}$	0.920e-7	0.1419	1.31e-8
	Total			5.17e-8
<b>BRUIT</b>	Capture provenant des scintillateurs YAP	1.2067e-5	8.90e-2	1.07e-6
	Capture sur le bloc de plomb	—	—	1.87e-5
	Total			1.98e-5

TAB. 9.2 – Estimations en fonction de la source de photons gamma étudiée du nombre de photons détectés en single par rapport au nombre de neutron source, pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur (en haut) et de 2 mm d'épaisseur (en bas).

### COINCIDENCE DOUBLE

<b>10 mm</b>	Sources de photons $\gamma$	Nombre de $\gamma$ émis par neutron source	Efficacité de détection totale	Nombre de $\gamma$ détectés dans les scintillateurs par neutron source
<b>SIGNAL</b>	Fission de l' $^{235}\text{U}$	2.2728e-7	0.1041	2.37e-8
	Capture de l' $^{235}\text{U}$	0.9238e-7	0.0733	6.77e-9
	Total			3.05e-8
<b>BRUIT</b>	Capture provenant des scintillateurs YAP	1.80513e-5	0.03245	5.86e-7
	Capture sur le bloc de plomb	—	—	2.92e-6
	Total			3.51e-6
<b>2 mm</b>	Sources de photons $\gamma$	Nombre de $\gamma$ émis par neutron source	Efficacité de détection totale	Nombre de $\gamma$ détectés dans les scintillateurs par neutron source
<b>SIGNAL</b>	Fission de l' $^{235}\text{U}$	2.266e-7	0.0151	3.41e-9
	Capture de l' $^{235}\text{U}$	0.920e-7	0.0103	9.48e-10
	Total			4.36e-9
<b>BRUIT</b>	Capture provenant des scintillateurs YAP	1.2067e-5	4.05e-3	4.89e-8
	Capture sur le bloc de plomb	—	—	2.33e-7
	Total			2.82e-7

TAB. 9.3 – Estimations en fonction de la source de photons gamma étudiée du nombre de photons détectés en coïncidence double par rapport au nombre de neutron source, pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur (en haut) et de 2 mm d'épaisseur (en bas).

<b>10 mm</b>	Sans coïncidence	Coïncidence double
$\frac{\text{SIGNAL}}{\text{BRUIT}}$	1.23e-3 ( 1/810)	8.70e-3 (1/115)
$\frac{\text{Proportion}}{\text{bruit YAP}} / \frac{\text{bruit total}}{\text{bruit total}}$	5.16 %	16.71 %

<b>2 mm</b>	Sans coïncidence	Coïncidence double
$\frac{\text{SIGNAL}}{\text{BRUIT}}$	2.62e-3 (1/380)	1.55e-2 (1/65)
$\frac{\text{Proportion}}{\text{bruit YAP}} / \frac{\text{bruit total}}{\text{bruit total}}$	5.43 %	17.34 %

TAB. 9.4 – Estimations du rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  ainsi que de la proportion du bruit provenant des scintillateurs YAP seulement, pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur (en haut) et de 2 mm d'épaisseur (en bas). Les valeurs indiquées sont obtenues grâce aux simulations.

### 9.3 Conclusion

Le tableau 9.5 résume les valeurs obtenues dans l'ensemble de cette analyse portant sur les proportions des différentes contributions du bruit de fond pour les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur<sup>2</sup>. Pour conclure, nous pouvons dire que, dans le cas où les scintillateurs ont une épaisseur de 10 mm, le bruit de fond provenant de ces scintillateurs représente 40 % du bruit de fond total, le bloc de plomb représentant les 60 % restants. Si les scintillateurs ont une épaisseur cinq fois plus fine, le bruit de fond provenant de ces scintillateurs ne représente alors plus que 15 % du bruit de fond total, le bloc de plomb représentant les 85 % restants. L'utilisation de scintillateurs plus fins a bien augmenté le rapport signal sur bruit. Cependant, cette amélioration n'est pas suffisante pour pouvoir mesurer la section efficace de capture.

Malheureusement, les résultats issus des simulations, longues à mettre en place, sont arrivés en même temps que l'analyse des mesures. Nous n'avons pas pu les utiliser pour anticiper le problème du rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ . Par contre, nous pouvons conclure en soulignant que tous les résultats obtenus sont parfaitement cohérents entre eux. Malgré la très forte dépendance des résultats des simulations dans

<sup>2</sup>Nous n'avons pas précisé les valeurs pour 10 mm puisqu'elles se déduisent de celles de 2 mm grâce aux trois relations suivantes :  $\frac{\epsilon_{2\text{ mm}}^{\text{capt Pb}}}{\epsilon_{10\text{ mm}}^{\text{capt Pb}}} * \frac{(N(\sigma\Phi)_{\text{Pb}}^{\text{capt}})_{2\text{ mm}}}{(N(\sigma\Phi)_{\text{Pb}}^{\text{capt}})_{10\text{ mm}}} = 0.08$ ,  $\frac{(N(\sigma\Phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}})_{2\text{ mm}}}{(N(\sigma\Phi)_{\text{YAP}}^{\text{capt}})_{10\text{ mm}}} = 0.23$  et  $\frac{\epsilon_{2\text{ mm}}^{\text{capt YAP}}}{\epsilon_{10\text{ mm}}^{\text{capt YAP}}} = \frac{0.407e-2}{3.245e-2} = 0.125$ .

l'interprétation des données, nous pouvons être assez confiant : la grande quantité de mesures avec des configurations très différentes nous a permis de valider nos explications des différentes contributions du bruit de fond. Tous les phénomènes semblent parfaitement compris. Nous pouvons être confiants dans les résultats fournis par la méthode mise en place.

Pour conclure, l'analyse effectuée dans cette partie a permis de montrer que le bruit de fond est principalement dominé par les photons gammas provenant du plomb. L'utilisation de scintillateurs minces a permis d'améliorer le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  d'un facteur 1.79 en coïncidence double. Cependant, une telle amélioration est loin d'être suffisante pour la mesure du rapport  $\alpha$  d'un noyau fissile.

<b>2 mm</b>	Proportion du bruit de fond provenant des scintillateurs YAP	Proportion du bruit de fond provenant du bloc de plomb
A/D	16.6 %	83.4 %
B/C	13.5 %	86.5 %
E	15 %	85 %
Ebis	16 %	84 %
simulation	17 %	83 %

TAB. 9.5 – Résumé des différentes valeurs des contributions du bruit de fond pour le cas des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur, obtenues expérimentalement grâce à la comparaison des différentes mesures, ou obtenues grâce aux simulations.

# Chapitre 10

## Améliorations possibles du dispositif expérimental

L'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement présente l'avantage d'avoir un flux de neutrons assez important. Cependant, lors des différentes mesures, nous sommes amenés à conclure qu'un tel dispositif est source de nombreux bruits de fond, puisque sous flux de neutrons. La présence d'autant de matière proche des cibles induit un bruit de fond gamma qui noie le signal à mesurer.

Le tableau 10.1 résume les difficultés de cette mesure. La précision de la mesure ne réside pas seulement en la bonne connaissance de l'efficacité de détection de fission. En effet, nous avons vu que :

$$\frac{d\alpha_{exp}}{\alpha_{exp}} = \frac{d\epsilon_i^{fission\ 235U}}{\epsilon_i^{fission\ 235U}} + \frac{d\epsilon_i^{capture\ 235U}}{\epsilon_i^{capture\ 235U}} + \frac{d\epsilon_{CaF}}{\epsilon_{CaF}} + \frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$$

Le fait de ne pas pouvoir distinguer les événements de fond des événements de capture de l'uranium dans les scintillateurs YAP avec notre dispositif de détection rend alors la mesure de la capture particulièrement délicate : la faisabilité de la mesure devient dépendante de la précision du terme de normalisation et des différentes efficacités de détection difficilement mesurables. La principale amélioration à apporter consiste en l'augmentation du rapport  $\frac{signal}{bruit}$ , en diminuant fortement la contribution des photons provenant de la capture du plomb. Nous allons donc étudier dans cette partie les modifications possibles du système expérimental pouvant améliorer la précision de la mesure. De plus, nous estimerons, pour chacune de ces solutions, si elles sont suffisantes pour rendre la mesure faisable.

### 10.1 Détermination expérimentale de l'efficacité de détection de fission par une source de $^{252}\text{Cf}$

Nous pouvons utiliser une source pour calibrer l'efficacité de détection de la chambre à fission, autre que l' $^{235}\text{U}$  :  $^{252}\text{Cf}$ . Cette source présente l'avantage d'être une source de fission spontanée. Nous



Taux de coïncidence	1	2	3
Erreurs statistiques sur la fission pour la plage en temps [50 $\mu$ s , 500 $\mu$ s]	0.056 %	0.158 %	0.54 %
Erreurs statistiques sur $\beta_i$ pour la plage en temps [50 $\mu$ s , 500 $\mu$ s]	trop dépendant de N	0.50 %	7.5 %
Variation de l'efficacité de détection du bruit de fond à cause du décalage en X du dispositif	pas de variation	25 %	non accessible par simulation
Erreur minimale sur la normalisation N pour obtenir le rapport $\alpha$ à 5 % près	0.03 % impossible	0.015 % impossible	0.55 % faisable

TAB. 10.1 – Résumé des difficultés de la mesure de la section efficace de capture et donc du rapport  $\alpha$ , d'un élément fissile sur la plateforme PEREN. (cf chapitre 8, partie 8.3 pour la définition de  $\beta_i$ ).

n'avons pas besoin de faisceau de neutrons. Elle peut être très utile pour connaître l'efficacité de détection de la chambre à fission. Par contre, le  $^{252}\text{Cf}$  présente une activité de 20 MBq/ $\mu\text{g}$ . Fabriquer des cibles de ce matériau devient plus que difficile. De plus, il est hors de question d'utiliser 2 cibles de 7.5 mg comme celles d'uranium. Une cible de Cf déjà existante pourrait être utilisée. Les cibles à disposition ayant une surface sensible beaucoup plus faible que nos cibles, nous pourrions faire plusieurs mesures en déplaçant la cible dans la chambre à fission. Ainsi, nous pourrions estimer les effets de bords. Cependant, nous nous retrouverons face à la difficulté d'interpolation entre l'efficacité de détection de la fission d'une cible très mince de  $^{252}\text{Cf}$  à une cible plus épaisse d' $^{233}\text{U}$ . Par ailleurs, le californium est un noyau plus lourd. Nous pouvions supposer que les produits de fission de l' $^{235}\text{U}$  et de l' $^{233}\text{U}$  (noyaux, rendement et énergie) sont suffisamment proches pour supposer l'efficacité de détection de la fission dans la chambre à fission similaire pour les deux noyaux. Pour le  $^{252}\text{Cf}$ , cette hypothèse n'est plus valide. Il sera d'autant plus difficile d'interpoler l'efficacité mesurée avec les cibles de  $^{252}\text{Cf}$ .

## 10.2 Positionnement du rail de guidage

L'installation d'un rail de guidage des détecteurs dans le canal de plomb devait permettre une très bonne reproductibilité de l'expérience. Cependant, il s'est avéré que le dispositif n'a pas rigoureusement été placé au même endroit, selon l'axe du rail, puisqu'il s'est avéré que nous devons le retirer du bloc à chaque changement de dispositif expérimental. Or, ceci affecte grandement les efficacités de détection en coïncidence. Un système de cales permettant de supprimer le jeu selon cet axe serait une solution simple et efficace. Nous serions ainsi assurés d'avoir toujours les mêmes efficacités de détection en coïncidence provenant du bruit de fond dans les scintillateurs.

## 10.3 Utilisation de scintillateurs fins

Ce changement de dispositif a déjà été testé. Nous résumons ici les principales conclusions. L'utilisation de scintillateur fins (2 mm) a contribué à l'amélioration du rapport signal sur bruit d'un facteur 1.80 en coïncidence double. En effet, nous avons vu (cf chapitre 6) que l'efficacité de détection totale du bruit de fond provenant du plomb est grandement diminuée. Par contre, l'efficacité de détection de la diaphonie hors coïncidence, au contraire, subit une augmentation de 15 % lorsque l'on utilise des scintillateurs de 2 mm au lieu de ceux de 10 mm d'épaisseur. De plus, de façon plus anecdotique, l'utilisation de scintillateurs de 2 mm a permis de diminuer le bruit de fond provenant de la diaphonie. En effet, la diaphonie est estimée à 2.34 % pour les scintillateurs de 10 mm d'épaisseur et seulement à 0.83 % pour les scintillateurs de 2 mm d'épaisseur.

Une étude en fonction de la distance entre 2 sous-systèmes contenant les scintillateurs est en cours. Nous souhaitons en effet vérifier s'il existe ou pas une distance optimale permettant de limiter la diaphonie hors coïncidence provenant du plomb.

## 10.4 Utilisation de la spectroscopie

Le système d'acquisition utilisé ne nous a pas permis d'enregistrer les spectres en amplitude provenant des scintillateurs YAP. Les spectres "énergie" des scintillateurs YAP provenant des événements de capture ou de fission de  $^{235}\text{U}$  ou encore des événements de capture du bloc de plomb sont représentés sur la figure 10.1. L'utilisation de la spectroscopie semble une solution pour diminuer le bruit de fond provenant des scintillateurs YAP. En effet, si l'on impose un seuil en énergie qui filtre les événements de hautes énergies, nous limitons l'enregistrement des événements de capture provenant des scintillateurs YAP. Avec un seuil haut à 4 MeV, la proportion du bruit provenant des scintillateurs YAP est diminuée de 25 % par rapport à celle sans imposer de seuil. Nous ne pourrions toutefois pas obtenir d'apport significatif pour la mesure du rapport  $\alpha$  si nous ne réduisons pas, par ailleurs, la contribution principale du bruit du fond qui provient du plomb.

Notez toutefois que ce sont des spectres obtenus avec GEANT4. Il est nécessaire de comparer les spectres simulés aux spectres expérimentaux avant toute conclusion définitive. Le seul spectre "énergie" obtenu de façon expérimental est un spectre obtenu avec une cible d'or. Nous remarquons que les spectres, représentés à la figure 10.2, sont similaires. La seule différence majeure provient du seuil du discriminateur qui coupe le spectre à des énergies différentes. Cette comparaison confirme les résultats donnés par GEANT4.

L'enregistrement des amplitudes des scintillateurs permettrait essentiellement de supprimer de façon très propre les événements hautes énergies restants, condition indispensable pour une mesure précise. De plus, nous pourrions imposer, dans le software, un seuil en énergie véritablement identique pour tous les scintillateurs. Les efficacités en coïncidence seraient ainsi parfaitement définies. Or, ceci est capital puisque nous avons vu que les efficacités de détection dans les scintillateurs sont

extrêmement sensibles aux seuils des discriminateurs (cf chapitre 8) : variation de 3.5 % sans coïncidence, 6.85 % en coïncidence double et 22.9 % en coïncidence triple. L'acquisition des signaux énergie des scintillateurs YAP nous permettrait au moins de rendre possible l'obtention des efficacités de détection avec une bonne précision.

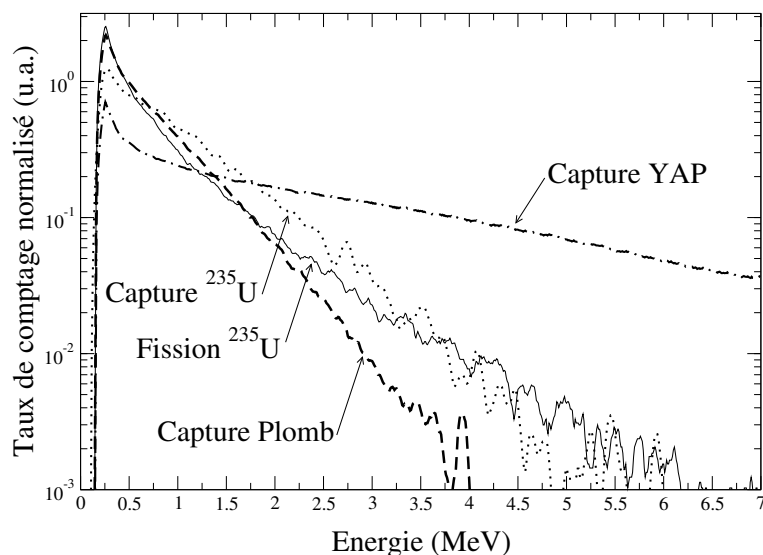


FIG. 10.1 – Spectres d'énergie déposée dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur pour les événements de capture et de fission de l' $^{235}\text{U}$  et les événements de capture provenant du bloc de plomb, simulés par GEANT4.

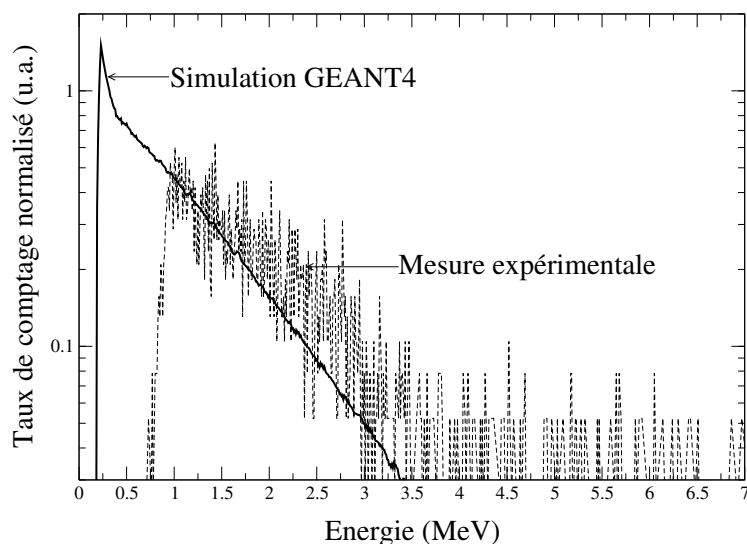


FIG. 10.2 – Comparaison entre le spectre "énergie" expérimental et celui obtenu avec GEANT4 dans le cas d'une cible d'or.

## 10.5 Utilisation d'un autre massif ralentisseur

### 10.5.1 Utilisation du massif de graphite

Dans ce massif, la cible de production de neutrons est une cible deutérée<sup>1</sup>. Les neutrons ne dépasseront pas 2.5 MeV initialement. Le flux est beaucoup plus faible que dans le bloc de plomb puisque le nombre de neutrons par burst est divisé par un facteur 40 environ. Par contre, le bruit de fond provenant du massif ralentisseur, qui représente pour la mesure avec le plomb plus de 85 % du bruit de fond total, serait très largement diminué. Le taux de comptage serait donc plus faible mais avec un rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  amélioré. La section efficace de capture étant 60 fois plus faible pour le carbone que pour le plomb, l'amélioration semble intéressante. La mesure du rapport  $\alpha$  paraît possible, moyennant des mesures regroupées sur des plages en énergie plus importantes que pour la mesure dans le bloc de plomb.

### 10.5.2 Utilisation d'un "coeur de bismuth" au lieu du plomb, autour des détecteurs

Si nous remplaçons le plomb par du bismuth, nous gagnons un ordre de grandeur sur la section efficace de capture neutronique, tout en gardant des propriétés similaires pour le spectromètre à temps de ralentissement. Nous pourrions remplacer seulement les 20 cm de plomb entourant le dispositif de détection par du bismuth puisque nous avons vu que c'est cette zone qui induit la majorité du bruit de fond. Le seuil de diffusion inélastique du Bi est de 3 MeV alors que celui du plomb est de 600 keV (cf figure 10.3). Cela signifie que, dans un massif ralentisseur au bismuth, la relation énergie-temps s'instaure plus rapidement, puisque les processus de diffusion dominant plus tôt que dans le massif ralentisseur au plomb.

D'un point de vue financier, selon les tarifs de GoodFellow [64], le bismuth semble moins onéreux (181 euros contre 485 euros pour 100 g avec une pureté identique égale à 99.999 %). Cependant, le bismuth est un élément très toxique chimiquement et la mise en place d'un "coeur" de bismuth à l'intérieur du bloc de plomb n'est pas une opération triviale (soulever les blocs de plomb, les creuser et insérer le bismuth).

---

<sup>1</sup>L'énergie du premier état excité du carbone est de 4.4 MeV. L'utilisation de la cible deutérée permet de générer des neutrons d'énergie inférieure à ce seuil, contrairement à la cible tritiée. Nous évitons ainsi une forte production de photons gammas de 4.4 MeV, très pénétrants.

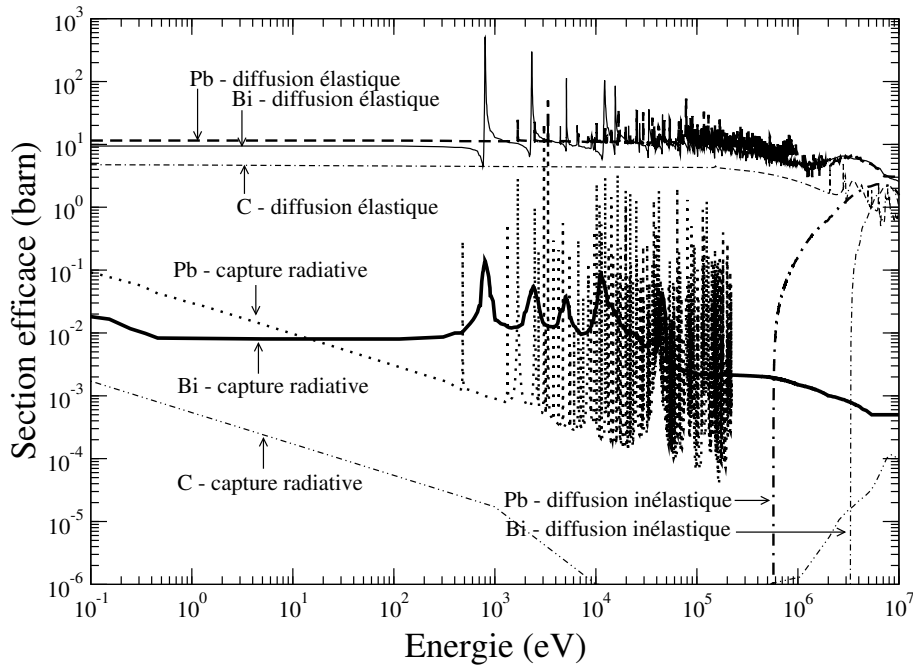


FIG. 10.3 – Comparaison des sections efficaces de capture radiative, de diffusions inélastique et élastique du plomb par rapport à celles du bismuth et du graphite.

### 10.5.3 Creuser une cavité dans le bloc de plomb, autour des détecteurs

Au lieu de remplacer les 25 premiers centimètres de plomb entourant le dispositif de détection par du bismuth, nous pouvons tout simplement imaginer d'enlever ce plomb. La relation énergie temps sera légèrement modifiée. La figure 10.4 représente alors le nombre d'événements de capture détectés dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur par rapport au nombre d'événements de capture total émis dans le bloc de plomb dans le cas où le bloc de plomb est creusé d'une cavité de 25 cm de côté ou pas. On en déduit que le bruit de fond provenant du bloc de plomb est diminué d'un facteur 1.34 sans coïncidence et d'un facteur 1.65 en coïncidence double. On améliorerait ainsi le rapport signal sur bruit d'un facteur 1.5 en coïncidence double<sup>2</sup> puisqu'il passe de 1/65 à 1/43.

Enfin, une autre solution est d'utiliser ce dispositif expérimental, non plus dans un spectromètre à temps de ralentissement, mais dans un dispositif à temps de vol. Moyennant des adaptations du montage électronique et de l'acquisition, nous aurions ainsi une mesure avec un flux certes plus faible mais avec un taux de comptage "utile" plus important. La faisabilité d'une telle expérience reste à prouver. Le cas échéant, nous éliminerions ainsi 80 % du bruit de fond, celui provenant du bloc de plomb. Une telle mesure est déjà prévue, par les physiciens du CENBG avec un dispositif expérimental.

<sup>2</sup>Nous avons déjà vu que pour obtenir le rapport signal sur bruit le plus élevé possible, il est préférable d'utiliser des scintillateurs de 2 mm d'épaisseur et d'imposer une coïncidence au moins double. C'est donc ce cas seulement qui nous intéresse.

tal similaire dans le principe.

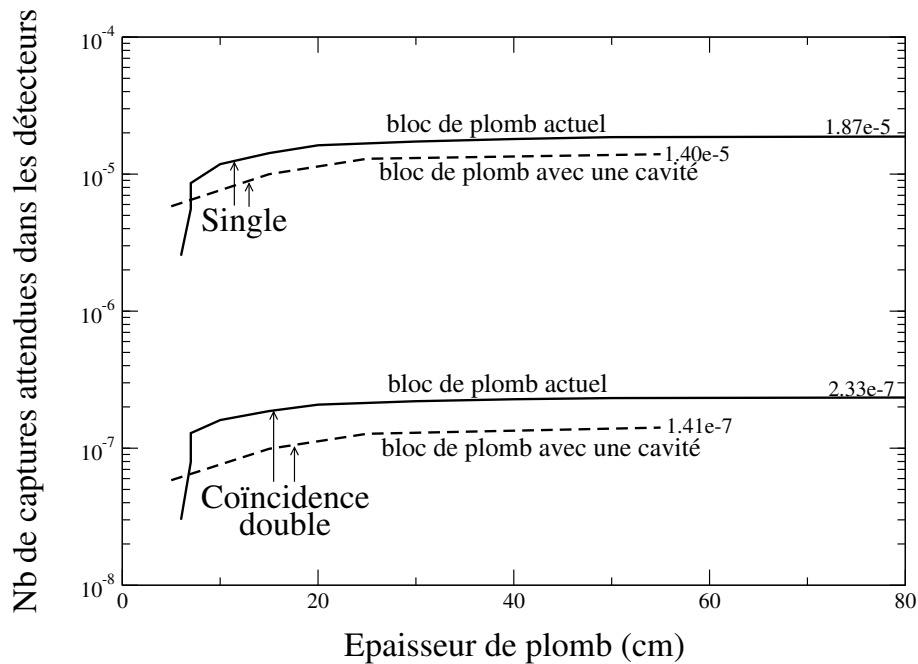


FIG. 10.4 – Nombre d'événements de capture détectés dans les scintillateurs YAP de 2 mm d'épaisseur sans coïncidence (courbe pleine) et en coïncidence double (courbe pointillée), par rapport au nombre d'événements de capture total émis dans le bloc de plomb. Les calculs ont été effectués avec le bloc de plomb présentant une cavité de 25 cm de côté autour des détecteurs et avec le bloc de bloc actuel (sans cavité).

## 10.6 Mesure simultanée du signal et du bruit de fond

La mesure du rapport  $\alpha$  est directe de façon à s'affranchir du flux de neutrons et donc de l'incertitude sur celui-ci. Cependant, pour chaque mesure, nous devons soustraire le bruit de fond, acquisition que l'on doit renormaliser au même flux de neutrons par rapport à l'acquisition du signal de fission et de capture. Une façon de s'affranchir complètement de cette normalisation du flux serait de disposer d'un système contenant les cibles et un autre sans cibles de façon la plus symétrique possible dans le bloc de plomb. Nous mesurons alors à la fois le signal et le bruit de fond avec le même flux de neutrons.

Ceci n'a pas été fait pour deux raisons principales : nous n'avons pas de deuxième dispositif de détection des photons gamma, ni de modules électroniques et des cartes d'acquisition en nombre suffisant. Nous ne pouvons donc pas techniquement rajouter huit détecteurs. Il faudrait aussi re-considérer la position des ensembles de détection au vu de leur taille, de façon à être disposés de façon symétrique. Il faut qu'ils soient assez éloignés pour ne pas interagir entre eux. De plus, il est préférable qu'ils ne soient pas situés trop en bordure du bloc de plomb. Si nous pouvons nous assurer que le

dispositif expérimental complet (bloc de plomb, mur de béton, dispositif de détection, ...) est parfaitement homogène et symétrique, alors une telle modification apporterait une amélioration notable lors de l'analyse des données. En effet, si le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  n'est pas augmenté par cette méthode, nous pouvons au moins assurer une meilleure mesure du terme de normalisation entre les acquisitions de signal et de bruit de fond.

## 10.7 Augmentation de la quantité de matière fissile

Afin d'obtenir un meilleur taux de comptage, qui peut être très fortement réduit si on effectue une mesure en triple coïncidence entre certains scintillateurs YAP seulement, nous pouvons augmenter la quantité de matière fissile. Le tableau 5.4 du chapitre 5, nous indique que passer d'une épaisseur de  $300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ <sup>3</sup> à  $1\,000 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  diminue certes l'efficacité de détection de la fission de 3 % mais, améliore le taux de comptage sans coïncidence d'un facteur 3.33. Ainsi, le taux de comptage du signal est augmenté sans trop de dégradation de l'efficacité de sortie de cible. Cette solution est la première à prendre en considération pour une mesure future du rapport  $\alpha$  sur la plateforme PEREN. Léger bémol : le bruit de fond provenant des particules  $\alpha$  de l'U sera d'autant augmenté dans la chambre à fission.

---

<sup>3</sup>Nous rappelons que, lors de notre mesure, l'épaisseur finale des cibles avait été limitée par la quantité totale d'<sup>235</sup>U accessible assez rapidement à l'époque. Nous voulions en effet des cibles d'<sup>235</sup>U et d'<sup>233</sup>U identiques.

# Conclusion

La filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  peut atteindre la régénération de son combustible en réacteur en spectre rapide comme en spectre thermique. Le paramètre clé pour calculer le pouvoir de régénération est le rapport  $\alpha$  de la section efficace moyenne de capture de  $^{233}\text{U}$  sur celle de fission. Les valeurs actuelles pour le rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  proviennent de mesures effectuées dans les années 1960 et présentent une dispersion de 10 %. Un état des lieux de ces mesures du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  et de  $^{235}\text{U}$  est présenté dans ce mémoire. Il regroupe à la fois les données expérimentales (directes/indirectes et différentielles/intégrales) provenant essentiellement de la base de données EXFOR. Les évaluateurs ont accès à environ trois fois moins de mesures pour  $^{233}\text{U}$  que pour  $^{235}\text{U}$ . De plus, les données sur  $^{235}\text{U}$  sont beaucoup plus complètes, par exemple en ce qui concerne les informations sur l'incertitude des données. L'état des lieux concernant les évaluations des sections efficaces de capture et de fission de ces deux isotopes est aussi présenté, ainsi que les incertitudes sur ces évaluations. Nous avons vu que l'utilisation de deux bases de données différentes (ENDF-B6 ou JENDL-3) pour les sections efficaces de capture et de fission de  $^{233}\text{U}$  permettent de déterminer une taille de l'unité de retraitement pouvant varier de 30 % à 40 %. Il s'avère donc nécessaire de réévaluer le rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  en rajoutant des mesures avec des incertitudes maîtrisées.

Une étude de la faisabilité de la mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  sur la plateforme PEREN ainsi que des expériences tests préliminaires ont été réalisées en 2004 - 2005 à l'aide du spectromètre à temps de ralentissement en plomb. Ces dernières nous ont conduit à la réalisation de chambres d'ionisation parallélépipédiques contenant deux cibles planes d' $^{233}\text{U}$  et d' $^{235}\text{U}$  (pour une mesure de référence) positionnées de façon symétrique par rapport à une anode plane centrale. Cette géométrie permet de maximiser l'angle solide de détection des produits de fission issus des deux cibles. Les photons gamma signant les captures lorsqu'ils ne sont pas en coïncidence avec des produits de fission, sont détectés par un ensemble de huit scintillateurs YAP.

Les mesures réalisées avec ce système expérimental avec des cible d' $^{235}\text{U}$  ont permis de valider l'ensemble des détecteurs et de mesurer la section efficace de fission de  $^{235}\text{U}$ . Cependant, ces mesures ont mis en évidence un bruit de fond venant du plomb et des détecteurs eux-mêmes bien plus important que prévu. L'utilisation de scintillateurs YAP plus fins (2 mm au lieu de 10 mm) a permis d'améliorer de près d'un facteur 2 le rapport signal sur bruit, ce qui reste insuffisant pour obtenir une



mesure du rapport  $\alpha$  avec la précision demandée. Nous avons alors étudié précisément les différentes sources d'erreurs affectant l'évaluation du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  qui proviennent :

- des efficacités de détection des gammas de capture et de fission
- de l'efficacité de détection des événements de fission par la chambre à fission
- du rapport signal sur bruit

Des expériences complémentaires ont permis de quantifier chacune de ces erreurs et de montrer que le rapport signal sur bruit dominait largement. En effet, l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement présente l'avantage, contrairement à une mesure de temps de vol, d'avoir un flux de neutrons très important. Cependant, lors des différentes mesures, nous sommes amenés à conclure qu'un tel dispositif est source de bruits de fond, puisque sous flux de neutrons. La présence d'autant de matière proche des cibles induit un bruit de fond gamma qui noie le signal à mesurer. Ainsi, l'analyse des résultats a permis de montrer que le bruit provenait à plus de 80 % des photons gamma émis par le bloc de plomb et que ces photons étaient détectés à plus de 95 % en diaphonie, c'est-à-dire un seul photon gamma vu simultanément par deux scintillateurs YAP ou plus.

Le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  étant très faible, la mesure de la capture et donc du rapport  $\alpha$  est extrêmement sensible à la normalisation entre les acquisitions de signal et celles du bruit de fond. La mesure sans coïncidence est rigoureusement impossible à analyser à cause de ce problème. Cependant, l'utilisation de la coïncidence va amener des problèmes autres comme, par exemple, la réduction du taux de comptage qui introduit des erreurs statistiques importantes. De plus, connaître les efficacités de détection de capture et de fission dans les scintillateurs YAP est capital. Des mesures effectuées avec diverses cibles de capture, ont permis de montrer que l'efficacité de détection de la capture ne dépendait pas trop de la cascade gamma. Il s'avère que les efficacités de détection dans les scintillateurs YAP sont extrêmement sensibles à des paramètres comme les seuils des discriminateurs ou encore la position exacte du dispositif de détection. Elles sont d'autant plus sensibles que le taux de coïncidence imposé est élevé. Le fait de n'avoir pas pu acquérir les signaux "énergie" des scintillateurs a été pénalisant pour la mesure puisque cela aurait permis d'imposer un seuil identique à tous les scintillateurs YAP.

Pour conclure, malgré nos nombreux efforts pour améliorer le dispositif de détection et donc le rapport signal sur bruit passant par la compréhension complète du dispositif expérimental, il s'avère que la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  n'est pas accessible par un tel dispositif dans l'état actuel. Mesurer à la fois la section efficace de fission et de capture d'un élément fissile semble tout-à-fait illusoire sans des modifications radicales du dispositif expérimental. Augmenter la quantité de matière fissile ou encore modifier le massif ralentisseur pourrait améliorer le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  de façon significative. Le travail de cette thèse est donc une étape préparatoire à la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ . Elle a permis de comprendre en détail le dispositif expérimental complet, et donc de mettre en avant les défauts d'un tel montage pour y pallier pour une mesure future. De plus, les simulations, mises en place lors de ce travail de thèse et dont les résultats ont été analysés et validés par l'expérience, pourront être

réadaptées à un potentiel futur dispositif.

Enfin, il est important de noter que les résultats des mesures effectuées sur la plateforme PEREN restent très dépendants des simulations, que ce soit pour le cas complexe de la mesure du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  ou encore de la mesure de section efficace de capture ou de diffusion élastique par l'intermédiaire de cibles résonantes. Cette plateforme reste essentiellement performante pour des mesures de sections efficaces de diffusion élastique, de fission ou encore de capture de matériaux non fissiles.



# Annexe A

## Réglage de l'électronique d'acquisition

Dans cette annexe, nous allons détailler comment a été effectué le réglage de l'électronique. En effet, une fois le montage électronique effectué, plusieurs mises au point ont été indispensables :

- Les gains des divers amplificateurs pour les signaux énergie ont dû être ajustés afin de s'assurer que l'on ne saturait pas l'acquisition.
- Réglage de la coïncidence entre les différents scintillateurs YAP.
- Des lignes à retard ont été mises sur les discriminateurs, dont les seuils ont été réglés eux-aussi.
- La largeur du véto pulse a dû être ajustée.

### A.1 Réglage des gains des amplificateurs pour les scintillateurs YAP

Cet étalonnage a permis de régler l'amplification du signal "énergie" des YAP en évitant toute saturation.

Un étalonnage simplifié de l'énergie a été obtenu directement avec les cibles d' $^{235}\text{U}$ . En effet, l' $^{235}\text{U}$  décroît en émettant une particule  $\alpha$  pour devenir  $^{231}\text{Th}$  qui émet alors principalement un photon gamma de 185.7 keV. Sur le spectre en énergie des YAP, nous distinguons parfaitement le pic photo-électrique de ce photon. Ce dernier est situé au canal 180 environ. Or, le nombre de canaux énergie est limité à 8 192. Nous ne pourrions donc pas mesurer des énergies au delà de 8.5 MeV. Comme cette valeur est largement au delà des énergies attendues pour les photons à mesurer, nous sommes assuré que l'acquisition ne perdra pas d'information utile à l'interprétation.

Remarques : Ce réglage n'est pas très rigoureux puisque nous ne prenons pas en compte une possible non-linéarité de l'étalonnage. L'étalonnage en énergie des YAP n'est pas nécessaire à l'interprétation des données puisque nous verrons par la suite que nous n'acquerrons pas les amplitudes des signaux. Seuls les spectres en temps dans les scintillateurs YAP nous sont vraiment utiles puisque ce sont eux qui nous donnent le taux de réaction en fonction de l'énergie incidente du neutron.

## A.2 Réglage des seuils des discriminateurs

Le seuil du discriminateur à fraction constante pour la chambre à fission a été réglé de façon à couper au maximum les particules  $\alpha$  de la radioactivité naturelle de l'uranium. Cette coupure permet ainsi de diminuer au maximum le taux de comptage de ces événements de bruit de fond, mais elle est telle qu'elle laisse passer un peu de particules  $\alpha$  afin de pouvoir effectuer une coupure correcte lors du traitement software. En effet, seuls les événements de fission seront utiles, il sera donc indispensable de trier correctement en imposant une coupure sur le spectre énergie de la chambre à fission.

En ce qui concerne les seuils des discriminateurs pour les scintillateurs, nous les avons réglés de façon à couper le pic des gammas de l' $^{235}\text{U}$  (186 keV). De plus, lors des différentes prises de mesures, il s'est avéré que les seuils variaient. Il a donc fallu les augmenter tous légèrement afin de couper très nettement le pic de 186 keV. Cela permet de garder des taux de comptage similaires malgré une dérive des seuils. Tous les scintillateurs ont des seuils réglés de façon à présenter le même taux de comptage entre eux. Ce dernier est alors de l'ordre de 600 cp/s. L'écart maximal entre les différents taux de comptage est de 15 %. On estime que la coupure se fait autour des 200 keV environ.

## A.3 Réglage de la coïncidence

Ne pouvant plus régler la coïncidence par une source de sodium 22 vu le nombre et la position des scintillateurs YAP, nous effectuons le réglage de la coïncidence grâce au faisceau, sans le veto pulse. Le réglage de la coïncidence n'a finalement nécessité aucun module de retard. Ceci s'explique facilement : les circuits de traitement des signaux pour les huit YAP sont similaires (cartes identiques, même longueur de câble, ...).

## A.4 Réglage du veto pulse

Il a été fait en ligne pendant que le faisceau était en marche. Nous l'avons choisi afin de minimiser le bruit haute énergie, sans couper trop de signal. Nous avons vérifié que ce bruit provenait effectivement de phénomènes ayant lieu juste après le burst en traçant un spectre donnant le taux de comptage en fonction de l'énergie déposée dans le YAP et du temps d'arrivée de la particule (figure A.1). Nous voyons très bien que les événements ayant une amplitude supérieure à 2 000 canaux sont très majoritairement situés pour des temps inférieurs à 20  $\mu\text{s}$  (deuxième graphique de la figure A.1).  $1.7 \cdot 10^{-2} \%$  sont situés au delà de 20  $\mu\text{s}$  (premier graphique de la figure A.1). Ces événements correspondent aux événements de hautes énergies dus au burst, empilements de rayons X par exemple. De plus ces événements, quasiment toujours en coïncidence huit, induisent des signaux énergie de très fortes amplitudes ( supérieures à 10 V) et ayant une forme que les détecteurs de crête de l'acquisition à du mal à gérer. En outre, ce "flash" introduit un temps mort relativement élevé perturbant la détection des événements suivants. En effet, ces événements de hautes énergie représentent quasiment 97 % de la totalité des événements acquis. Nous avons donc imposé un veto électronique pour les scintillateurs

YAP, réglé à  $4.5 \mu\text{s}$  (à partir du  $T_0$ ). On coupe quasiment tous ces événements : 2.4 % ne sont pas supprimés. Quant à la chambre à fission, nous n'imposons aucun véto.

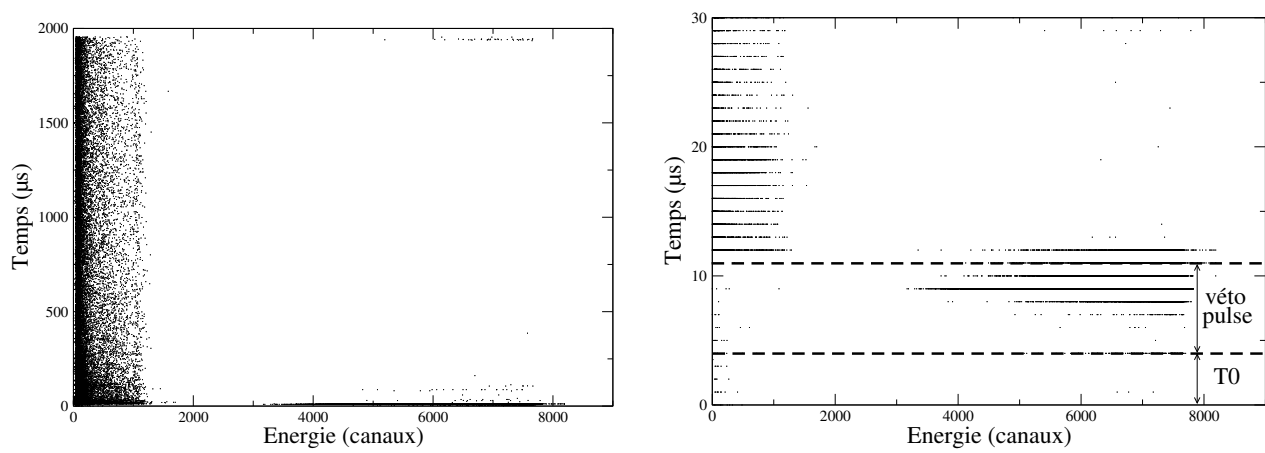


FIG. A.1 – Spectre Energie/Temps du YAP 2 lors d'une acquisition avec faisceau, avec coïncidence hardware double mais sans véto pulse, à gauche, sur toute la plage en temps, et à droite, sur les temps courts uniquement.

## Annexe B

# Etats des lieux des données existantes du rapport $\alpha$ de $l^{235}\text{U}$ et de $l^{233}\text{U}$

Nous avons essayé de faire un état des lieux des données existantes du rapport  $\alpha$  de  $l^{233}\text{U}$  et de  $l^{235}\text{U}$  le plus exhaustif possible. Cette annexe rassemble les différents tableaux récapitulatifs des données expérimentales existantes, ainsi que les figures associées. Ils ont été enlevé du corps du texte pour plus de lisibilité. La bibliographie associée se trouve après la bibliographie de la thèse.

### B.1 Etat des lieux du rapport $\alpha$ de $l^{235}\text{U}$ : données expérimentales existantes

De très nombreuses mesures expérimentales du rapport  $\alpha$  de  $l^{235}\text{U}$  ont été effectuées (cf tableaux B.1, B.2 pour les mesures intégrales, tableaux B.3, B.4 et B.5 pour les mesures différentielles).

Les valeurs différentielles sont récapitulées dans les figures B.1, B.2, B.3, B.4 et B.5. Afin de rendre plus aisée la comparaison entre les différentes valeurs expérimentales, nous avons représenté ces données sur 3 pages en énergie.

Auteur (date)	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$
Snyder et al. 1944 [SNY44]	non spécifiée	non spécifiée	non spécifiée	spectre thermique	$0.13 \pm 0.16$
Deutsch et al. 1946 [DEU46]	2 échantillons irradiés d' $^{235}\text{U}$	non spécifiée	indirecte	non spécifiée	$0.186 \pm 0.008$
Williams et al. 1946 [WIL46]	2 échantillons irradiés d' $^{235}\text{U}$ Mesure du rapport $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$	réacteur graphite/uranium clinton et hanford	indirecte	non spécifiée	$0.183 \pm 0.006$
Egelstaff et al. 1955 [EGE55]	Temps de vol Crystal spectrometer	non spécifiée	non spécifiée	non spécifiée	$0.13 \pm 0.04$
Kanne et al. 1955 [KAN55]	Spectrométrie de masse (sur $^{137}\text{Cs}$ et $^{144}\text{Ce}$ )	non spécifiée	indirecte	non spécifiée	$0.174 \pm 0.026$
Cocking et al. 1958 [COC58]	Chambre à fission Compteur proportionnel au bore	réacteur BEPO (AERE) Utilisation de filtres Pb-Bi pour fournir un faisceau de neutrons froids	indirecte	1.1 meV	$1.170 \pm 0.022$
Craig et al. 1958 [CRA58]	Spectrométrie de masse	réacteur NRX	indirecte	non spécifiée	$0.196 \pm 0.004$ $0.186 \pm 0.004$
Melkonian et al. 1958 [MEL58]	non spécifié	non spécifiée	non spécifié	100 eV - 4 keV	0.64
Safford et al. 1959 [SAF59]	Crystal spectrometer	non spécifiée	non spécifiée	non spécifiée	$0.171 \pm 0.009$
Hogg et al. 1960 [HOG60]	Spectrométrie de masse	non spécifiée	indirecte	spectre thermique	$0.171 \pm 0.017$

TAB. B.1 – Récapitulatif des différentes mesures intégrales du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR (de 1944 à 1960).



TAB. B.2 – Recapitulatif des différentes mesures intégrées du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR (depuis 1960).

Auteur (date)	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Rapport $\alpha$ de $^{235}\text{U}$
Esch et al. 1964 [ESC64]	non spécifiée	non spécifié	non spécifiée	spectre épithermique (Cd)	$0.486 \pm 0.025$
Okazaki et al. 1964 [OKA64235]	non spécifiée	réacteur NRU	non spécifiée	non spécifiée	$0.1718 \pm 0.0006$ $0.1753 \pm 0.0006$
Maeck et al. 1965 [MAE65]	non spécifiée	non spécifié	non spécifiée	non spécifiée	$0.1752 \pm 0.0028$
Durham et al. 1966 [DUR66]	non spécifiée	réacteur NRU	non spécifiée	spectre maxwellien	$0.1765 \pm 0.0015$
Lounsbury et al. 1970 [LOU70]	Spectrométrie de masse	réacteur NRU	indirecte	non spécifiée	$0.1702 \pm 0.0007$
Gnidak et al. 1977 [GNI77]	Méthode de mesure par transmission des neutrons 46 compteurs proportionnels He3	WWR-M réacteur filtre au scandium Mn diffuseur	non spécifiée	$2.0 \text{ keV} \pm 0.3 \text{ keV}$	$0.55 +0.09 -0.06$
Prokopenko et al. 1978 [PRO78]	Spectrométrie de masse	réacteur BOR-60	indirecte	spectre rapide	$0.197 \pm 0.006$
Goncharov et al. 1986 [GON86]	Séparation radiochimique Echantillons : 1ère donnée : élément de combustible 2ème donnée : ampoule contenant de $^{235}\text{U}$ 3ème donnée : élément de combustible Valeurs obtenues pour différentes zone de réacteur ramenées aux conditions de la zone centrale	réacteur BN-350	indirecte	Spectre de neutrons dans une zone éléments de combustibles sont faiblement enrichis Spectre de neutrons dans une zone où les éléments de combustibles sont faiblement enrichis Spectre de neutrons dans une zone où les éléments de combustibles sont fortement enrichis	$0.284 \pm 0.012$ $0.2870 \pm 0.007$ $0.248 \pm 0.010$
Adamchuk et al. 1986 [ADA86]	Méthode par spectrométrie et utilisation de la multiplicité Enregistrement simultané des événements de capture et de fission grâce à : 12 scintillateurs NaI de section cylindrique montés en $4\pi$ et 2 détecteurs semi-conducteurs (fragments de fission)	réacteur IRT-2000	directe	$0.0160 \text{ eV} \text{ } 0.03 \text{ eV}$	$0.169 \pm 0.004$
Adamchuk et al. 1988 [ADA88]	Multiplicity spectrometry méthode Romashka-1 : détecteur scintillateur $4\pi$ composé de 12 sections 2 détecteurs semi-conducteurs (PF)	réacteur IRT-2000	directe	$0.0253 \text{ eV} \pm 2.9 \%$	$0.1690 \pm 0.0035$

Auteur (date)	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Cf figure n°
Spivak et al. 1956 [SPI56]	Deux ensemble de compteurs $BF_3$ Chambre à ionisation avec des cibles $d^{235}U$ et $d^{238}U$	Photoneutron Sources (Graphite-Prism Method)	directe	30 keV ; 900 keV	B.4
Andrew et al. 1958 [AND58]	Transmission (coquille sphérique) Chambre à fission	non spécifiée	indirecte	24 keV ; 880 keV	B.5
Diven et al. 1958 [DIV58]	Cuve remplie de scintillateur liquide	non spécifiée	non spécifiée	178 keV ; 1 MeV	B.4
Skarsgard et al. 1958 [SKA58]	Détection des neutrons de fission : 16 compteurs BF-3 implanté dans de la paraffine placés de façon symétrique autour d'échantillon suffisamment épais pour absorber quasiment tout le flux de neutrons incident (> 0.05 eV) Utilisation d'un compteur proportionnel pour la mesure du flux (<0.05eV)	réacteur BEPO (AERE) Spectromètre (K-CL Crystal)	non spécifiée	I BEPO REACTOR AT AERE	B.1
Hopkins et al. 1962 [HOP62]	Cuve remplie de scintillateur liquide	non spécifiée	directe	30keV ; 1 MeV	B.5
Ignatiev et al. 1964 [IGN64]	Enregistrement des neutrons secondaires	cyclotron (faisceau pulsé)	indirecte	0.032 eV ; 20 eV	B.1 B.2 B.3
Weston et al. 1964 [WES64]	Temps de vol Cuve remplie de scintillateur liquide	non spécifiée	directe	12.3 keV ; 690 keV	B.5
Brooks et al. 1966 [BRO66235]	Temps de vol Transmission + scintillateur	accélérateur linéaire d'électrons		0.035 eV ; 200 eV	B.2 B.3
Saussure et al. 1966 [SAU66]	Temps de vol Scintillateur hydrogéné de grande capacité "empoisonné" au gadolinium pour la détection des photons gamma (indications des erreurs statistiques seulement)	P-LI7	directe	17.7 keV ; 600 keV	B.4
Cao et al. 1968 [CAO68]	Temps de vol 4 chambres remplies de scintillateur liquide (détections des photons) 6 chambres d'ionisation (détection des produits de fission)	CBNM ELECTRON accélérateur linéaire	directe	6.39 eV ; 147.4 eV	B.2 B.3
Ryabov et al. 1968 [RYA68]	Temps de vol Cuve remplie de scintillateur liquide au bore pour mesure de la transmission Mesure des gammas de capture et de fission	JINR : réacteur rapide (pulsé)	indirecte	5e-2 eV ; 30 keV	B.1 B.2 B.3 B.4

TAB. B.3 – Récapitulatif des mesures différentielles du rapport  $\alpha$  de  $l^{235}U$  répertoriées dans la base EXFOR (de 1958 à 1968).

Auteur (date)	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Cf figure n°
Czirr et al. 1970 [CZI70]	Temps de vol	accélérateur linéaire (e-) 33 MeV	non spécifiée	48 eV ; 28 keV	B.2 B.3 B.4
Kurov et al. 1970 [KUR70]	Temps de vol Scintillateur liquide (500 Litres) + Cd pour la détection des photons gammas	réacteur rapide (pulsé)	non spécifiée	0.1 eV ; 30 eV	B.1 B.2 B.3
Vorotnikov et al. 1971 [VOR71]	3 détecteurs scintillateurs au stilbène pour la détection des gammas et des neutrons rapides Chambre remplie de scintillateur gazeux (détection des produits de fission) Utilisation de la coïncidence entre les détecteur	accélérateur pulsé Van de graaff Réaction : Li7(p,n)Be7	directe	5 keV ; 130 keV	B.4
Bandl et al. 1972 [BAN72]	Temps de vol Mesures de la diffusion, de la transmission, et de la fission prompte : Scintillateur (cristal en verre dopé au <sup>6</sup> Li) pour la détection des neutrons diffusés Détection des protons de recul par un scintillateur liquide Détecteur (cristal en verre dopé au <sup>6</sup> Li) pour la détection des neutrons transmis Scintillateur (cristal en verre sans <sup>6</sup> Li) pour la détection des photons de bruit de fond	Accélérateur pulsé Van de Graaff (3 MeV) Réaction : Li7(p,n)Be7	indirecte	8 keV ; 60 keV	B.4
Bolotskij et al. 1973 [BOL73]	Temps de vol Utilisation de 8 cristaux en stilbène pour la détection des neutrons prompts de fission et des photons gamma provenant de la capture et de la fission	réacteur rapide IBR-30 (pulsé)	directe	250 eV ; 65 keV	B.3 B.5
Dvuksherstnov et al. 1974 [DVU74]	Chambre à fission pour la mesure des produits de fission Utilisation de détecteurs scintillateurs pour les photons gamma provenant de la capture et de la fission	réacteur non spécifié transmission des neutrons à travers des filtres : fer alu et soufre	directe	0.0253 ; 25 keV	B.1 B.4

TAB. B.4 – Récapitulatif des mesures différentielles du rapport  $\alpha$  de l'<sup>235</sup>U répertoriées dans la base EXFOR (de 1969 à 1974).

Auteur (date)	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Cf figure n°
Corvi et al. 1975 [COR75]	Temps de vol Chambre à fission multiplaques Scintillateurs C <sub>6</sub> F <sub>6</sub>	Accélérateur linéaire	directe	86 eV ; 85 keV	B.2 B.3 B.4
Kononov et al. 1975 [KON75]	Temps de vol Scintillateur liquide (Cd)	Van de Graaff	non spécifiée	10 keV ; 1 MeV	B.5
Yen et al. 1975 [YEN75]	Scintillateur (cristal en verre dopé au <sup>6</sup> Li) 2 chambres à fission Utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement : bloc de plomb 2*2*2m3	non spécifiée	directe	200 eV ; 12.76 keV	B.1 B.2 B.3
Gwin et al. 1976 [GWI76]	Chambre à fission DéTECTEUR scintillateur liquide Utilisation de la coïncidence entre les détecteurs	Accélérateur linéaire	directe	100 eV ; 200 keV	B.3 B.5
Muradyan et al. 1977 [MUR77]	Temps de vol Chambre d'ionisation 2 cristaux scintillateurs NaI(Tl)	Accélérateur linéaire	directe	10 eV ; 5 keV	B.2 B.3
Beer et al. 1978 [BEE78]	Cuve remplie de scintillateur liquide (800L) pour la détection des gammas de capture et de fission Scintillateur liquide au Ne213 cylindrique pour les événements de fission seuls	Accélérateur Van de Graaff	directe	10.6 keV ; 64.0 keV 481 keV	B.5
Vertebnyy et al. 1980 [VER80]	Utilisation de filtre au scandium et au fer pour sélectionner les neutrons méthode par transmission Utilisation de 46 compteurs à He <sup>3</sup>	WWR-M réacteur	indirecte	Intégrale 2 keV et 24.5 keV	B.4
Adamchuk et al. 1983 [ADA83]	Temps de vol Méthode par spectrométrie et utilisation de la multiplicité cf ligne ci-dessus	non spécifiée	directe	1.98eV 32 eV	B.2 B.3
Grigoriev et al. [GRI00]					B.2 B.3 B.4

TAB. B.5 – Récapitulatif des différentes mesures différentielles du rapport  $\alpha$  de l'<sup>235</sup>U répertoriées dans la base EXFOR (depuis 1975).

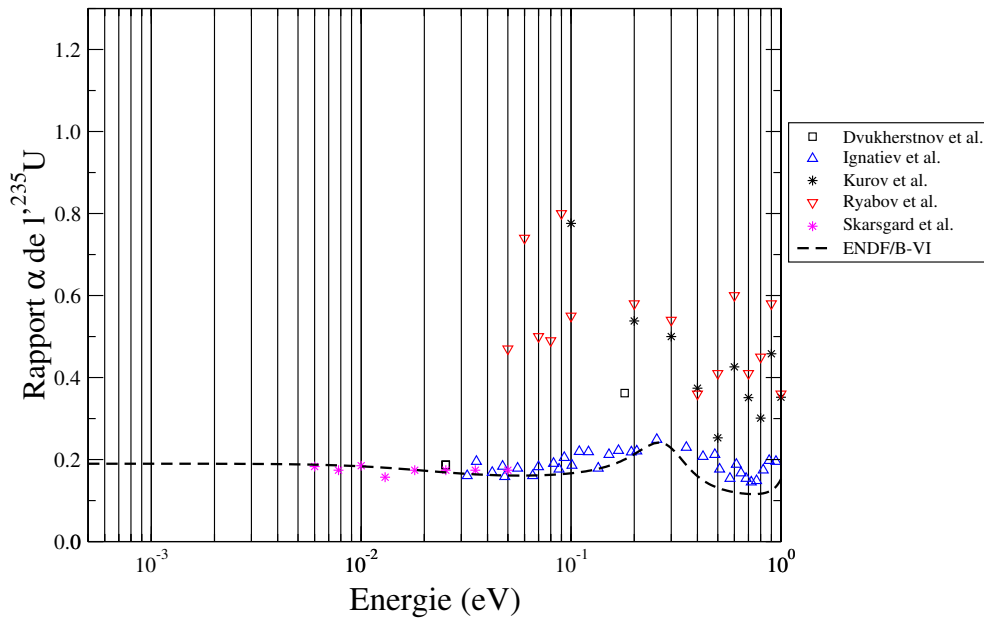


FIG. B.1 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $I'^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI, pour des énergies comprises entre 0.0001 eV et 1 eV.

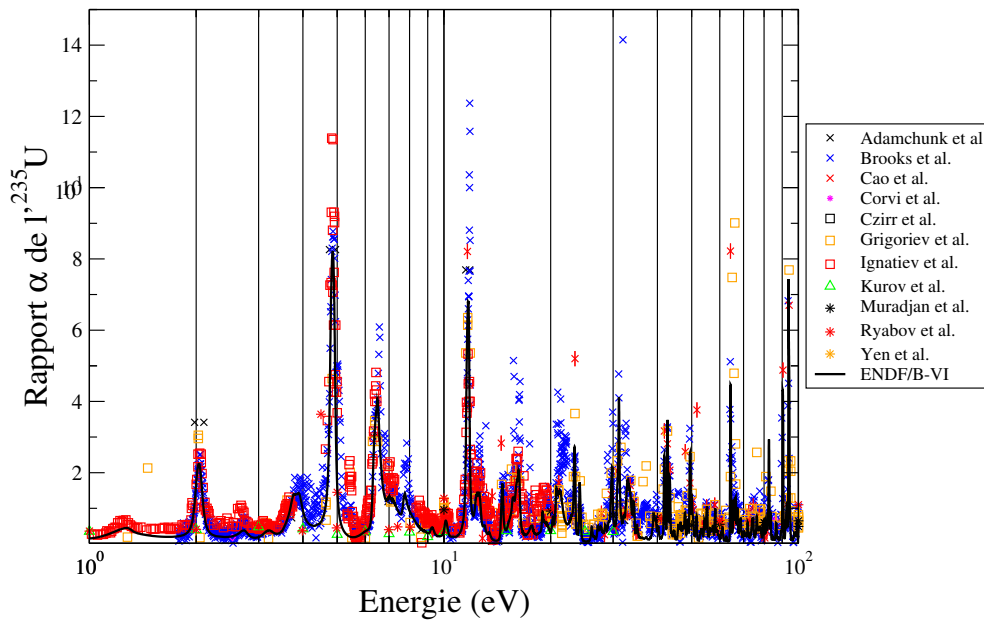


FIG. B.2 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $I'^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI, pour des énergies comprises entre 1 eV et 100 eV.

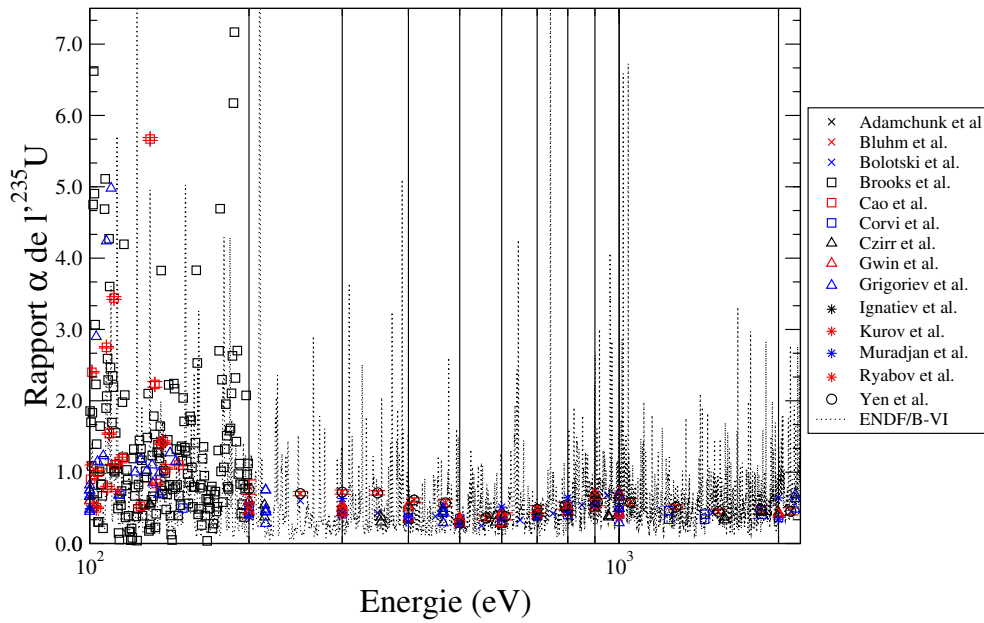


FIG. B.3 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI, pour des énergies comprises entre 100 eV et 2.2 keV.

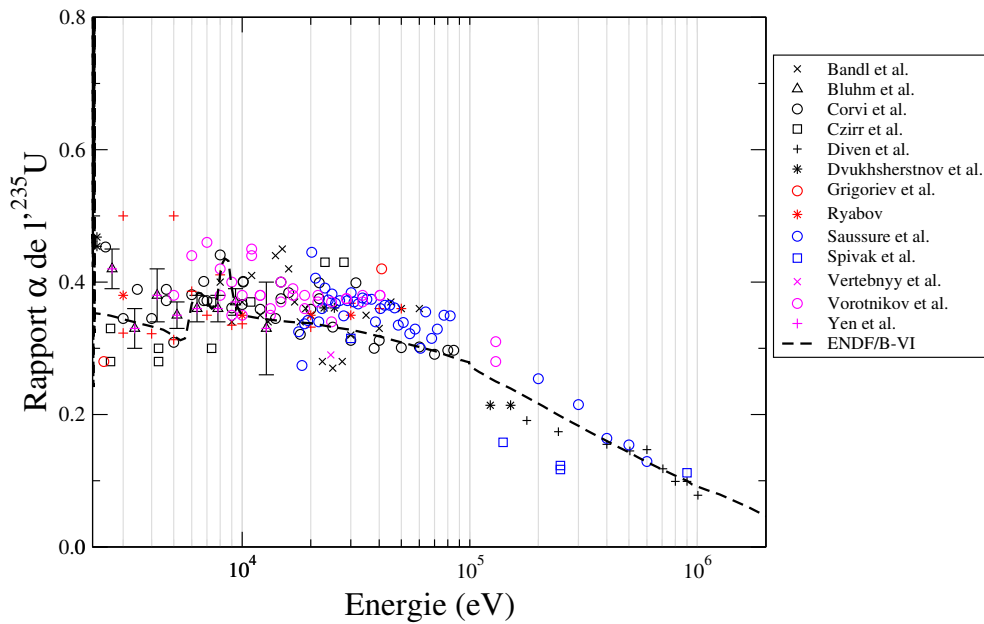


FIG. B.4 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI, pour les hautes énergies (> 2.2 keV). Au vu de la quantité de données et afin de rendre plus lisible les courbes, les valeurs expérimentales ont été représentées sur deux graphiques.

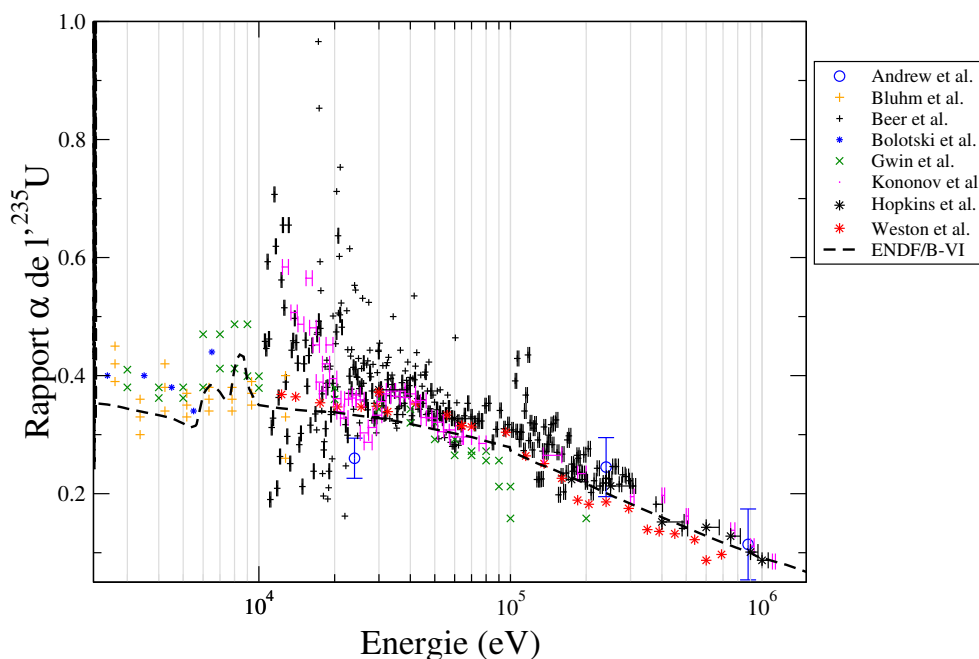


FIG. B.5 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI, pour les hautes énergies(> 2.2 keV), suite.

## B.2 Etat des lieux du rapport $\alpha$ de l' $^{235}\text{U}$ : données expérimentales existantes

Les données expérimentales sont assez peu nombreuses et datent essentiellement des années 60. Il a été assez difficile de trouver les publications portant sur cette mesure. Un certain nombre n'a pas été accessible. De plus, peu de valeurs sont tabulées et existent sous EXFOR. Ces mesures sont résumées dans le tableau B.6 pour les mesures intégrales et dans le tableau B.7 pour les mesures différentielles.

Les mesures différentielles sont représentées sur les figures B.6, B.7, B.8, B.10 et B.11.

Auteur (date)	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Rapport $\alpha$ de $^{233}\text{U}$	Calcul de l'incertitude
M.Lounsbury et al. 1970 [LOU70]	spectrométrie de masse	NRU-reactor	indirecte	spectre thermique	$0.0899 \pm 0.0004$	Erreurs sur : l'analyse isotopique les données nucléaires le spectre de neutrons
L.J.Esch et al. 1964 [ESC64]	-	-	-	spectre épithermique spectre épithermique	$0.165 \pm 0.012$ $0.175 \pm 0.006$	non spécifié
W.H. Zinn et al. 1946 [ZIN46]	-	-	-	spectre thermique	0.114	non spécifié
A.Okazaki et al. 1964 [OKA64]	spectrométrie de masse	NRU-reactor	indirecte	spectre thermique	$0.0940 \pm 0.0004$	non spécifié
M.G.Inghram et al. 1950 [ING50]	spectrométrie de masse	-	indirecte	spectre thermique	$0.0976 \pm 0.0018$	non spécifié
M.J.Cabell et al. 1962 [CAB62]	spectrométrie de masse	réacteur Pluto	indirecte	spectre thermique	$0.0917 \pm 0.0022$	non spécifié
G.M.Kukavadse et al. 1955 [KUK55]	spectrométrie de masse + comptage alpha	Réacteur ?	indirecte	spectre thermique	$0.095 \pm 0.003$	non spécifié
Halperin et al. 1963 [HAL63]	spectrométrie de masse	-	indirecte	spectre épithermique	$0.171 \pm 0.017$	
Conway et al. 1967 [CON67]	spectrométrie de masse	-	indirecte	spectre épithermique	$0.175 \pm 0.006$	
<b>Cabell et al.</b> <b>1971 [CAB71]</b>	spectrométrie de masse (2 ans d'irradiation) Mesure de la capture seule	Réacteur ?	indirecte	spectre thermique	$9.17\text{e-}2 \pm 2.2\text{e-}3$	cf publi

TAB. B.6 – Récapitulatif des différentes mesures intégrales du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR. L'expérience de Cabell et al. , écrite en gras, est une de celles utilisées comme référence pour l'évaluation ENDF/B-VII.



Auteur date	Méthode utilisée	Source de neutrons	directe/ indirecte	Plage en énergie	Calcul de l'incertitude	Cf figure n°
<b>J.C.Hopkins et al.</b> <b>1962 [HOP62]</b>	Cuve contenant un liquide scintillateur	-	-	30 keV ; 1 MeV	non spécifié	B.11
<b>F.D.Brooks et al.</b> <b>1966 [BRO66]</b>	Temps de vol Scintillateurs	LINAC	-	0.035 eV ; 11 eV	erreurs statistiques + erreurs systématiques (bruit de fond et normalisation)	B.6 B.8
J.E.Sanders et al. (1957) [SAN57]	Détection des neutrons émis lors de la fission	réacteur BEPO à AERE	-	1.07 eV ; 2.16 eV		B.7
P.A.Egelstaff et al. (1955) [EGE55]	Temps de vol	-	indirecte	5e-3 eV - 2.1 eV	non spécifié 30 % dans la zone d'énergies intermédiaires	non représentée
M.S.Moore et al. (1960) [MOO59]	Temps de vol	-	indirecte	2 eV ; 17 eV	détaillé	B.7
<b>L.W.Weston et al.</b> <b>1968 [WES68]</b>	Temps de vol Chambre à fission contenant plusieurs cibles d' <sup>233</sup> U et placée au centre d'une cuve contenant un liquide scintillateur	accélérateur linéaire	directe	0.4 eV ; 2 keV	détaillé	B.6 B.7 B.10

TAB. B.7 – Récapitulatif des mesures différentielles du rapport  $\alpha$  de l'<sup>233</sup>U répertoriées dans la base EXFOR. Les expériences dont les auteurs sont écrits en gras sont celles de références utilisées pour l'évaluation ENDF/B-VII.

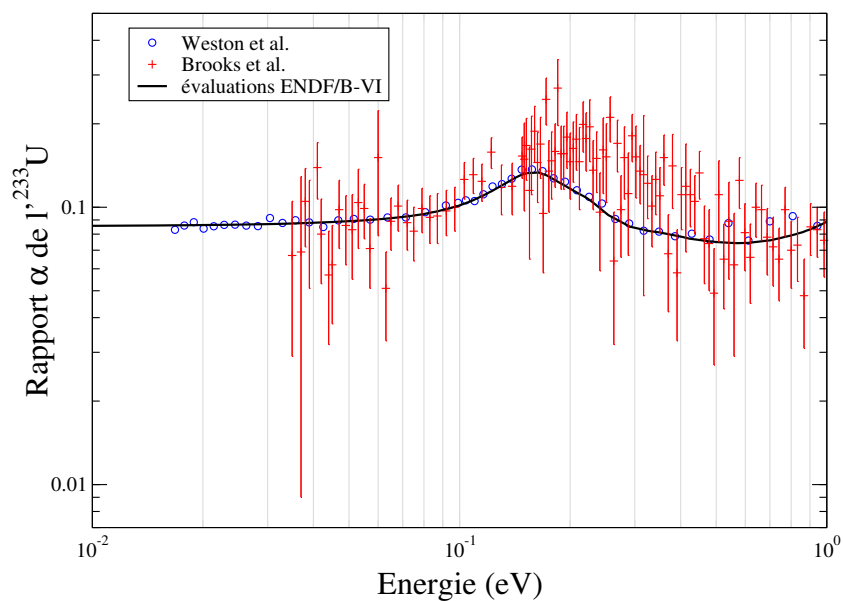


FIG. B.6 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI, pour des énergies inférieures à 1 eV.

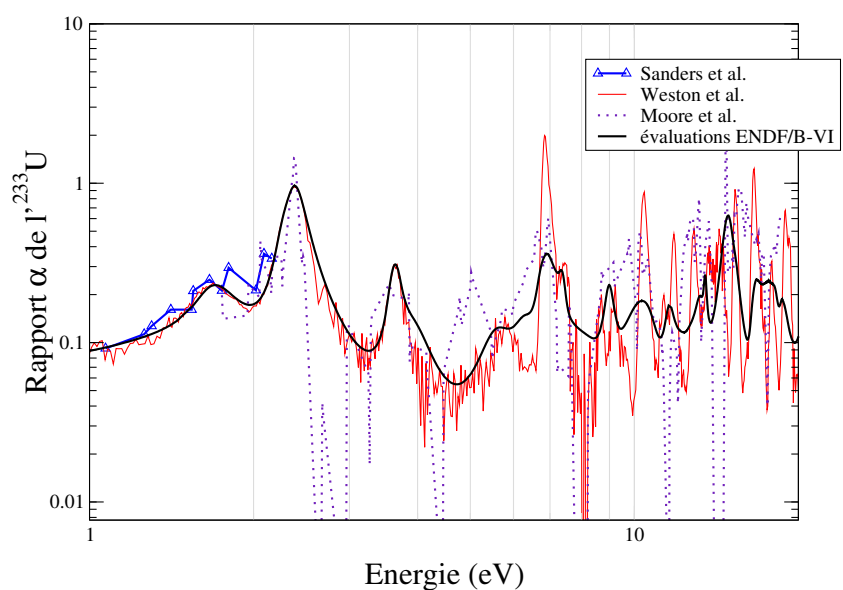


FIG. B.7 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI pour des énergies comprises entre 1 eV et 20 eV. Au vu de la quantité de données et afin de rendre plus lisible les courbes, les valeurs expérimentales ont été représentées sur deux graphiques.

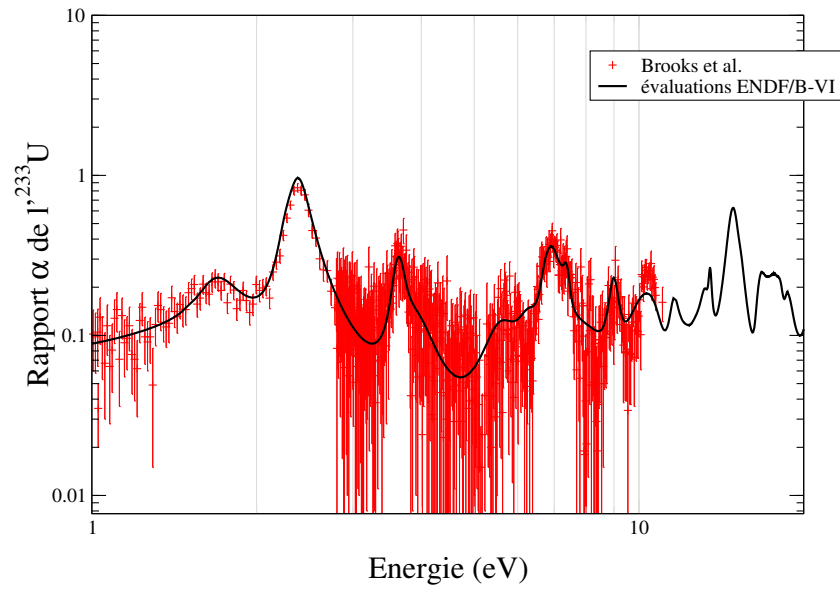


FIG. B.8 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI pour des énergies comprises entre 1 eV et 20 eV, suite.

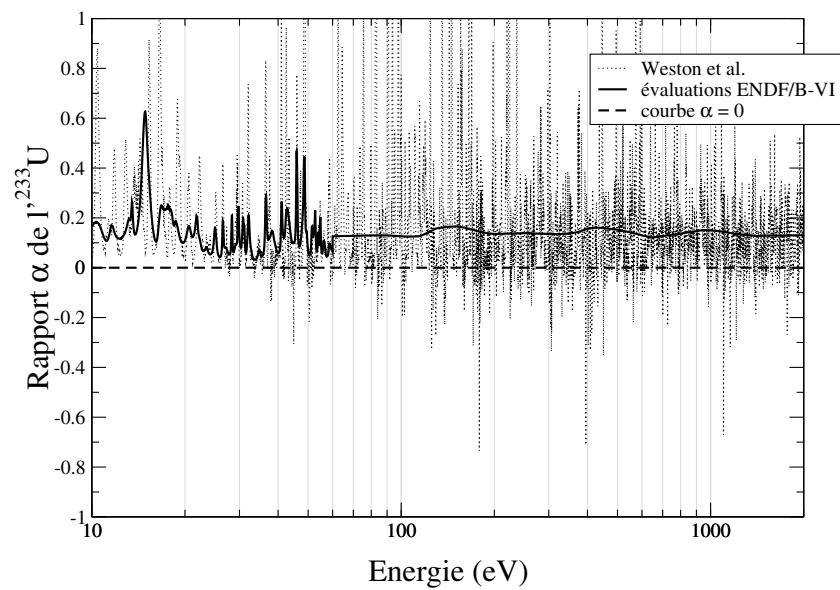


FIG. B.9 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI pour des énergies comprises entre 10 eV et 2 keV (échelle linéaire). Nous avons seulement représenté la plage pour  $\alpha$  compris entre -1 et 1 afin de mettre en valeur les données expérimentales négatives de Weston et al.

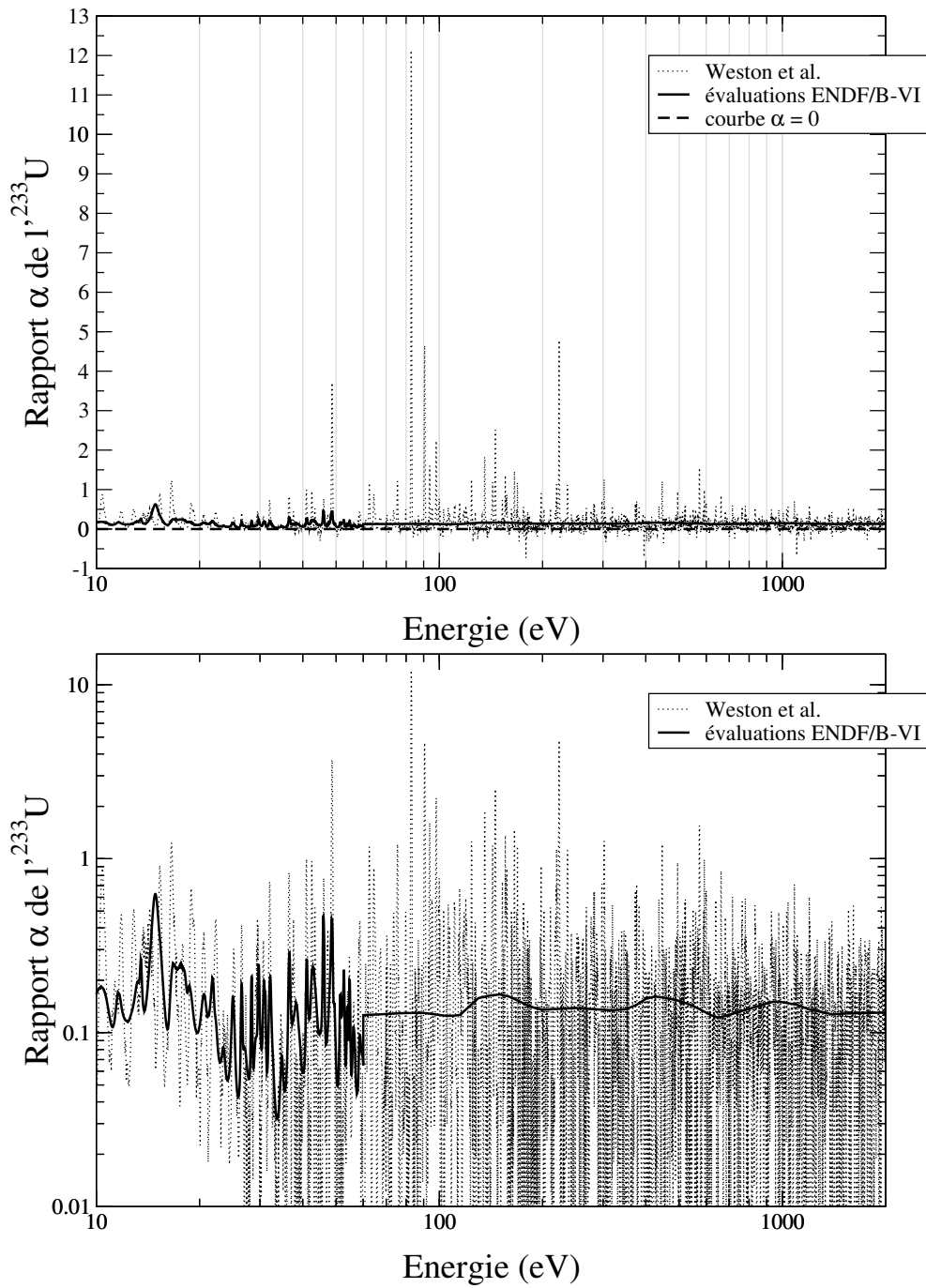


FIG. B.10 – En haut, valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de  $l^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI pour des énergies comprises entre 10 eV et 2 keV (échelle linéaire). En bas, même figure mais avec une échelle logarithmique en y.

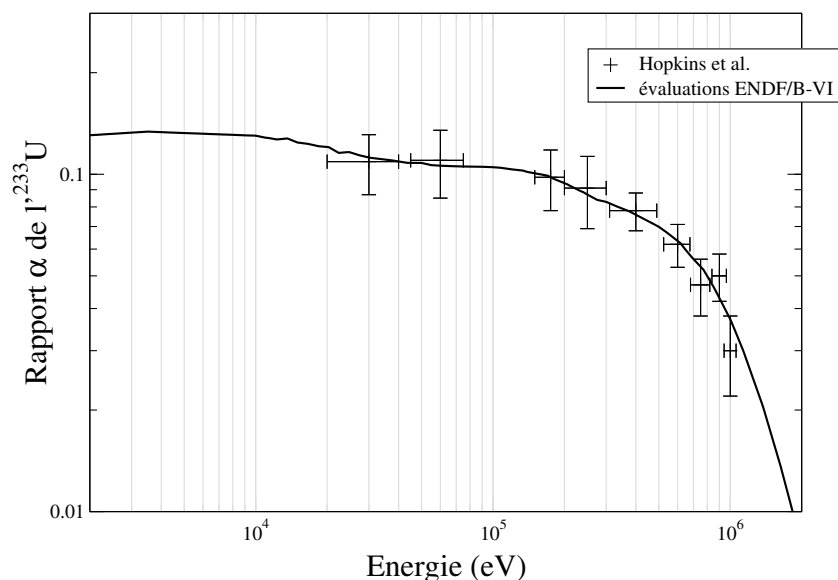


FIG. B.11 – Valeurs expérimentales différentielles du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  répertoriées dans la base EXFOR, comparées à l'évaluation ENDF/B-VI pour des énergies supérieures à 2 keV.

### B.2.1 Les mesures de Weston et al.

Ce paragraphe résumant toutes les données accessibles du rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  de Weston et al.

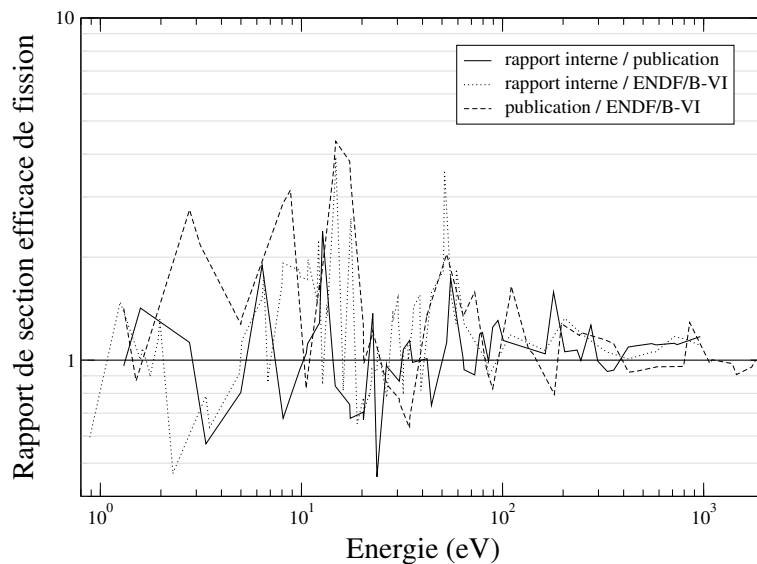


FIG. B.12 – Rapport des section efficace de fission de l' $^{233}\text{U}$ , entre le rapport interne ORNL et la publication, entre le rapport interne ORNL et l'évaluation ENDF/B-VI, et entre la publication et l'évaluation ENDF/B-VI.

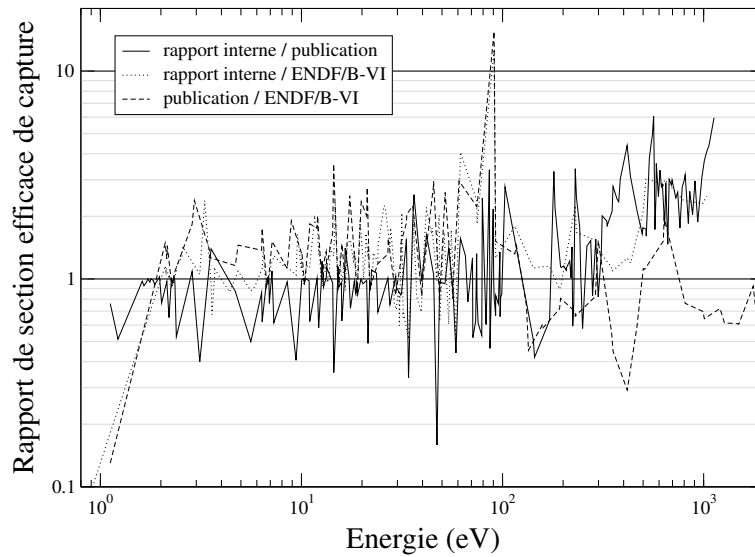


FIG. B.13 – Rapport des section efficace de capture de l' $^{233}\text{U}$ , entre le rapport interne ORNL et la publication, entre le rapport interne ORNL et l'évaluation ENDF/B-VI, et entre la publication et l'évaluation ENDF/B-VI.

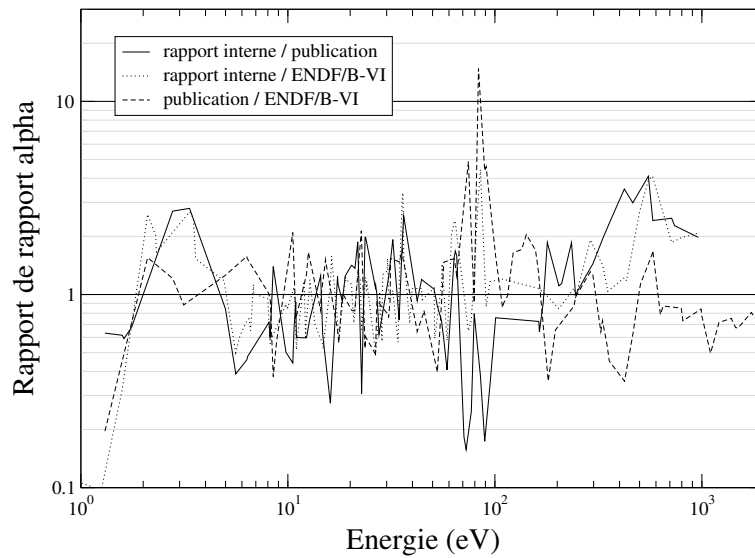


FIG. B.14 – Rapport  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  sur [0.1 eV ; 1.1 keV].

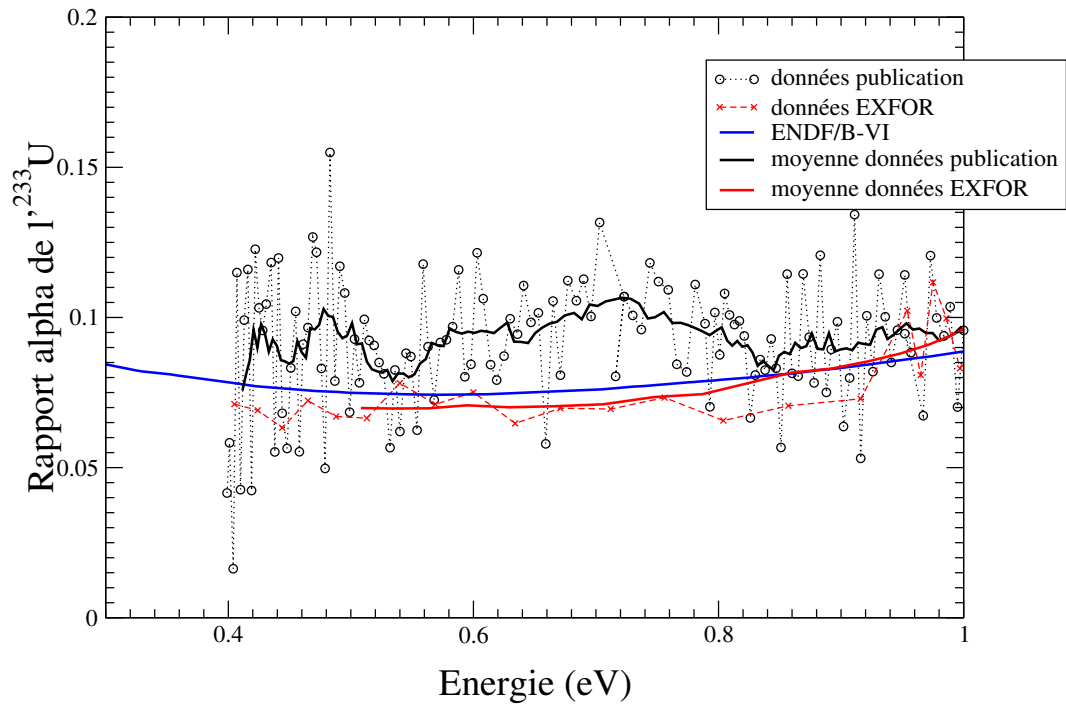


FIG. B.15 – Rapport  $\alpha$  de  $I'^{233}\text{U}$  entre 0.3 eV et 1 eV.

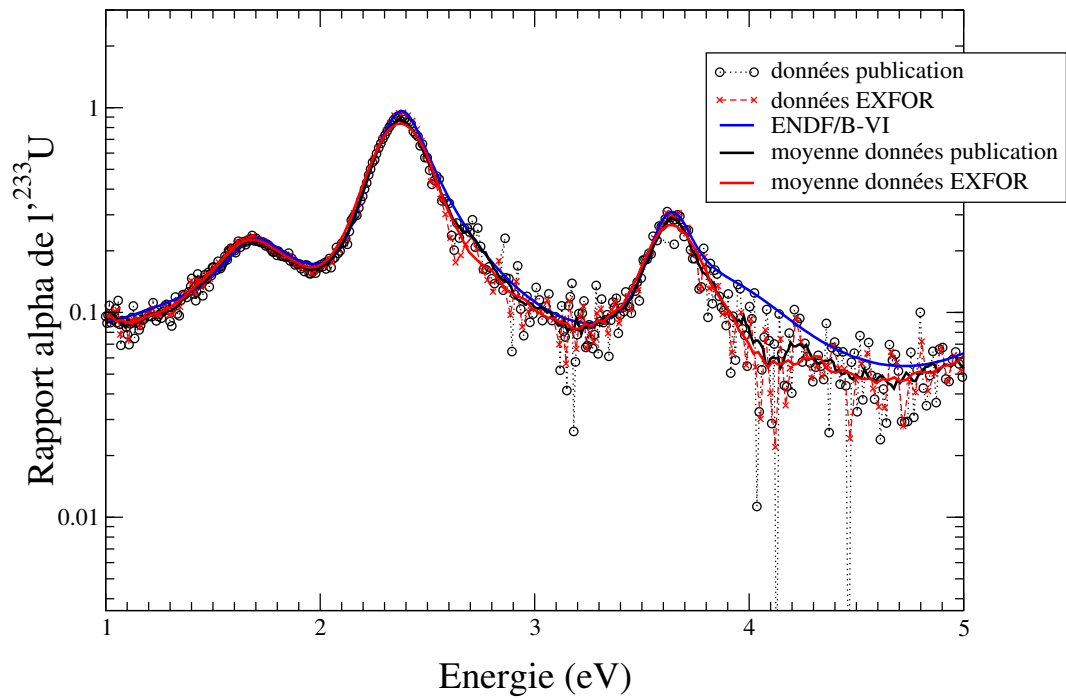


FIG. B.16 – Rapport  $\alpha$  de  $I'^{233}\text{U}$  entre 1 eV et 5 eV.

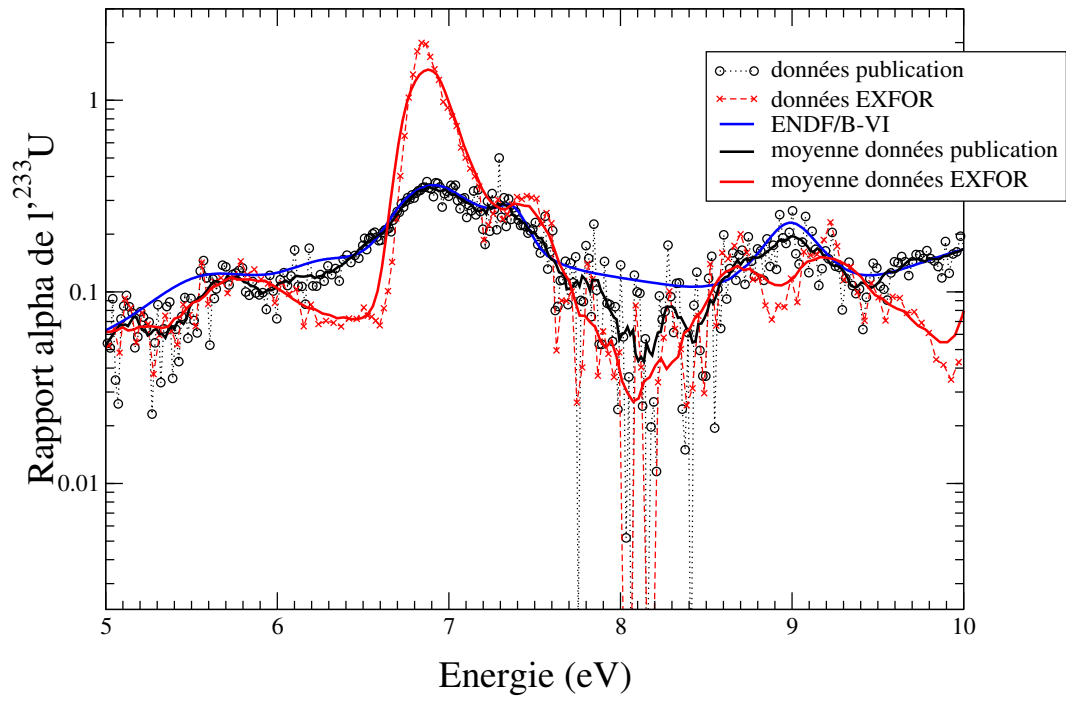


FIG. B.17 – Rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  entre 5 eV et 10 eV.

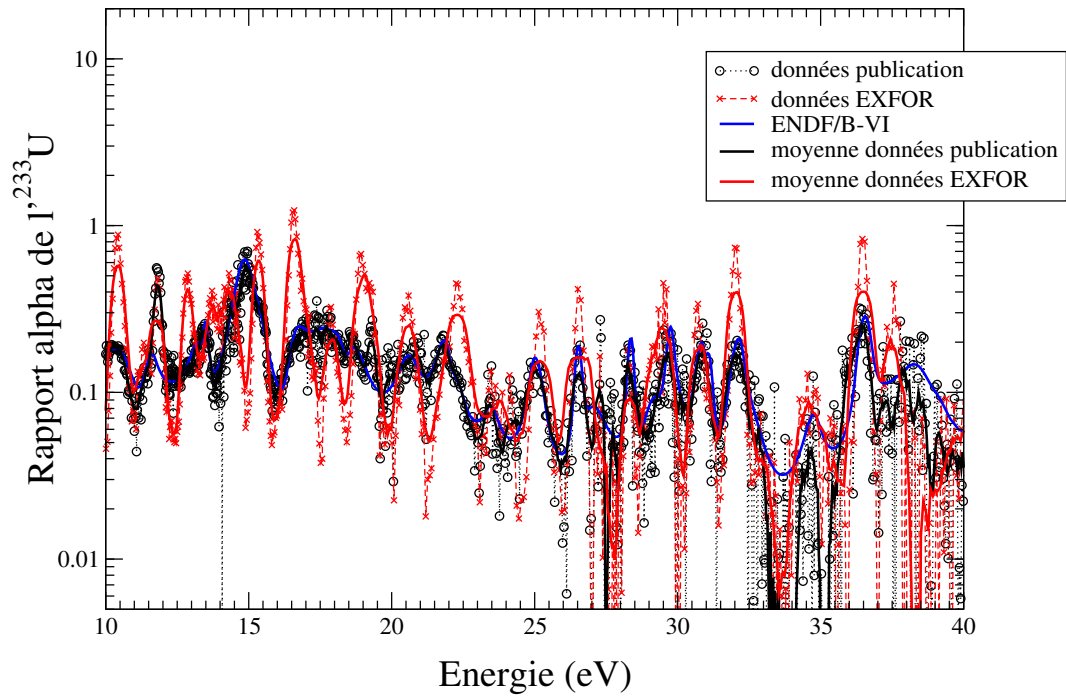


FIG. B.18 – Rapport  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  entre 10 eV et 40 eV.



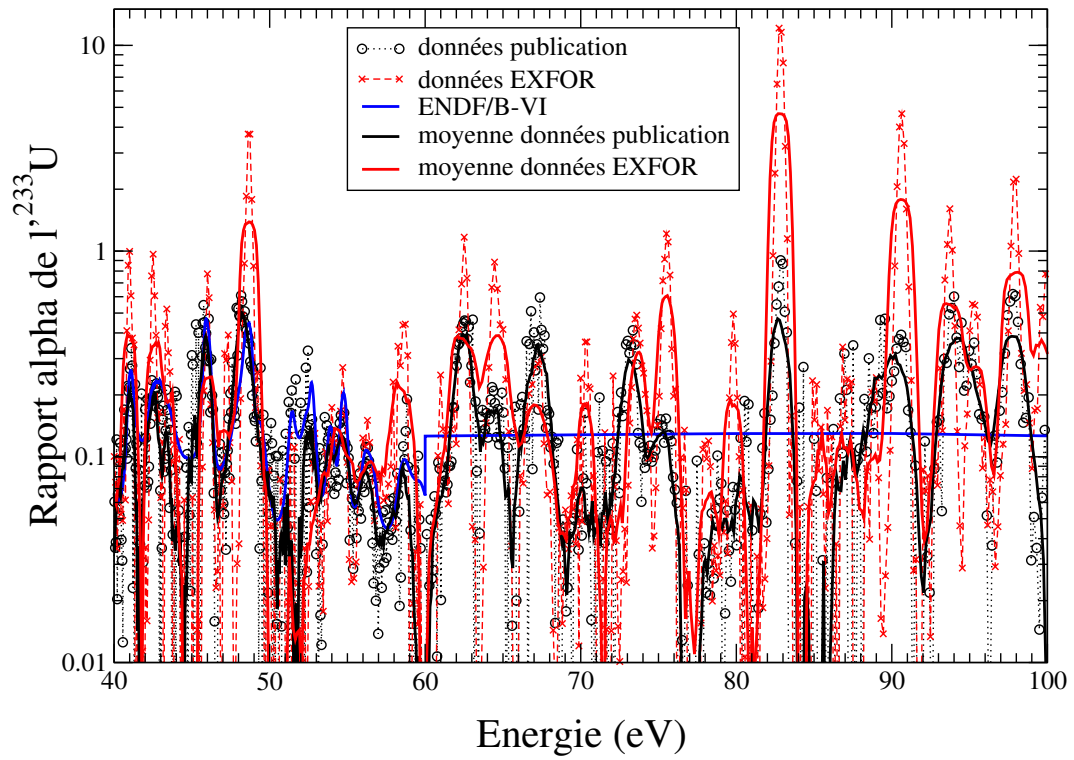


FIG. B.19 – Rapport  $\alpha$  de  $l^{233}\text{U}$  entre 40 eV et 100 eV.

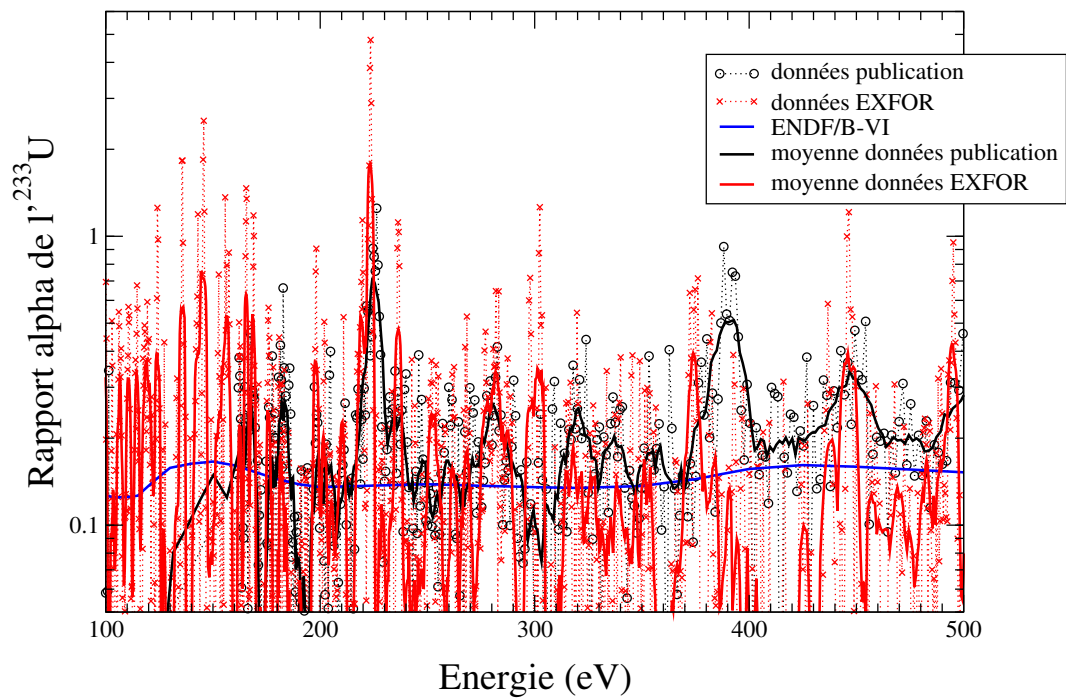


FIG. B.20 – Rapport  $\alpha$  de  $l^{233}\text{U}$  entre 100 eV et 500 eV.

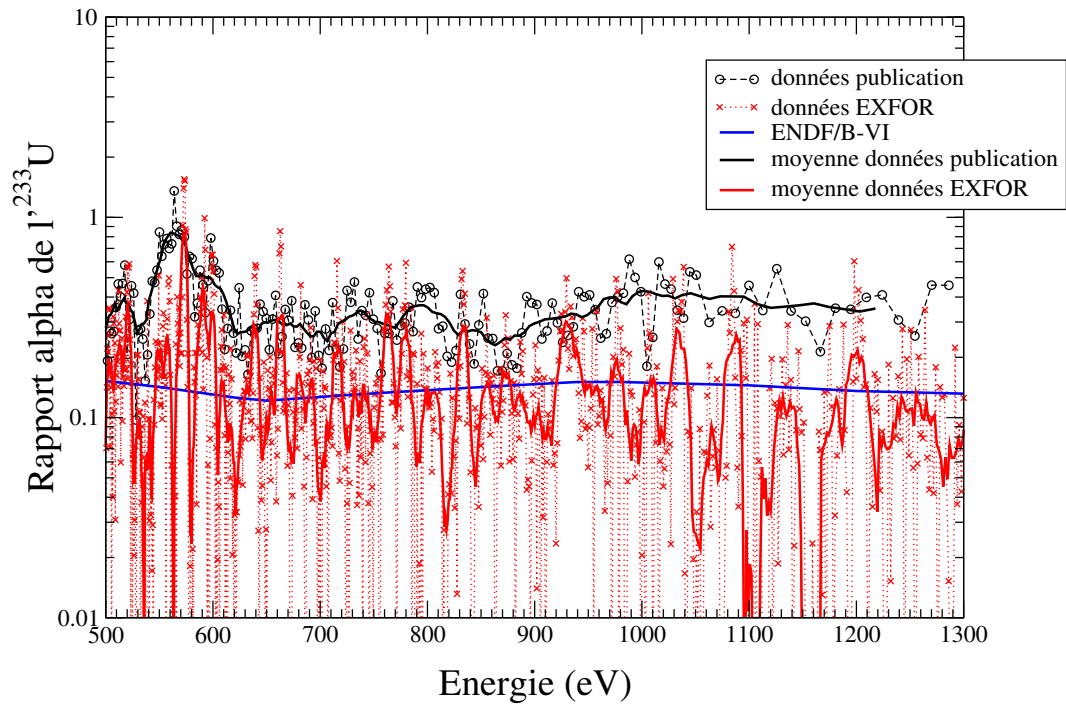


FIG. B.21 – Rapport  $\alpha$  de  $l^{233}\text{U}$  entre 500 eV et 1300 eV.

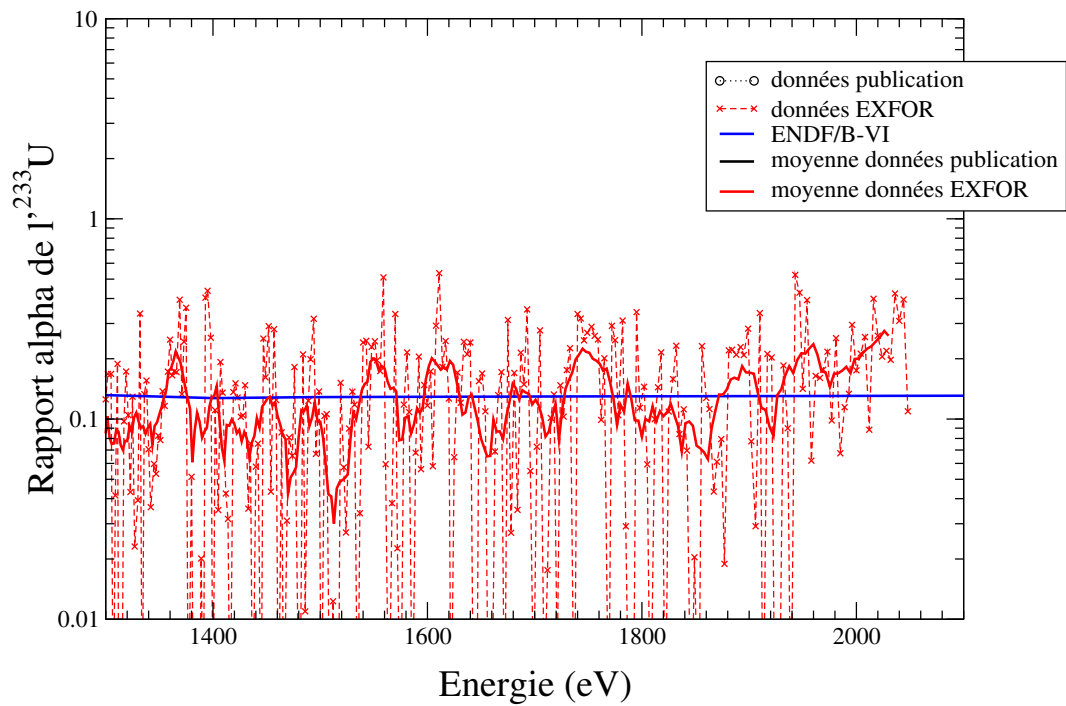


FIG. B.22 – Rapport  $\alpha$  de  $l^{233}\text{U}$  entre 1.3 keV et 2.1 keV.

## Annexe C

# Evaluation ENDF/B-VII des sections efficaces de capture et de fission de l' $^{235}\text{U}$

Dans cette évaluation, l'intégrale des sections efficaces de capture et de fission dans la zone des résonances sont respectivement de 276.04 barns et 140.49 barns. Ceci donne un rapport  $\alpha$  égal à 0.509, ce qui est en excellent accord avec les valeurs obtenues par les mesures expérimentales intégrales. De plus, les mesures expérimentales différentielles prises en compte dans l'analyse pour effectuer l'évaluation sont au nombre de 18 :

1. Mesure par transmission sur le temps de vol ORELA de 18 mètres, avec un échantillon d'épaisseur 0.03269 atoms/barn, refroidi à 77 K (de 0.4 eV à 68 eV) - Harvey et al. [HAR86]
2. Mesure par transmission sur le temps de vol ORELA de 80 mètres, avec un échantillon d'épaisseur 0.00233 atoms/barn, refroidi à 77 K (de 4 eV à 2.25 keV) - Harvey et al. [HAR86]
3. Mesure par transmission sur le temps de vol ORELA de 80 mètres, avec un échantillon d'épaisseur 0.03269 atoms/barn, refroidi à 77 K (de 4 eV à 2.25 keV) - Harvey et al. [HAR86]
4. Données de fission mesurée sur l'accélérateur linéaire RPI, à 8.4 mètres (de 0.02 eV à 20 eV) - Schrack et al. [SCH88]
5. Données de fission sur le temps de vol ORELA de 25.2 mètres (de 0.01 eV à 2.25 keV) - Saussure et al. [SAU66]
6. Données de capture sur le temps de vol ORELA de 25.2 mètres (de 0.01 eV à 2.25 keV) - Saussure et al. [SAU66]
7. Données de fission sur le temps de vol ORELA de 39 mètres (de 0.01 eV à 100 eV) - Perez et al. [PER73]
8. Données de capture sur le temps de vol ORELA de 39 mètres (de 0.01 eV à 100 eV) - Perez et al. [PER73]
9. Données de fission sur le temps de vol ORELA de 25.6 mètres (de 0.01 eV à 20 eV) - Gwin et al. [GWI84b]

10. Mesure par transmission sur le temps de vol ORELA de 18 mètres, avec un échantillon d'épaisseur 0.001468 atom/barn (de 0.01 eV à 1.0 eV) - Spencer et al. [SPE84]
11. Données de fission sur le temps de vol Geel de 18 mètres (de 0.001 eV à 1.0 eV) - Wagemans et al. [WAG88]
12. Données de capture sur le temps de vol ORELA (de 0.01 eV à 4.0 eV) - Gwin et al. [GWI96]
13. Données de fission sur le temps de vol ORELA (de 0.01 eV à 4.0 eV) - Gwin et al. [GWI96]
14. Données de fission sur le temps de vol ORELA de 18.9 mètres (de 14 eV à 2.25 keV) - Weston and Todd [?]
15. Données de  $\eta$  sur un temps de vol de 8 mètres (de 0.0018 eV à 1.0 eV) - Wartena et al. [WAR87]
16. Données de  $\eta$  (hacheur) (de 0.0015 eV à 0.15 eV) - Weigmann et al [WEI90]
17. Données de fission sur le temps de vol ORELA de 86.5 mètres (de 100 eV à 2.0 keV) - Weston and Todd [WES92]
18. Données de rendements de fission sur le temps de vol ORELA (de 0.01 eV à 50.0 eV) - Moxon et al. [MOX92]

## Annexe D

# Validation de MCTPF : Biais induit par le stragglings en fonction du choix du tirage des produits de fission

De nombreuses modifications au code ont été apportées au fur et à mesure des vérifications et de la compréhension des phénomènes existants. L'annexe suivante, un peu absconse, explique de façon très détaillée comment nous avons choisi le tirage des produits de fission. En effet, nous avons plusieurs possibilités : tirer un seul produit de fission dans  $2 \pi sr$  dans la chambre à fission, dans  $4 \pi sr$  ou encore tirer les deux produits de fission associés. Un effet particulier que l'on a nommé "effet stragglings", puisque ce dernier en est la cause principale, a été remarqué. C'est un effet très fin qui n'existe plus dans le cas où l'on choisit de tirer 1 seul produit de fission dans  $4 \pi sr$ . Cependant, cet effet, bien que négligeable par rapport à d'autres erreurs comme il est montré dans le chapitre 5, nous a permis de nous assurer de la bonne compréhension de notre code et de sa validité.

### D.1 Version initiale de MCTPF

Dans la version initiale du code, afin de simplifier le code et de limiter le temps de calcul, nous nous étions intéressés à un seul produit de fission (sur les deux produits émis à  $180^\circ$  l'un par rapport à l'autre) : nous choisissons celui émis dans  $2 \pi sr$  dans la "bonne direction" c'est-à-dire dirigé vers le gaz de la chambre et non pas vers l'aluminium composant le support de la cible. Cela correspond à une direction  $y > 0$  sur le schéma D.1. Une petite étude nous a permis de conclure qu'un léger biais dû au stragglings était alors introduit.

En effet, dans le cas de la géométrie précise et en tirant un seul produit de fission dans une direction choisie, nous relevons (pour 1 000 000 produits de fission émis) :

– Efficacité de sortie de cible :  $(97.71 \pm 0.20) \%$ <sup>1</sup>

---

<sup>1</sup>Les erreurs indiquées dans tout ce paragraphe sont les erreurs statistiques.

- Produits de fission restant dans la cible :  $(2.29 \pm 0.02) \%$
- Produits de fission qui, une fois le straggling pris en compte, ont une direction de propagation initiale permettant de sortir de la cible sans passer par l'aluminium (c'est-à-dire dirigée selon  $(+Oy)$ ) :  $(96.51 \pm 0.19) \%$ . Il y a donc  $3.49 \%$  des produits de fission qui ont été déviés par le straggling.
- Efficacité de dépôt d'énergie dans le gaz de la chambre :  $(95.26 \pm 0.19) \%$
- Produits de fission allant directement dans le gaz :  $(95.08 \pm 0.19) \%$  soit  $97.32 \%$  des produit de fission sortant de la cible
- Produits de fission allant dans le support de cible en aluminium en sortie de cible total :  $(2.62 \pm 0.02) \%$  soit  $2.68 \%$  des produit de fission sortant de la cible
- Produits de fission allant dans le support de cible en aluminium en sortie de cible et s'arrêtant dans l'aluminium :  $(2.44 \pm 0.02) \%$  soit  $93.14 \%$  des produits de fission allant dans le support de cible
- Produits de fission allant dans le support de cible en aluminium en sortie de cible et continuant dans le gaz :  $(0.180 \pm 0.004) \%$  soit  $6.86 \%$  des produit de fission allant dans le support de cible

Soit  $\beta$ , l'angle obtenu en projetant le vecteur direction, non pas initial (sinon dans la bonne direction) mais celui décalé du straggling, sur le plan  $(Oyz)$  (cf figure D.1). On relève la valeur du cosinus de l'angle entre ce vecteur projeté et l'axe  $(Oz)$  si le produit de fission a effectivement déposé de l'énergie dans le gaz à un moment ou à un autre de son parcours. Pour mieux connaître l'influence du straggling, nous traçons alors, pour les produits de fission qui déposent de l'énergie dans le gaz, le spectre de  $\cos(\beta)$  représenté en figure D.2. L'allure de la courbe se comprend parfaitement : nous avons quelques événements pour  $\cos(\beta) < 0$  dus à l'effet straggling. De plus, plus  $\beta$  tend vers  $\frac{\pi}{2}$ , plus il y a de produits de fission déposant de l'énergie dans le gaz. Le nombre de produits de fission émis selon  $\cos(\beta) < 0$  est de  $3.50 \%$ . Cette valeur correspond à celle trouvée précédemment et citée ci-dessus.

Il y a donc un nombre d'événements "effet straggling" importants. Nous devons impérativement le prendre en compte correctement dans le code de transport.

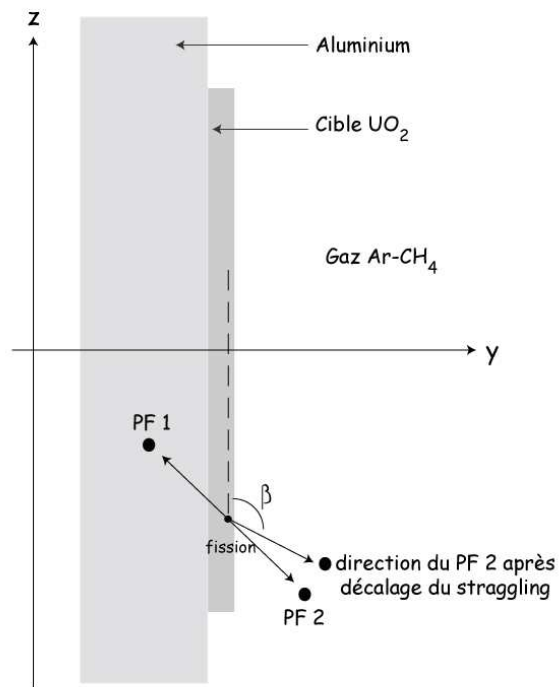


FIG. D.1 – Schéma simplifié de la cible contre son support en aluminium.

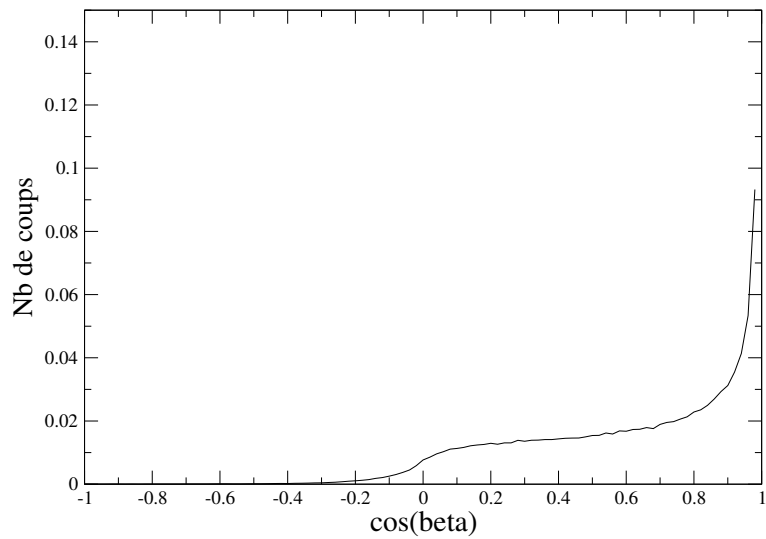


FIG. D.2 – Cas où il y a dépôt d'énergie dans la chambre, pour la chambre à fission carrée finale.  $P_{\text{gaz}} = 0.5 \text{ bar}$ .

## D.2 Modification de MCTPF

Dans la version initiale présentée jusque-là, nous nous étions intéressés, sur les deux produits de fission émis lors d'une seule fission, au seul produit de fission allant dans la "bonne direction" c'est-à-dire celle de sortie de cible : (+Oy). C'est ce qui explique l'erreur induite par le straggling et l'efficacité de dépôt d'énergie dans le gaz de la chambre. En effet, le code ne prend pas en compte les produits de fission qui partent dans la mauvaise direction proche de la surface de la cible et qui, par effet du straggling, peuvent quand même déposer de l'énergie dans le gaz. Donc la probabilité de déposer de l'énergie dans le gaz pour un événement de fission est bien de 97.7 % et non 95.3 %.

De plus, le code utilisé ne prend pas en compte deux autres phénomènes : les deux produits de fission peuvent, toujours par le straggling, déposer tous les deux de l'énergie dans le gaz ou au contraire il se peut qu'aucun des deux produits de fission ne dépose de l'énergie dans le gaz. Il faut donc modifier le code en imposant un nombre de fissions et non un nombre de produits de fission source. Nous nous intéressons alors aux deux produits de fission émis lors de la fission. Le choix de la direction n'importe plus.

Cependant, dans un tel cas, le deuxième produit de fission n'est pas quelconque. Si l'on note  $Z_1$ ,  $A_1$ ,  $E_1$ , respectivement, le numéro atomique, la masse atomique et l'énergie du premier produit de fission, alors le second produit de fission est caractérisé par :

- $Z_2 = Z_{fissile} - Z_1$
- $A_2 = A_{fissile} + 1 - (\text{nb de neutrons prompts émis lors de la fission}) - A_1$
- $E_2 = \frac{m_1}{m_2} * E_1$

Le nombre vde neutrons prompts émis lors de la fission est égal en moyenne à 2.5. Le tirage aléatoire de  $v$  se fait selon une loi de Poisson. Quant à l'énergie, on utilise la conservation de la quantité de mouvement (on néglige l'évaporation). Cependant, nous avons obtenu des  $(Z,A)$  ne correspondant pas à des produits de fission répertoriés dans la table de rendement de fission. En effet, nous avons trop simplifié le problème et nous n'obtenons pas les bonnes distributions en  $Z$  et en  $A$  pour le deuxième produit de fission.

Une autre modification possible du code, plus simple, plus efficace et demandant moins d'adaptation par rapport à la première version, consiste à ne prendre en compte que des "demi-fissions" c'est-à-dire que l'on ne s'intéresse qu'à un seul produit de fission dont la direction initiale est, cette fois-ci, quelconque ( $4 \pi sr$ ). Il suffira de renormaliser en multipliant les résultats par deux. Tous les résultats présentés par la suite sont obtenus avec cette version du code.

Ainsi, pour 1 000 000 produits de fission ayant une direction quelconque, nous relevons les valeurs suivantes :

- Efficacité de sortie de cible :  $(97.63 \pm 0.20) \%$



- Produits de fission restant dans la cible :  $(2.37 \pm 0.02) \%$
- Efficacité de dépôt d'énergie dans le gaz de la chambre :  $(49.02 \pm 0.12) \%$
- Produits de fission ayant une direction de propagation initiale non imposée permettant de sortir de la cible sans passer par l'aluminium, c'est-à-dire dirigée selon (+Oy) :  $(50.0 \pm 0.12) \%$
- Produits de fission qui, une fois le straggling pris en compte, ont une direction de propagation initiale permettant de sortir de la cible sans passer par l'aluminium, c'est-à-dire dirigée selon (+Oy) :  $(49.99 \pm 0.12) \%$ .

La différence entre les deux derniers résultats est nulle, à l'erreur statistique près. Cette différence nulle (contrairement aux 3.49 % obtenus précédemment) s'explique parfaitement : ici, nous prenons en compte les produits de fission qui n'allaient pas dans la bonne direction initialement mais qui, par le straggling, sont alors dirigés selon l'axe (+Oy). Nous nous attendions donc, avec cette version du code, à n'avoir aucun effet straggling. Les événements où les produits de fission sortent tous les deux de la cible compensent ceux où aucun des deux produits de fission émis par fission ne sortent. Il n'y a donc plus d'erreur introduite par le straggling.

- 50 % des produits de fission sortis de la cible déposent de l'énergie dans le gaz, à l'erreur statistique près. De plus, 50 % des produits de fission vont dans la bonne direction après le straggling. La différence, c'est-à-dire  $50.00 - 49.02 (= 0.98 \pm 0.24) \%$ , correspond aux produits de fission qui ne sortent pas de la cible et à ceux qui sortent avant de repartir dans la cible après un court parcours dans le gaz  $Ar - CH_4$ . Une simulation supplémentaire nous a permis d'estimer le nombre de ces derniers événements. Nous en avons  $(1.11 \pm 0.01) \%$ . Nous avons aussi distingué les produits de fission qui vont dans l'aluminium avant de revenir dans la cible :  $(0.46 \pm 0.01) \%$ , de ceux qui vont dans le gaz  $Ar - CH_4$  :  $(0.65 \pm 0.01) \%$ . Nous notons que, même à l'erreur statistique près, nous n'avons pas le même nombre de produits de fission qui reviennent dans la cible, qu'ils viennent de l'aluminium ou du gaz. Ce biais s'explique par le straggling. En effet, d'après les tables de parcours, le straggling dans le gaz est plus important que celui dans l'aluminium, proportionnellement au parcours. Les produits de fission sont donc plus déviés dans le gaz et "reviennent" plus facilement dans la cible. Sans ce biais, nous aurions  $50.00 - (0.98 - 0.65) - (0.65 + 0.46) / 2 \approx 49.12$ , inclus dans  $(49.02 \pm 0.12) \%$ . Ce biais est très faible et est "noyé" dans l'erreur statistique.
- Produits de fission allant directement dans le gaz :  $(48.71 \pm 0.12) \%$  soit 49.90 % des produits de fission sortants de la cible
- Produits de fission allant dans le support de cible en aluminium en sortie de cible :  $(48.92 \pm 0.1) \%$  soit 50.10 % des produits de fission sortants de la cible
- Produit de fission allant dans le support de cible en aluminium en sortie de cible et s'arrêtant dans l'aluminium :  $(48.61 \pm 0.12) \%$  soit 99.37 % des produits de fission allant dans le support de cible
- Produit de fission allant dans le support de cible en aluminium en sortie de cible et continuant dans le gaz :  $(0.308 \pm 0.006) \%$  soit 0.63 % des produit de fission allant dans le support de cible

De plus, nous traçons le spectre d'énergie déposée dans le gaz auquel nous superposons ceux obtenus dans le cas où les produits de fission s'arrêtent ou pas dans la chambre (cf figure D.3). Les spectres bidimensionnels "Energie en sortie de cible - énergie déposée dans le gaz  $Ar - CH_4$ " ont aussi été tracés : figure D.4 pour le spectre complet, figure D.5 pour les produits de fission qui s'arrêtent dans le gaz, et figure D.6 pour les produits de fission qui ne s'arrêtent pas dans le gaz.

Les spectres "Energie en sortie de cible - Energie déposée si arrêt" sont faciles à interpréter : les produits de fission déposent toute leur énergie dans le gaz, celle-ci étant égale à l'énergie de sortie de cible. D'où une seule droite pour le spectre bidimensionnel :  $y = x$ . Nous remarquons que, sur les spectres, il y a quelques événements pour lesquels l'énergie déposée est bien plus faible que celle en sortie de cible. Ceci s'explique par le straggling : il existe des produits de fission qui partent dans l'aluminium avant de traverser le gaz de la chambre. L'énergie de sortie de cible relevée ici n'est pas égale à l'énergie d'entrée dans le gaz. Le fait de tracer les spectres bidimensionnels "Energie en sortie de cible - Energie déposée si arrêt" et non les spectres bidimensionnels "Energie en entrée dans le gaz - Energie déposée si arrêt" nous a permis de mettre en évidence ce phénomène.

Les spectres "Energie en sortie de cible - Energie déposée si NON arrêt" s'expliquent aussi assez facilement. La zone où les produits de fission perdent une grande part de leur énergie est très peuplée. En effet, vu la géométrie de la chambre à fission, beaucoup de produits de fission partent en direction de l'électrode centrale. Les autres événements caractérisés par un faible dépôt d'énergie dans le gaz par rapport à l'énergie de sortie de cible, correspondent aux effets de bords (produits de fission qui ont une direction telle qu'ils sortent très rapidement de la chambre en n'ayant traversé que peu de gaz) ainsi qu'aux événements dus à l'effet straggling.

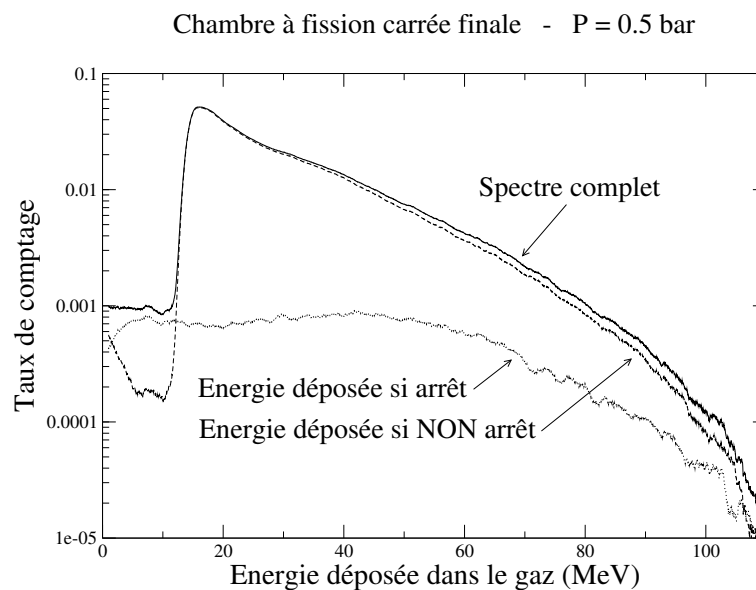


FIG. D.3 – Spectres d'énergie déposée dans le gaz, pour la chambre à fission carrée finale.  $P_{\text{gaz}} = 0.5$  bars.

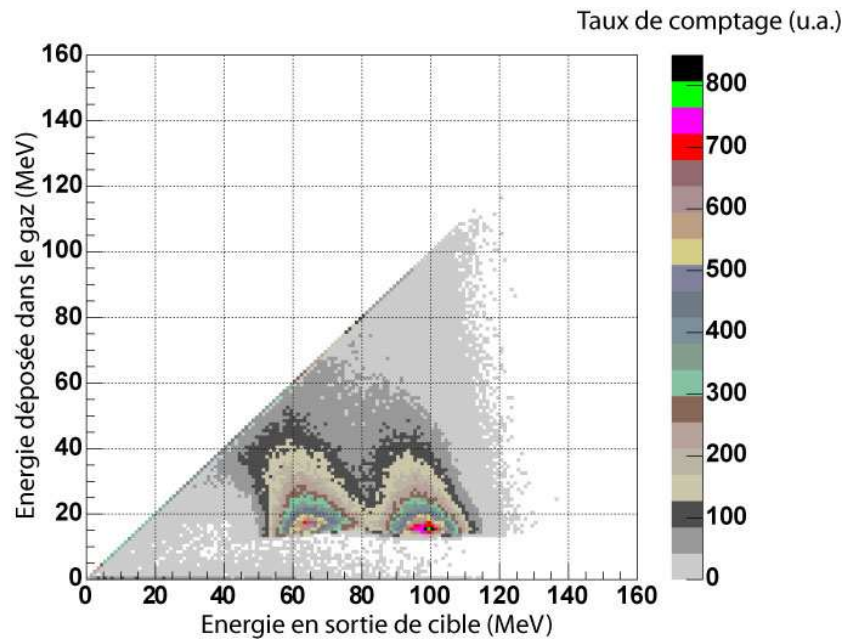


FIG. D.4 – Spectre bidimensionnel “Energie en sortie de cible - Energie déposée dans le gaz” pour le cas de la chambre à fission carrée finale.  $P_{\text{gaz}} = 0.5$  bar.

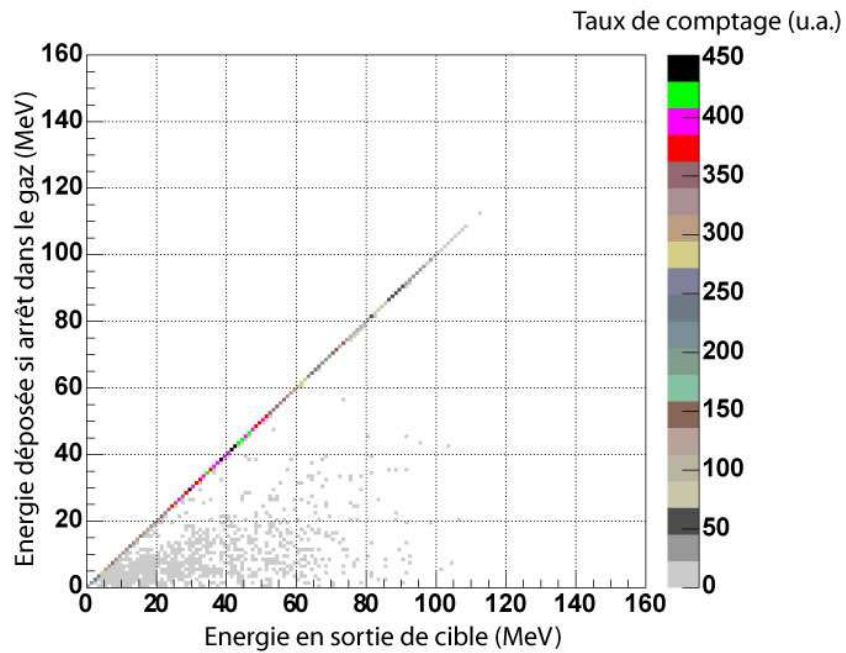


FIG. D.5 – Spectre bidimensionnel “Energie en sortie de cible - Energie déposée Si Arrêt dans le gaz” pour le cas de la chambre à fission carrée finale.  $P_{\text{gaz}} = 0.5$  bar.

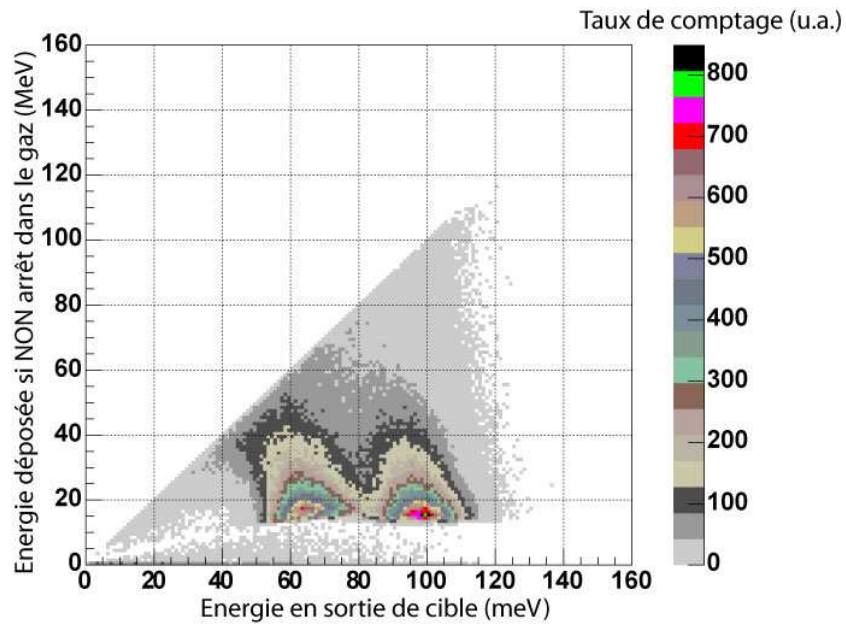


FIG. D.6 – Spectre bidimensionnel “Energie en sortie de cible - Energie déposée Si NON Arrêt dans le gaz” pour le cas de la chambre à fission carrée finale.  $P_{\text{gaz}} = 0.5$  bar.

### D.3 Conclusion

Pour conclure, nous choisissons de tirer toujours un seul produit de fission mais dans  $4 \pi$  sr. De cette façon, le code reste assez simple tout en n’introduisant pas de biais pour autant. Les spectres obtenus sont alors totalement expliqués. Vous noterez que les effets étudiés ici sont faibles, bien en deça de l’incertitude des tables de parcours. Cependant, il a été très important de comprendre finement les résultats de ce code pour le valider.

## Annexe E

# Validation de MCTPF : Influence de la géométrie de la chambre à fission et de la pression du gaz

Une façon de valider MCTPF est de vérifier que les spectres obtenus pour des géométries très différentes s'expliquent et ne présentent aucun résultat inattendu. Pour cela, nous avons tracé le spectre d'énergie déposée dans le gaz pour les deux types de chambre à fission (cylindrique et carrée<sup>1</sup>). Nous avons superposé le spectre des énergies initiales des produits de fission et le spectre des énergies en sortie de cible. De plus, nous avons tracé les spectres des énergies déposées dans le gaz pour les deux types de chambre à fission dans le cas où les produits de fission s'arrêtent effectivement dans le gaz et dans le cas où ils ne s'arrêtent pas.

Nous remarquons que les produits de fission déposent plus d'énergie dans le gaz à 8 bars qu'à 4 bars, quelle que soit la géométrie de la chambre. Ceci est parfaitement attendu. De plus, dans la chambre à fission cylindrique, il y a une épaisseur de gaz de 1 mm entre la cible d'UO<sub>2</sub> et l'électrode tandis que celle pour la chambre à fission carrée est de 2.5 mm dans cette simulation. Ceci explique le fait qu'il y a plus de produits de fission s'arrêtant dans le gaz dans la géométrie carrée que dans la géométrie cylindrique. Les produits de fission déposent plus d'énergie dans le gaz dans le cas de la chambre à fission carrée.

Nous retrouvons donc toutes les conclusions attendues. Tous les spectres sont parfaitement cohérents entre eux.

---

<sup>1</sup>Nous avons choisi le même gaz pour chacune de ces deux chambres : nous avons choisi celui de la chambre à fission cylindrique que nous avons à disposition. Il s'agit d'un mélange d'argon (96%) et d'azote (4%). On rappelle que la chambre à fission utilisée pour la mesure du rapport  $\alpha$  est remplie d'un mélange d'argon (90%) et de méthane (10%).

Cas de la chambre à fission cylindrique -  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

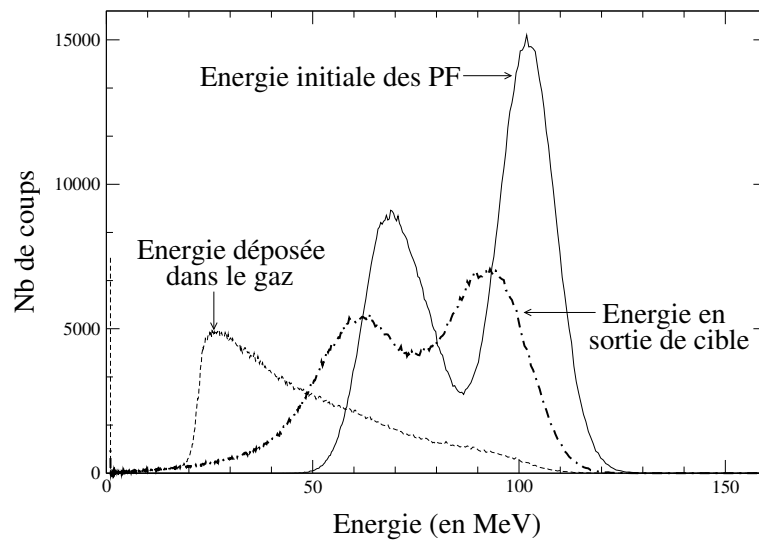


FIG. E.1 – Comparaison entre le spectre des énergies déposée par les produits de fission dans le gaz Argon-Azote et le spectre de leur énergie initiale dans le cas d’une chambre à fission cylindrique.  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

Cas de la chambre à fission carrée -  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

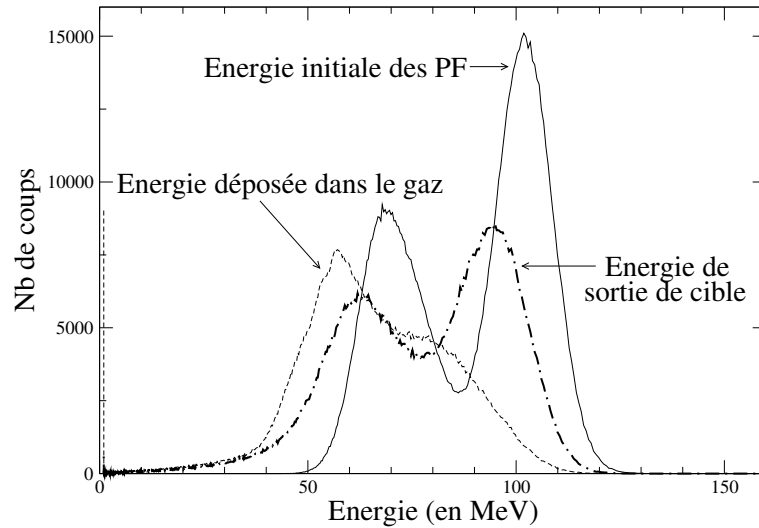


FIG. E.2 – Comparaison entre le spectre des énergies déposée par les produits de fission dans le gaz Argon-Azote et le spectre de leur énergie initiale dans le cas d’une chambre à fission carrée.  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

Cas de la chambre à fission cylindrique -  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

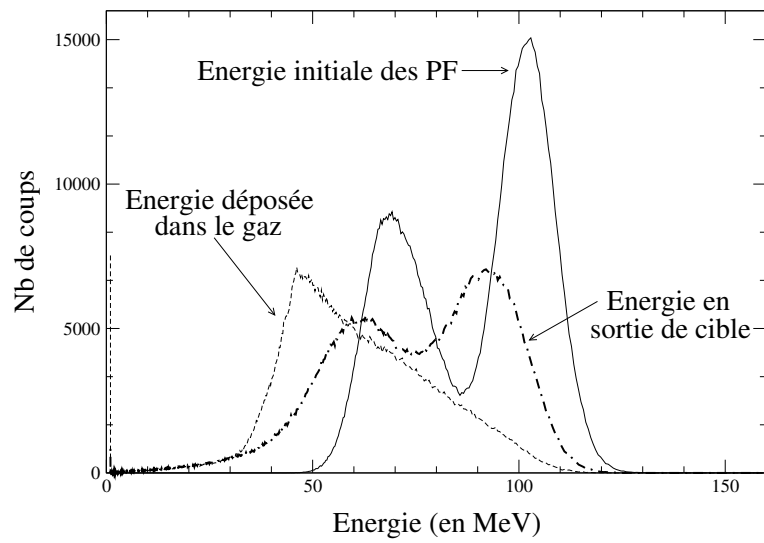


FIG. E.3 – Comparaison entre le spectre des énergies déposée par les produits de fission dans le gaz Argon-Azote et le spectre de leur énergie initiale dans le cas d’une chambre à fission cylindrique.  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

Cas de la chambre à fission carrée -  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

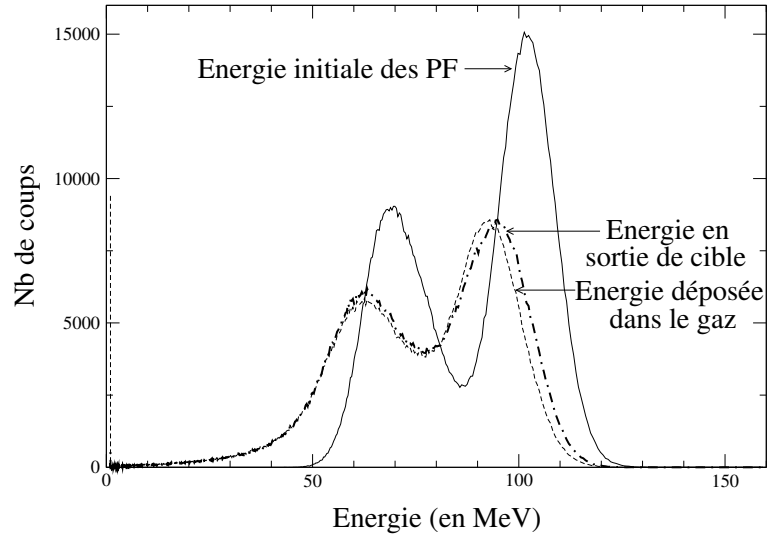


FIG. E.4 – Comparaison entre le spectre des énergies déposée par les produits de fission dans le gaz Argon-Azote et le spectre de leur énergie initiale dans le cas d’une chambre à fission carrée.  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

Cas de la chambre à fission cylindrique -  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

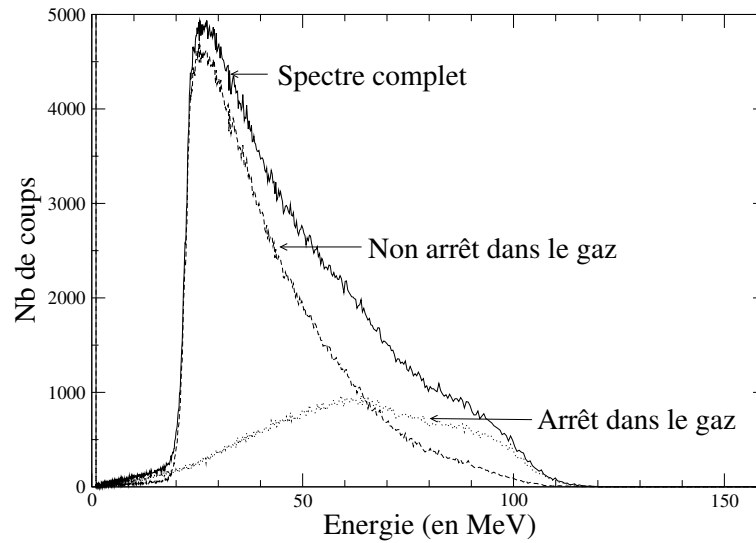


FIG. E.5 – Spectre des énergies déposée dans le gaz Argon-Azote par les produits de fission dans le cas de la chambre à fission cylindrique.  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

Cas de la chambre à fission carrée -  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars

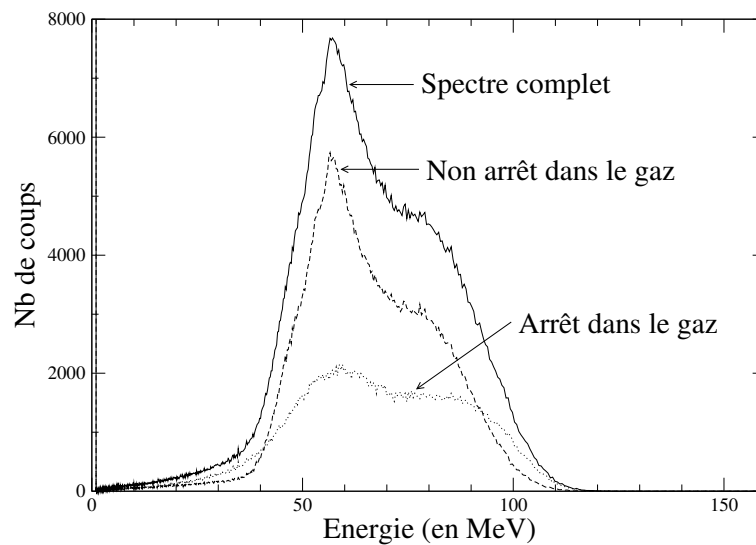


FIG. E.6 – carre\_PF\_spectreEdeposee

Spectre des énergies déposée dans le gaz Argon-Azote par les produits de fission dans le cas de la chambre à fission carrée.  $P_{\text{gaz}} = 4$  bars



Cas de la chambre à fission cylindrique -  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

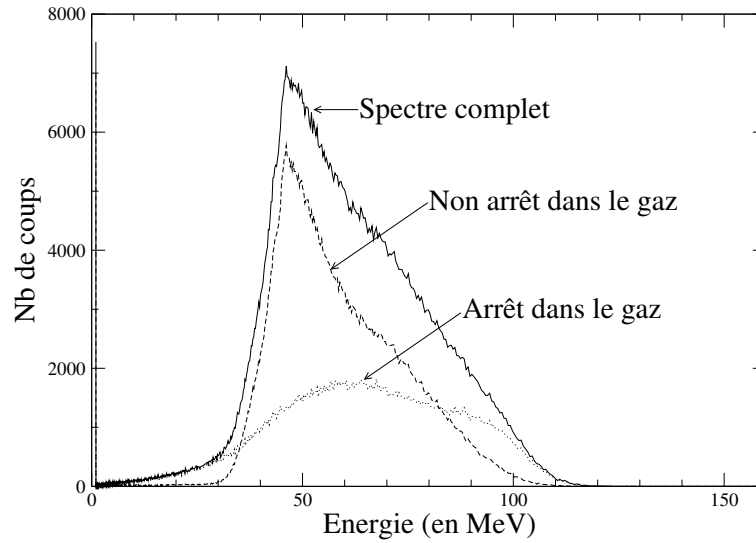


FIG. E.7 – Spectre des énergies déposée dans le gaz Argon-Azote par les produits de fission dans le cas de la chambre à fission cylindrique.  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

Cas de la chambre à fission carrée -  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

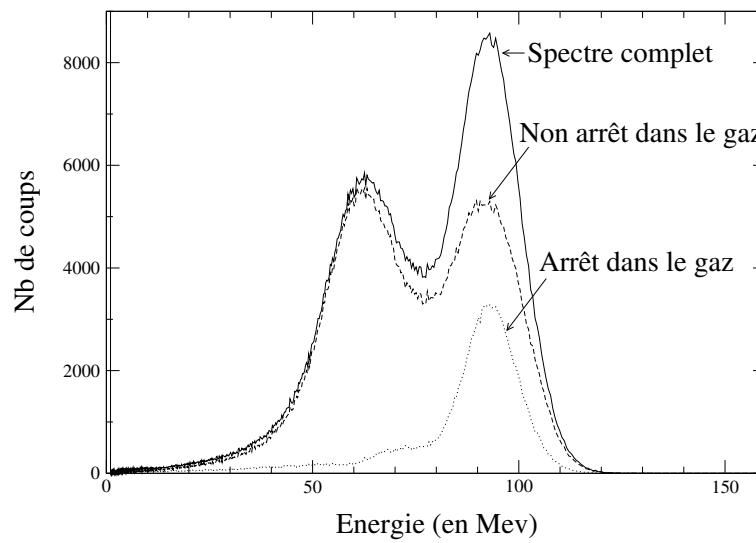


FIG. E.8 – Spectre des énergies déposée dans le gaz Argon-Azote par les produits de fission dans le cas de la chambre à fission carrée.  $P_{\text{gaz}} = 8$  bars

# Annexe F

## Validation de MCTPF : démonstration de la formule du stragglng latéral intermédiaire

Nous nous proposons dans cette annexe de démontrer la formule utilisée dans le chapitre 5 concernant le calcul du stragglng latéral lors d'un pas intermédiaire. Pour cela, nous cherchons la position de la particule au niveau du pas intermédiaire, de façon à ce que la position finale soit la même selon le trajet direct (1 seule étape) ou selon le trajet avec le calcul intermédiaire.

Pour simplifier l'écriture, nous posons les notations suivantes (cf figure F.1) :

Stragglng latéral ( $E_0 \rightarrow 0$ ) =  $AD = s_0$

Stragglng latéral ( $E_1 \rightarrow 0$ ) =  $AC = s_1$

Stragglng latéral inconnu ( $E_0 \rightarrow E_1$ ) =  $EI = l_{inconnu}$

Parcours( $E_0 \rightarrow 0$ ) =  $OA = d_0$

Parcours( $E_1 \rightarrow 0$ ) =  $IA = d_1$

Distance  $OI = l_{inconnu}$

Le problème initial se traduit par la condition suivante : à l'aide des données précédentes, nous cherchons le point E tel que le triangle ICA se transforme en triangle EDF (par rotation et translation uniquement), les points I, C, A et D étant connus par les relations ci-dessus. Du schéma F.1, nous pouvons écrire que :

$$\vec{OD} = \vec{OE} + \vec{ED}$$

ce qui peut s'écrire de la façon suivante :

$$\sqrt{d_0^2 + s_0^2} \cdot e^{i\alpha_0} = (l_{inconnu} + \sqrt{d_1^2 + s_1^2} \cdot e^{i\alpha_1}) \cdot e^{i\alpha_{inconnu}}$$

En prenant le module de cette équation, nous avons :

$$d_0^2 + s_0^2 = (l_{inconnu} + d_1)^2 + s_1^2$$

soit :

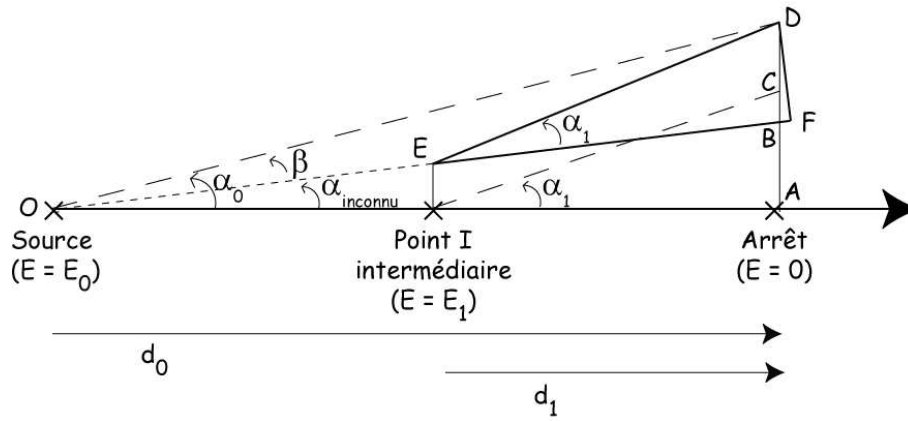


FIG. F.1 – Représentation d’une trajectoire d’une particule et du straggling latéral associé. La trajectoire de la particule est évaluée en trois points : à la source (énergie  $E_0$ ), en un point intermédiaire (énergie  $E_1$ ) et à la fin de son parcours (énergie nulle). Les stragglings latéraux sont également mentionnés.

$$l_{inconnu} = \sqrt{d_0^2 + s_0^2 - s_1^2} - d_1$$

Or, si les angles de déviation sont petits ( $s_0 \ll d_0$  et  $s_1 \ll d_1$ ), alors on retrouve la formule classique :

$$l_{inconnu} = d_0 - d_1 \quad (F.1)$$

Par ailleurs, nous avons :

$$\alpha_0^2 = \alpha_{inconnu}^2 + \beta^2$$

Or chacun de ces angles peut s’écrire de la façon suivante :

$$\beta = \arctan\left(\frac{s_1}{l + d_1}\right)$$

$$\alpha_0 = \arctan\left(\frac{s_0}{d_0}\right)$$

$$\alpha_{inconnu} = \arctan\left(\frac{EI}{l_{inconnu}}\right) = \arctan\left(\frac{S_{inconnu}}{l_{inconnu}}\right)$$

ce qui donne :

$$\left(\arctan\left(\frac{s_0}{d_0}\right)\right)^2 - \left(\arctan\left(\frac{s_1}{l_{inconnu} + d_1}\right)\right)^2 = \left(\arctan\left(\frac{S_{inconnu}}{l_{inconnu}}\right)\right)^2$$

Si on suppose que les angles de déviations sont petits ( $s_0 \ll d_0$  et  $s_1 \ll d_1$ ), alors on a :

$$\left(\frac{s_0}{d_0}\right)^2 - \left(\frac{s_1}{l + d_1}\right)^2 = \left(\frac{S_{inconnu}}{l}\right)^2$$

Or, l'équation F.1 nous donne l'expression de  $l_{inconnu}$ , toujours dans l'hypothèse où les angles sont petits. Nous obtenons :

$$\left(\frac{s_0}{d_0}\right)^2 - \left(\frac{s_1}{d_0}\right)^2 = \left(\frac{s_{inconnu}}{d_0 - d_1}\right)^2$$

Ce qui donne au final la formule utilisée pour le straggling latéral intermédiaire (cf chapitre 5 paragraphe 5.1.2.2) :

$$s_{inconnu} = \frac{d_0 - d_1}{d_0} \cdot \sqrt{s_0^2 - s_1^2}$$

# Annexe G

## Validation de MCTPF - autre version du code

Une version améliorée du code MCTPF a été développée. Bien qu'elle soit plus précise que celle exposée dans la thèse, elle n'a pas été utilisée à cause de sa difficulté de mise en oeuvre. Cependant, elle permet de mieux comprendre les problèmes induits par la prise en compte des stragglings et plus généralement par l'utilisation des tables de parcours de SRIM comme données d'entrée dans MCTPF. Cette annexe nous permet donc de mieux comprendre les divergences entre MCTPF et TRIM.

Par souci de simplification, nous utiliserons dans cette annexe deux abréviations :  $s_{lat}$  (respectivement  $s_{long}$ ) pour le stragglings latéral (respectivement longitudinal).

Entre la version du code MCTPF exposée dans le corps de la thèse et celle exposée ici, il n'y a aucun changement en ce qui concerne le stragglings latéral intermédiaire : Il est obtenu par la même formule que celle utilisée dans le chapitre 5 et démontrée dans l'annexe F. Il a pour expression :

$$s_{lat}(E_0 \rightarrow E_1) = \frac{\text{Parcours}(E_0 \rightarrow 0) - \text{Parcours}(E_1 \rightarrow 0)}{\text{Parcours}(E_0 \rightarrow 0)} \cdot \sqrt{s_{lat}^2(E_0 \rightarrow 0) - s_{lat}^2(E_1 \rightarrow 0)}$$

Le changement entre les deux versions du code provient de la prise en compte du stragglings longitudinal. Nous rappelons que, dans la version définitive de MCTPF (exposée dans le chapitre 5), la relation utilisée pour calculer le stragglings longitudinal intermédiaire  $s_{long}(E_0 \rightarrow E_1)$  pour une particule passant d'une énergie  $E_0$  à  $E_1$ , est la suivante :

$$s_{long}(E_0 \rightarrow E_1) = s_{long}(E_0 \rightarrow 0) - s_{long}(E_1 \rightarrow 0) \quad (\text{G.1})$$

Dans la nouvelle version exposée dans cette annexe, nous supposons que le stragglings longitudinal intermédiaire est obtenu par :

$$s_{long}(E_0 \rightarrow E_1) = \sqrt{s_{long}^2(E_0 \rightarrow 0) - s_{long}^2(E_1 \rightarrow 0)} \quad (\text{G.2})$$

Cette formule est issue du principe qu'une somme de distributions gaussiennes de largeurs  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  est une distribution gaussienne de largeur  $\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$ . Cependant, cette expression conduit à des résultats extrêmement dispersés par rapport à ceux indiqués par TRIM. Pour comprendre d'où provient cette dispersion, nous allons comparer les distributions de parcours d'une particule donnée et selon un axe de propagation fixé. Dans cette annexe, nous allons prendre, à titre d'exemple, le cas d'une particule  $\alpha$  de 4.4 MeV émise au centre d'un bloc d' $^{235}\text{UO}_2$  suffisamment épais pour que la particule s'arrête dans le matériau.

Dans un premier temps, intéressons nous seulement à ce qui se passe selon l'axe de propagation du produit de fission (axe X). La figure G.1 nous montre les distributions des parcours selon l'axe de propagation de la particule transportée (axe X) obtenues par MCTPF et par TRIM. Dans MCTPF, nous utilisons les tables de SRIM c'est-à-dire que nous n'avons accès qu'à la valeur moyenne (interprété comme le parcours dans le programme) et à l'écart-type (interprété comme le straggling longitudinal) des parcours des particules. Nous modélisons donc la distribution des parcours par une gaussienne caractérisée par ces deux valeurs issues des tables. Par contre, la distribution indiquée par TRIM est différente de celle donnée par MCTPF. La distribution donnée par TRIM n'est absolument pas gaussienne : la figure G.1 montre une queue de distribution pour les bas parcours.

Par construction, les valeurs moyennes des distributions obtenues par l'intermédiaire de MCTPF ou de TRIM sont les mêmes. Par contre, du fait de cette asymétrie dans TRIM, les valeurs maximales ne correspondent pas. De plus, l'écart-type total de la distribution est beaucoup trop élevé par rapport à celui que l'on pourrait calculer en ne s'intéressant qu'au côté droit de la distribution, c'est-à-dire au côté réellement gaussien. Dans l'exemple décrit dans cette annexe, l'écart-type donné par les tables (SRIM), et donc utilisé par MCTPF, est quatre fois plus grand que celui relevé dans TRIM si on ne considère que le côté droit de la distribution. Deux termes correctifs sont nécessaires pour que la valeur maximale et l'écart-type correspondent entre TRIM et MCTPF (donc SRIM). Ainsi, avec ces termes correctifs pour chaque table de parcours, nous pouvons corriger cette effet de dispersion et de décalage dus au fait que les distributions ne sont pas gaussiennes dans la réalité. Le terme de correction de la dispersion longitudinale est calculé en prenant en compte la partie droite de la distribution donnée par TRIM, partie supposée purement gaussienne. Le terme de correction sur la valeur maximale (sur le parcours finalement) est calculé en superposant la valeur maximale de MCTPF sur celle de TRIM. Sur la figure G.1, la valeur maximale pour la distribution donnée par MCTPF (respectivement TRIM) est de 9.80 (respectivement 9.47). Le facteur correctif est donc de 1.0349.

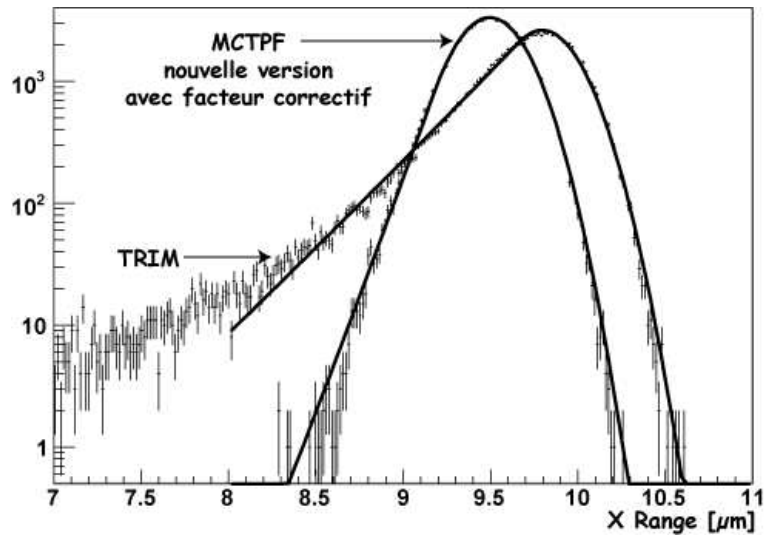


FIG. G.1 – Positions longitudinales d’arrivée pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans de l’UO<sub>2</sub>, obtenues avec TRIM et avec MCTPF, nouvelle version. Pour plus de lisibilité, la distribution obtenue grâce à MCTPF est déjà corrigée d’un terme correctif pour l’écart-type. En effet, sans cette correction, l’écart-type obtenu par MCTPF est 4 fois supérieur à celui de TRIM. Les deux autres termes correctifs, à savoir le facteur correctif sur le parcours et celui sur le straggling latéral, ne sont pas pris en compte.

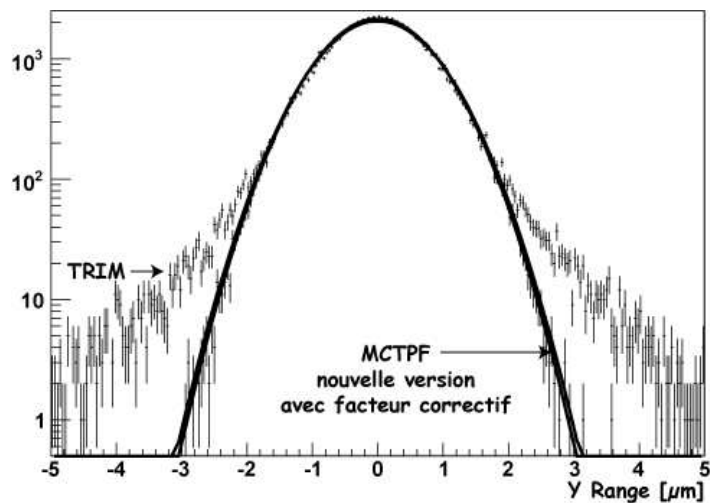


FIG. G.2 – Positions latérales d’arrivée pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans de l’UO<sub>2</sub>, obtenues avec TRIM et avec MCTPF, nouvelle version. Aucun terme correctif n’est pris en compte.

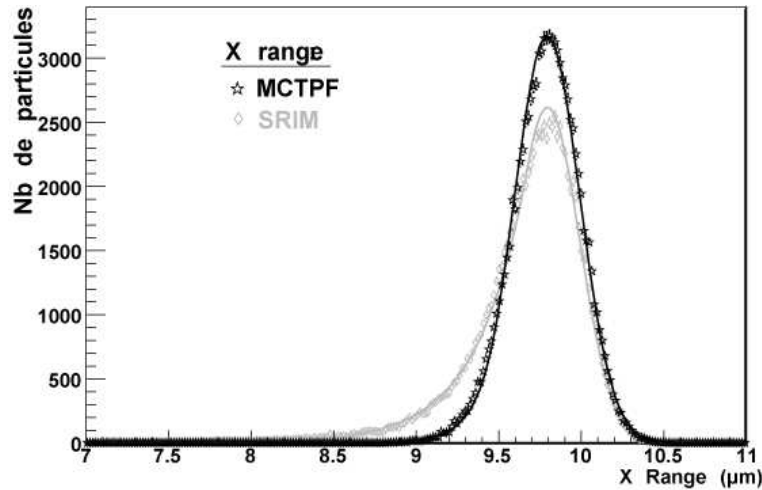


FIG. G.3 – Positions longitudinales d’arrivée pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans de l’ $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF. La cible d’ $\text{UO}_2$  est suffisamment épaisse pour que toutes les particules  $\alpha$  s’y arrêtent. La distribution obtenue par MCTPF et présentée sur cette figure est obtenue avec les 3 termes correctifs pris en compte. Ainsi, les valeurs maximales et les écarts-types des distribution de MCTPF et de TRIM sont égales.

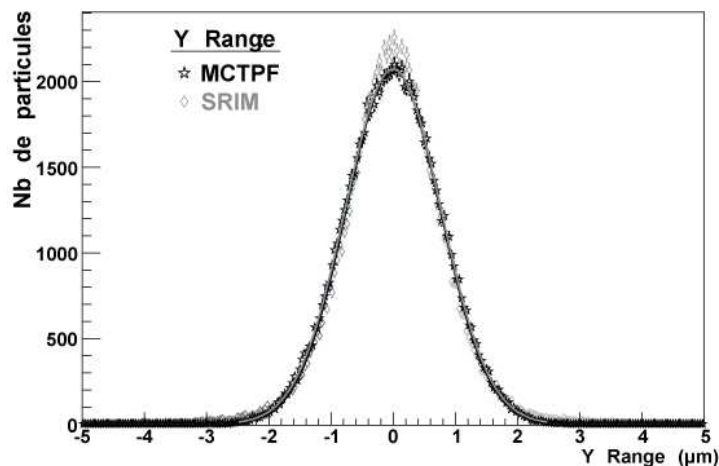


FIG. G.4 – Positions latérales d’arrivée pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans de l’ $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF. La cible d’ $\text{UO}_2$  est suffisamment épaisse pour que toutes les particules  $\alpha$  s’y arrêtent. La distribution obtenue par MCTPF et présentée sur cette figure est obtenue avec les 3 termes correctifs pris en compte. Ainsi, les valeurs maximales et les écarts-types des distribution de MCTPF et de TRIM sont égales.

Le raisonnement est identique pour les distributions des parcours selon un axe perpendiculaire à l’axe de propagation de la particule, hormis que la valeur moyenne est dans tous les cas égale à zéro. La distribution indiquée par TRIM n’est pas purement gaussienne. Ainsi, le straggling (correspondant à l’écart-type) est surestimé dans SRIM. Un terme correctif est alors indispensable pour éviter un effet de dispersion.



Pour résumer trois termes correctifs sont indispensables pour que les valeurs maximales (correction sur le parcours) et les valeurs de dispersions longitudinales et latérales (correction sur les stragglings longitudinal et latéral) soient égales entre TRIM et MCTPF.

Dans l'exemple étudié dans cette annexe, le parcours est corrigé d'un facteur 1.0349 ( $= \frac{9.80}{9.47}$ ) tandis que le stragging longitudinal (resp. latéral) est modifié d'un facteur 0.2414 (resp. 0.8343). Les distributions des positions longitudinales (respectivement latérales) d'arrivée pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans de l' $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF sont représentées sur la figure G.3 (respectivement G.4). Nous remarquons que les distributions des positions longitudinales obtenues grâce à TRIM et à MCTPF sont similaires sur la partie droite des courbes (parcours supérieur à  $9.8 \mu\text{m}$ ). Par contre, il resterait à introduire un terme prenant en compte l'asymétrie de la distribution pour obtenir des distributions parfaitement superposables entre TRIM et MCTPF. En ce qui concerne les différences à propos du stragging latéral, comme pour le stragging longitudinal, il serait indispensable d'introduire un terme non gaussien.

Nous avons aussi tracé d'autres spectres pour vérifier la validité de ces résultats. Le spectre d'énergie de sortie de cible pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans  $5 \mu\text{m}$  d' $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF est indiqué sur la figure G.5. La distribution des positions latérales de sortie de cible (cible de  $5 \mu\text{m}$  d'épaisseur) pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans de l' $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF est représentée sur la figure G.6. Nous retrouvons les mêmes conclusions que pour les figures G.3 et G.4. Les facteurs correctifs, qui ont été calculés sur les distributions de parcours, donnent aussi de bons résultats pour la distribution en énergie et en parcours à une distance fixée. Ceci nous permet de vérifier que l'introduction de ces termes correctifs donnent des résultats cohérents quels que soient le spectre tracé et la variable étudiée. Cette nouvelle version de MCTPF (utilisation de la formule G.2 et introduction de trois termes correctifs) donne des résultats beaucoup plus proches de ceux de TRIM que la version de MCTPF décrite dans le corps de la thèse. Toutefois, les résultats obtenus avec TRIM et MCTPF restent divergents de par la non prise en compte de l'asymétrie des distributions.

Pour la version de MCTPF exposée dans le corps de la thèse, nous avons préféré la formule G.1 plutôt que la formule G.2 concernant le stragging longitudinal. Ce choix s'explique facilement. Si l'on décide d'utiliser la formule G.2, nous pouvons corriger cet effet de dispersion moyennant l'introduction d'un terme correctif pour chaque table de parcours. Il resterait pour être très précis à ajouter un terme correctif supplémentaire permettant de prendre en compte l'asymétrie de la distribution. Nous remarquons qu'il est très difficile de corriger toutes les tables de parcours (autant que d'ions transportés pour chacun des matériaux traversés) de trois termes correctifs chacune. De plus, ces termes correctifs sont estimés à partir des distributions obtenus dans TRIM seulement, et non pas SRIM. Or, les tables de SRIM et de TRIM ne sont pas les mêmes : celles de SRIM sont calculées pour chaque particule tandis que les tables utilisées dans TRIM sont calculées uniquement à partir de celles

du proton. De plus, des corrections à partir de données expérimentales sont effectuées dans les tables de SRIM. Un écart entre les résultats donnés par TRIM et ceux de MCTPF est donc inévitable de par ces différences de tables de parcours, plus précises dans le cas de SRIM donc de MCTPF. Enfin, même avec de telles modifications, les asymétries des distributions ne sont pas prises en compte et le résultat final resterait entâché de cette imperfection.

Pour conclure, utiliser la nouvelle formule du stragglings longitudinal (cf formule G.2) semble plus “naturel” a priori. Toutefois, il n’est pas raisonnable de le faire : de très nombreux termes correctifs, de surcroît calculés avec une précision difficilement estimable, sont à introduire dans le code.

L’utilisation de la formule G.1 reste un bon compromis entre simplicité et précision. Néanmoins, les résultats obtenus dans MCTPF seront moins dispersés que ceux obtenus dans TRIM. Cela va donc revenir à surestimer le terme de résolution dans nos simulations. L’effet d’asymétrie ne sera pas simulé, ce qui explique les différences de trajectoires (cf figure G.7).

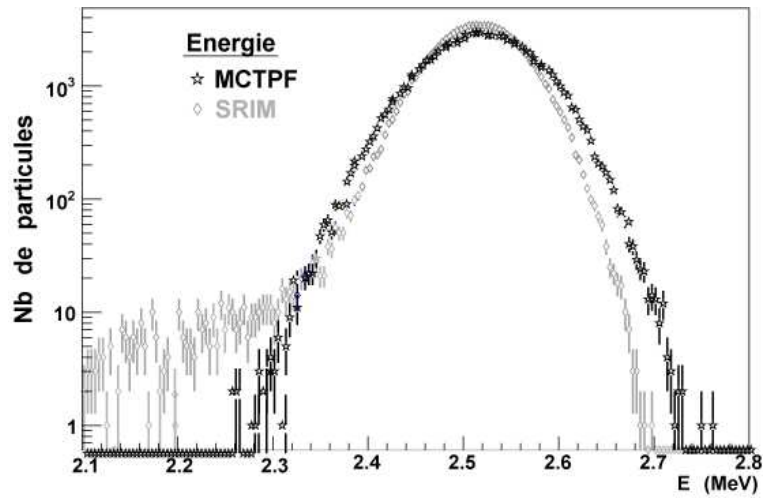


FIG. G.5 – Energie de sortie de cible pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans 5  $\mu\text{m}$  d' $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF. La distribution obtenue par MCTPF et présentée sur cette figure est obtenue avec les 3 termes correctifs pris en compte.

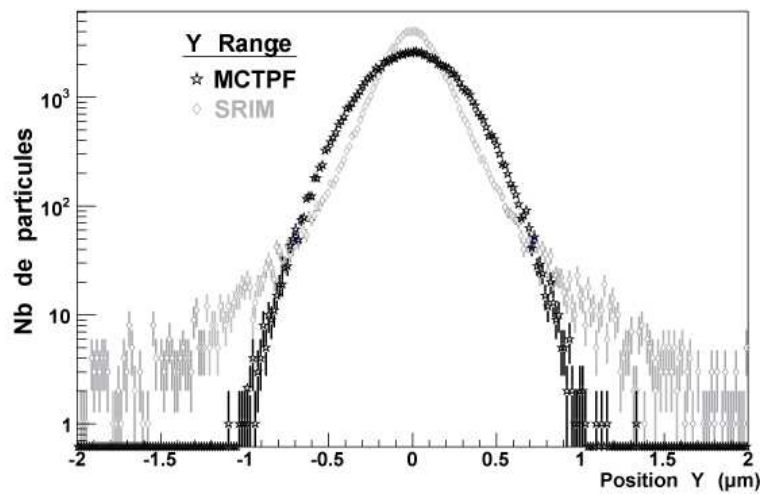


FIG. G.6 – Positions latérales de sortie de cible pour des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans 5  $\mu\text{m}$  d' $\text{UO}_2$ , obtenues avec TRIM et avec MCTPF. La distribution obtenue par MCTPF et présentée sur cette figure est obtenue avec les 3 termes correctifs pris en compte.

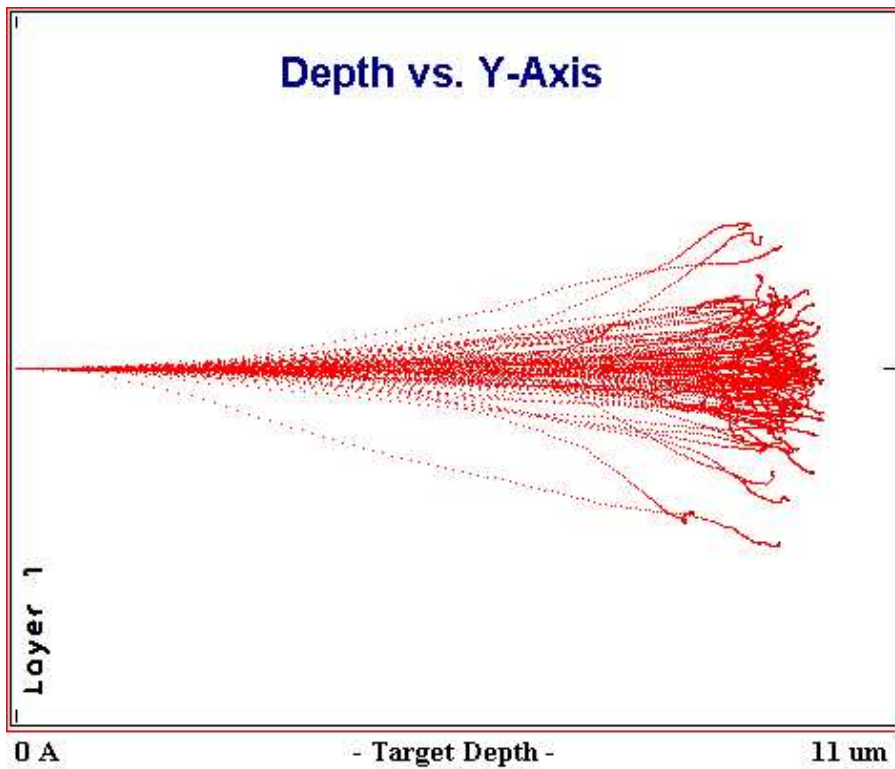
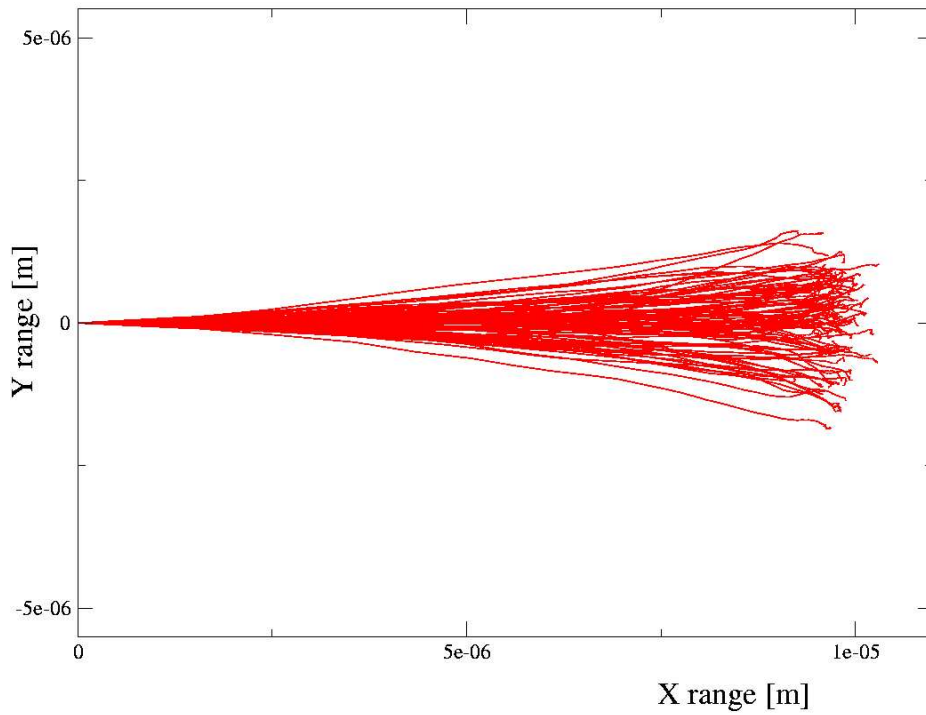


FIG. G.7 – Trajectoires des particules  $\alpha$  de 4.4 MeV dans une épaisseur suffisantes d' $\text{UO}_2$  pour que les particules s'arrêtent. La figure du haut donnent les trajectoires calculées par MCTPF avec les 3 termes correctifs pris en compte tandis que la figure du bas représente les trajectoires obtenues grâce au logiciel TRIM.

# Annexe H

## Fabrication et caractérisation des cibles

### $d^{235}\text{U}$ et $d^{233}\text{U}$

Dans cette annexe, nous avons récapitulé, dans une première partie, l'ensemble des informations concernant les cibles : dimensions, matériaux, support de cible utilisé et fabrication. Un paragraphe concernant les problèmes liés à la radioprotection termine cette partie. Puis, dans la deuxième section, nous donnons une description plus exhaustive du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation des cibles que celle présentée dans le chapitre 5. Enfin, nous détaillons le calcul d'angle solide.

## H.1 Caractéristiques des cibles

### H.1.1 Caractéristiques géométriques des cibles

### H.1.2 Matériau utilisé

#### H.1.2.1 Uranium 233

L' $^{233}\text{U}$  a été acheté à l'IRMM (GEEL-Belgique). Il a été livré sous la forme d'une poudre d'oxyde ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ). Il y en avait 33.35 mg, l'activité  $\alpha$  étant alors de  $1.19\text{e}7$  Bq. La composition de l' $^{233}\text{U}$  indiquée par le fournisseur est la suivante (% molaire) :

- U-232 : 0
- U-233 : 99.94887
- U-234 : 0.05
- U-235 : 0.001
- U-236 : 0
- U-238 : 0.00013

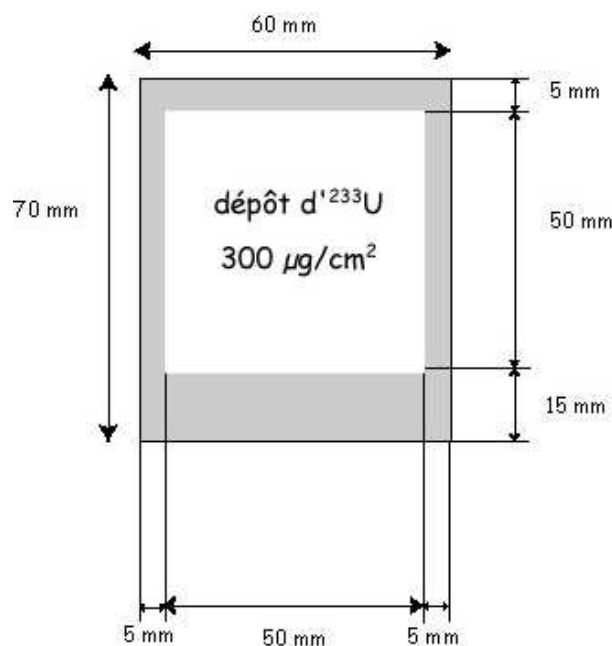


FIG. H.1 – Caractéristiques géométriques des cibles utilisées.

### H.1.2.2 Uranium 235

L' $^{235}\text{U}$  utilisé pour fabriquer nos cibles provient d'anciennes cibles faites pour les mesures à n-ToF par le groupe Données Nucléaires de l'IPNO. La composition de l' $^{235}\text{U}$  a été mesurée par spectrométrie de masse. Elle est la suivante :

- $^{234}\text{U} / ^{235}\text{U}$  :  $0.007472 \pm 0.000015$
- $^{236}\text{U} / ^{235}\text{U}$  :  $0.002696 \pm 0.000005$
- $^{238}\text{U} / ^{235}\text{U}$  :  $0.06283 \pm 0.00006$

### H.1.3 Support de cible en aluminium

Le choix des supports de cibles (matériau, épaisseur, état et pureté du matériau) a été le résultat d'un compromis entre les spécifications des radiochimistes de l'IPNO et les nôtres.

Afin que les radiochimistes puissent effectuer l'électrodéposition, le matériau composant le support de cible doit être conducteur. Il est préférable qu'il supporte les hautes températures puisque les radiochimistes sont parfois amenés à chauffer le dépôt pour améliorer son adhérence. L'aluminium répond à ces critères. De plus, il est transparent aux neutrons, relativement peu cher et non toxique. Il a donc rapidement été préféré aux autres matériaux.

La détermination de l'épaisseur des feuilles d'aluminium s'est faite selon plusieurs critères : tout d'abord, nous voulons pouvoir insérer les cibles dans la chambre à fission en les faisant coulisser dans un système de glissière. Les feuilles doivent être assez rigides pour cela. De plus, il ne faut absolument pas que ces feuilles, sur lesquelles est déposée de l'uranium, puissent se déchirer. Cependant,

les radiochimistes ont besoin de feuilles assez fines afin de pouvoir assurer l'étanchéité lors du dépôt par électrolyse. Le taux de pureté et le traitement de l'aluminium (laminé ou recuit) induisent des différences importantes sur la tenue mécanique de ces feuilles. Ainsi, les feuilles dans l'état recuit sont plus "souples" que dans l'état laminé, tout comme les feuilles très pures.

Le dernier critère est celui du coût : bien que nous voulions des feuilles d'aluminium le plus pur possible, il a fallu faire un compromis entre le taux de pureté et le prix des feuilles d'aluminium.

Le choix s'est finalement porté sur les feuilles ayant les caractéristiques suivantes (en ppm) :

- GoodFellow - aluminium AL000540
- Epaisseur : 0.09 mm ( $\pm 10\%$ )
- Pureté : 99.99 %
- Etat : recuit
- Taille : 100\*100 mm (+ 2 % / - 1 %)
- Analyse donnée par GoodFellow : Ca : 1 ppm , Cu : 10 ppm, Fe : 30 ppm, Ga : 3 ppm, Mg : 20 ppm, Na : 3 ppm, Si : 20 ppm

La taille des feuilles est de 100 mm\*100 mm (+ 2% - 1%). En effet, notre cible finale est de 60 mm par 65 mm. Mais il est plus facile d'avoir un plus grand support de cible pour déposer l'uranium et pour effectuer la cartographie des cibles. La découpe aux bonnes dimensions est faite sous boîte à gants en chimie chaude à Orsay.

#### **H.1.4 Comment sont fabriquées de telles cibles ?**

La fabrication des cibles par les radiochimistes est très délicate. La matière manipulée étant radioactive, tout le travail est effectué en boîte à gants.

Les radiochimistes dissolvent l'oxyde d'uranium avant de faire le dépôt par électro-déposition sur la feuille d'aluminium. L'électro-déposition se fait dans un solvant organique (isopropanol), rendu conducteur par de l'acide nitrique. La feuille d'aluminium sur laquelle se dépose le matériau sert directement de cathode. En effet, le dépôt se fait entre deux entretoises en téflon taillées aux dimensions exactes des cibles qui "pincent" la feuille d'aluminium. L'épaisseur de cette feuille étant assez importante (~ 0.1 mm), cela peut induire des problèmes d'étanchéité.

L'électro-déposition étant une opération extrêmement délicate, une cible d' $^{233}\text{U}$  s'est avérée très inhomogène une fois terminée. Les radiochimistes ont dû récupérer la matière de cette cible et recommencer une électro-déposition pour faire une nouvelle cible d'épaisseur plus régulière. Cette technique est assez efficace : lors du dépôt de l' $^{233}\text{U}$ , il ne faut prendre en compte qu'une légère perte de matière (environ quelques pourcents). Dans notre cas, 4.3 mg ont été perdus dans les effluents lors des trois dépôts nécessaires pour fabriquer les deux cibles d' $^{233}\text{U}$ .

## H.1.5 Problèmes liés à radioprotection

### H.1.5.1 Détention de matières radioactives

Les formalités administratives pour acheter, importer et transporter de l' $^{233}\text{U}$  à 99.95 % de pureté sont lourdes puisque c'est un matériau considéré comme stratégique (élément fissile). Il nous a fallu environ une année entre le devis et la réception de l'uranium. En effet, nous avons eu besoin de faire une demande d'autorisation de détention de l' $^{233}\text{U}$  auprès de l'Autorité de Sûreté Nucléaire avec justification de notre besoin en  $^{233}\text{U}$ . Il a fallu environ 6 mois pour avoir la première autorisation provisoire. Une fois la commande passée, il a fallu environ 12 semaines pour que notre fournisseur, l'IRMM (Institute for Reference Materials and Measurements), obtienne une licence d'exportation.

### H.1.5.2 Transport

Tous les transports ont été organisés par la cellule logistique de l'IN2P3. Il nous suffisait de déclarer de façon extrêmement précise les objets transportés (taille, poids, activité, prix, ...) ainsi que le type des colis. Les agents de sûreté des laboratoires expéditeur et receveur ont systématiquement déclaré tous les mouvements de matières à chaque fois qu'il y a eu un transport.

Pour le transport de la poudre d' $^{233}\text{U}$  provenant de l'IRMM (Geel) pour aller au LPSC (Grenoble) et le transport du LPSC à l'IPNO, un colis de type A a été nécessaire. En effet, le seuil en deçà duquel nous pouvons déclarer un transport de type "excepté" est, pour l' $^{233}\text{U}$ , de 6 MBq. Nous avons donc déclaré des transports de matières radioactives en colis type A pour fissiles exceptés (UN 2915). Par contre, pour le retour des cibles et de la poudre de l'IPNO à Grenoble, nous avons seulement déclaré trois transports exceptés (UN 2910) : un pour chaque boîte contenant les deux cibles d'un même isotope et un troisième pour le reste de poudre. En effet, chaque colis contenait une très faible quantité de matière radioactive (en deçà des seuils) et le débit de dose à l'extérieur du colis était nul.

Afin de savoir dans quelle catégorie nous devons déclarer le transport de cette poudre de nitrate d' $^{233}\text{U}$  et afin de déclarer correctement les mouvements de matières dangereuses, les radiochimistes d'Orsay ont dû mesurer la quantité de poudre d' $^{233}\text{U}$  restante. En effet, il y a eu des pertes lors du dépôt. Ces pertes sont difficilement estimables mais elles sont aussi à déclarer puisque les effluents sont partis dans les déchets actifs. Une mesure par spectroscopie gamma nous indique qu'il reste 14.4 mg d' $^{233}\text{U}$  (sous forme de nitrate d'uranium). Une déclaration du colis en type excepté a donc été possible bien que le colis utilisé est le même qu'à l'aller c'est-à-dire de type A.

Enfin, pour le retour des cibles de l'IPNO au LPSC, il a fallu faire construire par le groupe mécanique du laboratoire des boîtes spécifiques. En effet, les cibles sont très fragiles et ne doivent absolument pas bouger ou subir un choc. De plus, il est nécessaire de transporter de tels matériaux dans des boîtes parfaitement étanches afin d'éviter toute contamination bien que la déclaration en colis excepté n'impose aucune contrainte sur le colisage. Ces boîtes sont métalliques (aluminium) de façon



à ce que, s'il y a accident et incendie du véhicule de transport, l'étanchéité soit garantie. Ces boîtes servent aussi de boîtes de stockage en attendant de pouvoir insérer les cibles dans les chambres à fission. Un schéma de ces boîtes est présenté figure H.2. Notez que les cibles sont insérées dans les glissières de mêmes dimensions que celles des chambres à fission. Les cibles sont ainsi découpées aux bonnes dimensions. Aucune manipulation autre que l'insertion des cibles dans les chambres à fission n'a alors été nécessaire lors de la mise en place des expériences au LPSC.

Nous avons eu aussi beaucoup de difficultés pour obtenir l' $^{235}\text{U}$  enrichi. En effet, comme il est stratégique, malgré la très faible quantité nécessaire, il est soumis à une réglementation très stricte. Un achat auprès de GEEL était possible mais induisait des délais beaucoup trop longs pour pouvoir faire la mesure à temps. Heureusement, l'IPNO a pu nous prêter de l' $^{235}\text{U}$  provenant de leurs cibles utilisées pour des mesures à n-TOF. Les radiochimistes ont pu récupérer le dépôt d'uranium des cibles et nous en refaire aux dimensions souhaitées.

La quantité récupérable des anciennes cibles était de 15.6 mg. En tenant compte des inévitables pertes lors de la séparation Al/U, la quantité d' $^{235}\text{U}$  pouvait être légèrement inférieure à nos besoins (6.6 mg par cible dans le pire des cas). C'est ce qui a finalement conditionné la quantité de matière totale pour toutes les cibles. En effet, nous voulions avoir des cibles d' $^{233}\text{U}$  et d' $^{235}\text{U}$  les plus identiques possible.

Enfin, précisons que l'activité massique pour l' $^{235}\text{U}$  est de 79.9 Bq/mg. En réalité, il est impératif de prendre en compte la quantité d' $^{234}\text{U}$  contenue dans la cible (0.7472 %). L'activité massique est ainsi de 1 780 Bq/mg. Quant à l' $^{233}\text{U}$ , son activité massique est de 356 600 Bq/mg (nous rappelons que la quantité d' $^{232}\text{U}$  est de 0.1 ppm donc négligeable). Il est donc évident que la manipulation des cibles d' $^{233}\text{U}$  doit se faire avec une précaution extrême.

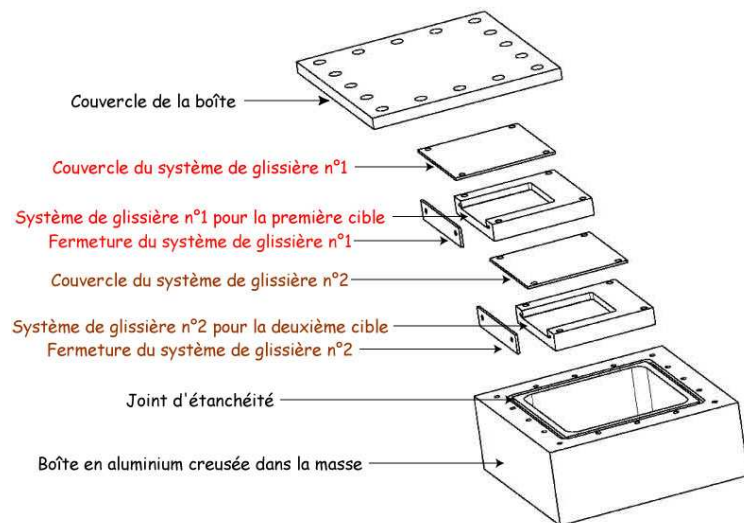
Pour conclure, les délais s'expliquent facilement par la réglementation très stricte concernant l'achat, le transport et la détention inhérentes à de tels matériaux.

## **H.2 Caractérisation expérimentale des cibles**

### **H.2.1 Protocole expérimental**

Les deux mesures (quantité totale de matière et cartographie) ont été effectuées avec le même dispositif expérimental. Celui-ci a été conçu et fabriqué entièrement par l'IPNO. Il a servi à caractériser toutes les cibles utilisées pour des mesures de sections efficaces à n-ToF (CERN). Il consiste à mesurer la radioactivité  $\alpha$  des cibles.

Le système est composé d'un détecteur à semi-conducteur en silicium. Un ou deux collimateurs sont positionnés devant la jonction silicium afin de connaître précisément la surface par laquelle



1/ Boîte de transport intégralement démontée



2/ Deux sous-systèmes contenant chacun une cible



3/ Insertion des 2 sous-systèmes dans la boîte



4/ Fermeture de la boîte de transport

FIG. H.2 – En haut, schéma d’une boîte de transport éclatée contenant deux cibles d’uranium d’un même isotope et fabriquée au service mécanique du LPSC. En bas, photos de cette même boîte de transport.

entrent les particules. Les collimateurs ont une épaisseur suffisante pour arrêter les particules  $\alpha$ .

Le dispositif expérimental est inséré dans une enceinte qui sera fermée lors de la mesure (cf photo H.4 à gauche). Afin de ne pas perdre des particules  $\alpha$ , la mesure se fait sous vide. Un vide primaire d'environ  $5 \cdot 10^{-2}$  mbar est maintenu pendant les mesures. Le fait que la mesure se fasse dans un système fermé réduit aussi le risque de contamination, risque important pour l' $^{233}\text{U}$ . L'enceinte utilisée est un cylindre de 70 cm de diamètre et de 40 cm de hauteur. Il y a deux vannes pour le pompage ou le remplissage de l'air, ainsi qu'une jauge à vide qui permet de contrôler ces deux opérations. En effet, les cibles sont fragiles et risqueraient d'être abîmées par des variations brutales de pression bien que la feuille en aluminium servant de support de cible est assez épaisse et ne risque pas d'être déchirée.

La cible que l'on veut caractériser est collée aux quatre coins sur un support en cuivre (cf photo H.3). Un autre support en cuivre est utilisé pour pouvoir ensuite fixer cet ensemble dans l'enceinte en le faisant coulisser dans une rainure. Un tel système permet ainsi de manipuler le plus brièvement possible les cibles radioactives. De plus, le support est proche d'une paroi afin de pouvoir obtenir une distance importante entre la cible et le détecteur (ici, 30 cm au maximum). Ceci est indispensable puisque, pour mesurer la quantité totale de matière, le détecteur doit être très éloigné de la cible afin de collecter toutes les particules  $\alpha$  émises par la cible complète (angle solide large).

Notez que la colle est mise aux quatre coins seulement du support en aluminium de 10 cm par 10 cm. Une fois, la cible découpée aux dimensions exactes, les parties contenant la colle seront alors enlevées. La cible définitive ne contient donc aucune trace d'hydrogène.

La cible est insérée dans le système expérimental : le support est introduit dans un ensemble de deux glissières verticales.



FIG. H.3 – Cible d' $^{235}\text{U}$  collée à son support pour sa caractérisation

Le collimateur et la jonction silicium entrent dans un cylindre de diamètre parfaitement ajusté. Ce cylindre est installé sur un support le long duquel il peut coulisser. On règle ainsi manuellement la distance entre l'ensemble "collimateur - jonction silicium" et la cible. Enfin, cet ensemble est fixé sur un moteur pas à pas. Le déplacement dans les autres directions que l'axe système de détection -

cible (Oz) se fait donc uniquement grâce au moteur. La course pour chacun des axes est de 150 mm. Le moteur a été installé dans l'enceinte d'une façon telle que les deux axes à mi-course (Ox et Oy) se rencontrent en un point situé sur l'axe passant par le centre de la cible environ. La photo H.4, à droite, montre le dispositif.



FIG. H.4 – A gauche, vue d'ensemble du dispositif expérimental. On y distingue au centre, l'enceinte fermée ainsi que le PC d'acquisition. A droite, vue du système de détection à l'intérieur de l'enceinte. On peut y voir l'ensemble "collimateur - jonction silicium" installé pour la cartographie. Cet ensemble est situé à quelques millimètres seulement de la cible.

Pour chaque cible, nous avons au préalable, relevé les positions de chaque bord afin de connaître la position exacte de la cible (Xmin, Xmax, Ymin, Ymax). Pour cela, nous remplaçons l'ensemble "collimateur - jonction silicium" par un système portant une pointe métallique de façon à ce qu'elle soit à la même position que le centre du collimateur qu'on vient de retirer. On approche ainsi cette pointe au niveau de chacun des bords de la cible pour déterminer la position exacte de la cible (cf photo H.5).



FIG. H.5 – Utilisation d'une pointe pour connaître la position exacte de la cible.

Notez que la manipulation des cibles, celles d' $^{233}\text{U}$  essentiellement, a été très délicate. Pour les mesures à longue distance avec les cibles d' $^{233}\text{U}$ , un film très fin de mylar a été déposé au fond et autour de l'enceinte afin de protéger le dispositif expérimental de la contamination. De plus, lors du passage des cartographies des cibles d' $^{233}\text{U}$  à celles d' $^{235}\text{U}$ , une décontamination du collimateur a

été nécessaire. Pour manipuler le dispositif expérimental de façon à passer de la configuration “cartographie” à celle pour les mesures à longue distance, nous avons pris de nombreuses précautions pour vérifier l’absence de contamination du dispositif.

## H.2.2 Calcul de l’angle solide de détection

Les mesures nous donnent des résultats en coups/seconde. Afin de calculer la masse d’U, nous devons corriger de l’angle solide de détection pour connaître le nombre de coups total émis par la cible. Puis, nous diviserons le résultat par l’activité massique. Que ce soit pour la cartographie ou la mesure de la quantité totale de matière, il est absolument indispensable de bien connaître l’angle solide de détection.

L’angle solide vaut pour chaque point de la cible :  $\int \int_S \frac{dS \cdot r^3}{r^3}$ . Le calcul de l’angle solide est assez complexe. Il n’est pas résolvable analytiquement. Il existe alors deux méthodes pour le déterminer :

1. Un code Monte-Carlo donnant le rapport du nombre de particules arrivant dans la jonction silicium sur le nombre de particules émises par la zone de cible “utile”. On transporte une à une les particules  $\alpha$  émis de façon isotrope d’un point quelconque choisi de la cible. On teste si cette particule passe ou non le(s) collimateur(s) et atteint le détecteur Silicium. J’ai écrit ce code de façon à ce qu’on puisse implémenter le nombre de collimateurs utilisés.
2. Un autre calcul pour obtenir l’angle solide utilise la méthode d’intégration de Gauss-Legendre. Le programme a été écrit par les membres du groupe Aval du Cycle de l’IPNO. Cette méthode permet d’approcher numériquement la valeur d’une intégrale finie. Pour cela, on développe sur une base de polynômes. L’intégrale peut alors s’écrire comme une combinaison linéaire des valeurs que prend la fonction en divers points  $x_i$  bien choisis, c’est-à-dire tels qu’on obtienne une valeur approchée de l’intégrale acceptable avec un nombre de points assez réduits :

$$\int_a^b f(x)dx = C * \sum_{i=1}^n m(x_i) f(x_i)$$

Dans cette expression, la constante C est proportionnelle à (b-a) et les facteurs de pondération  $m(x_k)$  dépendent de la fonction par laquelle on approche f(x) : segments de droites pour la méthode des trapèzes, arcs de paraboles pour la méthode de Simpson, ... En ce qui concerne la méthode de Gauss-Legendre, basée sur l’orthogonalité des polynômes de Legendre, on développe la fonction dans une base de polynômes de Legendre. Ces polynômes sont définis sur l’intervalle [-1 ; 1] et leurs racines sont irrégulièrement espacées. Si l’intégrale est définie sur une intervalle [a ; b], il suffit de faire un changement de variable par une fonction affine permettant de passer de [a ; b] sur [-1 ; 1]. On a alors :

$$\int_a^b f(x)dx = \frac{b-a}{2} \int_{-1}^1 f\left(\frac{b-a}{2}x + \frac{a+b}{2}\right)dx \approx \frac{b-a}{2} \sum_{k=1}^n m(x_k) f\left(\frac{b-a}{2}x_k + \frac{a+b}{2}\right)$$

où  $x_k$  sont les racines du polynôme de Legendre de degré  $n$  et  $m(x_k)$  sont les poids de ces racines, qui sont tels que l'égalité  $\int_{-1}^1 f(x)dx = \sum_{k=1}^n m(x_k)f(x_k)$  est assurée pour toute fonction polynomiale de degré inférieur ou égal à  $(2n - 1)$ . Des tables permettent d'obtenir les valeurs des points et leurs poids.

Pour approcher numériquement la valeur d'une intégrale définie, la méthode de Gauss-Legendre donne des valeurs approchées acceptables avec un nombre de points assez réduit. En effet, elle utilise des points qui ne sont pas régulièrement espacés (contrairement à la méthode des trapèzes par exemple) mais convenablement choisis. C'est une méthode qui s'avère rapidement précise pourvu qu'on choisisse un nombre de points suffisant. Cette méthode ne peut être appliquée que lorsque la fonction est connue analytiquement ou lorsqu'elle est tabulée numériquement en ces points précis. De plus, il faut que la fonction à intégrer ne présente pas de trop grandes variations. Dans notre cas, le calcul de l'angle solide s'effectue grâce à 16 points.

Le code Monte-Carlo donne un résultat dont nous pouvons calculer l'erreur (incertitude statistique seule). Pour une distance cible-collimateur donnée et égale à 32.74 cm et pour un nombre de particule tirée égale à  $10^7$ , le nombre de particules vues dans la jonction silicium est de 1493. L'erreur statistique est de 3 %. Si nous voulons obtenir des résultats sur l'angle solide avec une précision de l'ordre de 0.1 %, il faudrait transporter  $7.10^{10}$  particules, ce qui nécessite un temps de calcul long. Le principal avantage de la méthode numérique de Gauss-Legendre est qu'elle permet d'obtenir des résultats avec la incertitude que le code Monte-Carlo pour un temps de calcul réduit. Ainsi, pour obtenir des résultats très précis, nous utiliserons la méthode d'intégration de Gauss-Legendre, les résultats du calcul Monte-Carlo nous permettant seulement de confirmer les résultats obtenus.

Les sources d'incertitude sur l'angle solide sont :

- L'incertitude sur le diamètre des collimateurs : plusieurs mesures effectuées à l'IPNO avec un microscope ont permis d'estimer le diamètre du collimateur utilisé pour les mesures à longue distance avec une erreur de 0.044 %. Par contre, la connaissance des diamètres des deux collimateurs servant lors de la cartographie est moins précise (aucune mesure du diamètre et aucune estimation de l'erreur).
- L'incertitude sur la distance cible/collimateur : 0.35 % dans le meilleur des cas c'est-à-dire lors de la mesure à grande distance. Par contre, cette distance peut varier de 0.3 mm à 2.5 mm lors de la cartographie ! Notez néanmoins que, dans ce cas, il s'avère que  $d\Omega * dS$  est indépendant de cette distance.
- L'incertitude sur les dimensions de la cible : pour chacune des cibles, nous avons mesuré les côtés en utilisant les spectres bidimensionnels obtenus au cours de la cartographie (cf partie 4.6.3.3). L'incertitude sur la dimension d'un côté des cibles est estimée à 0.17 mm ce qui représente une incertitude de 0.33 %.

Pour les mesures à longue distance, nous pouvons constater (cf manuscrit Sylvie Pierre) que les incertitudes sur les dimensions de la cible et du diamètre du collimateur sont complètement négligeables devant l'incertitude sur la distance cible/collimateur. De même, l'incertitude des calculs effectués par le programme utilisant la méthode de Gauss-Legendre est très largement inférieure aux incertitudes de mesures, nous la négligerons donc. Quant à la cartographie, l'incertitude sur les diamètres des deux collimateurs utilisés sera prédominante ainsi que l'incertitude sur la distance cible/collimateur. Enfin, il est important de remarquer que les temps de comptage ont été choisis afin que l'incertitude statistique soit négligeable.

# Annexe I

## Récapitulatif des données numériques

### I.1 Récapitulatifs des données

<b>2 mm</b>	Coïncidence double	Coïncidence triple
Terme d'activation du Signal (coups)	10603	140,3
Terme d'activation du Bruit de fond (coups)	8225	100,6
Correction d'activation (coups)	100	0
Normalisation Silicium (sans unité)	1,189 (2.5% d'écart)	1,09 (6% d'écart) <sup>1</sup>
Efficacité de la chambre à fission, $\epsilon_{CaF}$	76 %	76 %
$\frac{\epsilon_{fission}}{\epsilon_{capture}}$	5,76 %	17,16 %

TAB. I.1 – Récapitulatif des valeurs finales choisies pour l'obtention du rapport  $\alpha$  de l'<sup>235</sup>U.



Temps relatif	Signal sans activation		Bruit de fond sans activation		Fission non corrigée de $\epsilon_{\text{CAF}}$		Rapport $\alpha$	
2,00E+00	9,10E+05	± 2,88E+02	1,00E+06	± 3,02E+02	3,30E+03	± 2,17E+01	-1,03E+01	± -8,43E+00
1,10E+01	1,98E+06	± 1,41E+03	2,19E+06	± 1,48E+03	2,85E+04	± 1,89E+02	-3,23E+00	± -2,63E+00
1,20E+01	1,38E+06	± 1,17E+03	1,53E+06	± 1,24E+03	2,13E+04	± 1,46E+02	-2,98E+00	± -2,40E+00
1,30E+01	9,04E+05	± 9,51E+02	9,94E+05	± 9,97E+02	1,66E+04	± 1,29E+02	-2,39E+00	± -1,93E+00
1,40E+01	6,26E+05	± 7,91E+02	6,77E+05	± 8,23E+02	1,32E+04	± 1,15E+02	-1,81E+00	± -1,44E+00
1,50E+01	4,82E+05	± 6,84E+02	5,10E+05	± 7,14E+02	1,18E+04	± 1,09E+02	-1,16E+00	± -9,08E-01
1,60E+01	4,24E+05	± 6,51E+02	4,37E+05	± 6,61E+02	1,02E+04	± 1,01E+02	-6,87E-01	± -5,08E-01
1,70E+01	3,97E+05	± 6,30E+02	3,99E+05	± 6,31E+02	9,76E+03	± 9,88E+01	-1,53E-01	± -6,34E-02
1,80E+01	4,21E+05	± 6,49E+02	4,15E+05	± 6,44E+02	9,92E+03	± 9,96E+01	2,13E-01	± 2,42E-01
1,90E+01	5,30E+05	± 7,28E+02	5,29E+05	± 7,27E+02	1,03E+04	± 1,02E+02	4,55E-02	± 1,07E-01
2,00E+01	6,51E+05	± 8,07E+02	6,62E+05	± 8,14E+02	1,05E+04	± 1,02E+02	-3,75E-01	± -2,36E-01
2,10E+01	6,58E+05	± 8,11E+02	6,75E+05	± 8,21E+02	1,11E+04	± 1,05E+02	-5,99E-01	± -4,27E-01
2,20E+01	5,34E+05	± 7,30E+02	5,45E+05	± 7,38E+02	1,11E+04	± 1,05E+02	-4,65E-01	± -3,22E-01
2,30E+01	3,97E+05	± 6,30E+02	3,97E+05	± 6,30E+02	1,04E+04	± 1,02E+02	-9,52E-02	± -1,92E-02
2,40E+01	3,28E+05	± 5,73E+02	3,22E+05	± 5,67E+02	9,87E+03	± 9,93E+01	1,31E-01	± 1,66E-01
2,50E+01	3,12E+05	± 5,58E+02	3,03E+05	± 5,51E+02	8,97E+03	± 9,47E+01	2,77E-01	± 2,92E-01
2,60E+01	3,08E+05	± 5,53E+02	2,97E+05	± 5,45E+02	8,42E+03	± 9,18E+01	3,78E-01	± 3,78E-01
2,70E+01	2,87E+05	± 5,36E+02	2,79E+05	± 5,28E+02	8,09E+03	± 8,99E+01	3,41E-01	± 3,49E-01
2,80E+01	2,61E+05	± 5,11E+02	2,52E+05	± 5,02E+02	7,99E+03	± 8,84E+01	3,21E-01	± 3,30E-01
2,90E+01	2,38E+05	± 4,88E+02	2,28E+05	± 4,78E+02	8,19E+03	± 9,05E+01	3,34E-01	± 3,37E-01
3,00E+01	2,22E+05	± 4,71E+02	2,12E+05	± 4,61E+02	8,55E+03	± 9,24E+01	2,85E-01	± 3,01E-01
3,10E+01	2,08E+05	± 4,56E+02	1,99E+05	± 4,46E+02	8,30E+03	± 9,11E+01	2,83E-01	± 2,91E-01
3,20E+01	1,91E+05	± 4,37E+02	1,82E+05	± 4,27E+02	8,31E+03	± 9,11E+01	2,56E-01	± 2,66E-01
3,30E+01	1,74E+05	± 4,17E+02	1,64E+05	± 4,05E+02	7,77E+03	± 8,81E+01	2,98E-01	± 3,02E-01
3,40E+01	1,59E+05	± 3,99E+02	1,49E+05	± 3,86E+02	7,78E+03	± 8,82E+01	3,19E-01	± 3,17E-01
3,50E+01	1,51E+05	± 3,89E+02	1,41E+05	± 3,75E+02	7,09E+03	± 8,42E+01	4,17E-01	± 4,03E-01
3,60E+01	1,52E+05	± 3,89E+02	1,40E+05	± 3,74E+02	6,68E+03	± 8,17E+01	5,12E-01	± 4,85E-01
3,70E+01	1,57E+05	± 3,86E+02	1,45E+05	± 3,80E+02	6,52E+03	± 8,07E+01	6,14E-01	± 5,73E-01
3,80E+01	1,63E+05	± 4,03E+02	1,51E+05	± 3,88E+02	6,48E+03	± 8,05E+01	6,02E-01	± 5,64E-01
3,90E+01	1,65E+05	± 4,06E+02	1,53E+05	± 3,91E+02	6,22E+03	± 7,89E+01	6,07E-01	± 5,71E-01
4,00E+01	1,61E+05	± 4,02E+02	1,50E+05	± 3,87E+02	5,92E+03	± 7,70E+01	6,95E-01	± 6,48E-01
4,10E+01	1,52E+05	± 3,90E+02	1,41E+05	± 3,76E+02	6,04E+03	± 7,77E+01	6,00E-01	± 5,65E-01
4,20E+01	1,39E+05	± 3,73E+02	1,29E+05	± 3,59E+02	5,90E+03	± 7,68E+01	4,94E-01	± 4,76E-01
4,30E+01	1,25E+05	± 3,54E+02	1,16E+05	± 3,41E+02	5,50E+03	± 7,42E+01	4,97E-01	± 4,79E-01
4,40E+01	1,13E+05	± 3,36E+02	1,04E+05	± 3,23E+02	5,19E+03	± 7,20E+01	4,72E-01	± 4,59E-01

FIG. I.1 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence double entre les scintillateurs YAP.

4,50E+01	1,02E+05	3,20E+02	9,50E+04	3,08E+02	5,14E+03	7,17E+01	3,79E-01	3,80E-01
4,60E+01	9,47E+04	3,08E+02	8,79E+04	2,98E+02	4,86E+03	6,97E+01	3,51E-01	3,57E-01
4,70E+01	8,91E+04	2,98E+02	8,27E+04	2,88E+02	4,98E+03	7,05E+01	2,90E-01	3,03E-01
4,80E+01	8,52E+04	2,92E+02	7,86E+04	2,78E+02	4,73E+03	6,87E+01	3,35E-01	3,43E-01
4,90E+01	8,21E+04	2,87E+02	7,57E+04	2,75E+02	4,97E+03	7,05E+01	2,74E-01	2,87E-01
5,00E+01	7,99E+04	2,83E+02	7,37E+04	2,72E+02	4,80E+03	6,93E+01	2,74E-01	2,89E-01
5,10E+01	7,83E+04	2,80E+02	7,19E+04	2,68E+02	5,00E+03	7,07E+01	2,58E-01	2,73E-01
5,20E+01	7,67E+04	2,77E+02	7,05E+04	2,66E+02	4,84E+03	6,95E+01	2,59E-01	2,74E-01
5,30E+01	7,54E+04	2,75E+02	6,90E+04	2,63E+02	4,93E+03	7,02E+01	2,82E-01	2,75E-01
5,40E+01	7,44E+04	2,73E+02	6,80E+04	2,61E+02	4,66E+03	6,83E+01	3,02E-01	3,12E-01
5,50E+01	7,36E+04	2,71E+02	6,75E+04	2,60E+02	4,96E+03	7,04E+01	2,34E-01	2,51E-01
5,60E+01	7,29E+04	2,70E+02	6,71E+04	2,59E+02	4,96E+03	7,04E+01	2,06E-01	2,28E-01
5,70E+01	7,26E+04	2,69E+02	6,66E+04	2,58E+02	5,13E+03	7,16E+01	1,91E-01	2,13E-01
5,80E+01	7,26E+04	2,70E+02	6,65E+04	2,58E+02	5,06E+03	7,11E+01	2,22E-01	2,40E-01
5,90E+01	7,30E+04	2,70E+02	6,67E+04	2,58E+02	5,45E+03	7,38E+01	1,85E-01	2,05E-01
6,00E+01	7,29E+04	2,70E+02	6,66E+04	2,58E+02	5,31E+03	7,28E+01	2,05E-01	2,23E-01
6,10E+01	7,25E+04	2,69E+02	6,63E+04	2,58E+02	5,50E+03	7,41E+01	1,69E-01	1,92E-01
6,20E+01	7,23E+04	2,69E+02	6,61E+04	2,57E+02	5,40E+03	7,35E+01	1,75E-01	1,98E-01
6,30E+01	7,23E+04	2,69E+02	6,60E+04	2,57E+02	5,37E+03	7,32E+01	1,92E-01	2,12E-01
6,40E+01	7,20E+04	2,68E+02	6,54E+04	2,56E+02	5,22E+03	7,23E+01	2,36E-01	2,50E-01
6,50E+01	7,13E+04	2,67E+02	6,46E+04	2,54E+02	5,23E+03	7,23E+01	2,46E-01	2,58E-01
6,60E+01	7,05E+04	2,66E+02	6,42E+04	2,53E+02	4,89E+03	6,99E+01	2,72E-01	2,72E-01
6,70E+01	6,93E+04	2,63E+02	6,33E+04	2,52E+02	4,88E+03	6,98E+01	2,31E-01	2,48E-01
6,80E+01	6,80E+04	2,61E+02	6,25E+04	2,50E+02	4,70E+03	6,85E+01	2,08E-01	2,30E-01
6,90E+01	6,71E+04	2,59E+02	6,17E+04	2,48E+02	4,53E+03	6,73E+01	2,12E-01	2,36E-01
7,00E+01	6,65E+04	2,58E+02	6,04E+04	2,46E+02	4,39E+03	6,82E+01	3,04E-01	3,14E-01
7,10E+01	6,54E+04	2,56E+02	5,94E+04	2,44E+02	4,35E+03	6,80E+01	3,08E-01	3,17E-01
7,20E+01	6,42E+04	2,53E+02	5,85E+04	2,42E+02	4,43E+03	6,66E+01	2,51E-01	2,66E-01
7,30E+01	6,38E+04	2,52E+02	5,80E+04	2,41E+02	4,31E+03	6,56E+01	2,94E-01	2,55E-01
7,40E+01	6,26E+04	2,50E+02	5,68E+04	2,38E+02	4,40E+03	6,63E+01	2,65E-01	2,80E-01
7,50E+01	6,17E+04	2,48E+02	5,60E+04	2,37E+02	4,18E+03	6,47E+01	2,93E-01	3,06E-01
7,60E+01	6,09E+04	2,47E+02	5,56E+04	2,36E+02	4,19E+03	6,48E+01	2,48E-01	2,67E-01
7,70E+01	5,99E+04	2,45E+02	5,49E+04	2,34E+02	4,10E+03	6,40E+01	2,27E-01	2,51E-01
7,80E+01	5,95E+04	2,44E+02	5,46E+04	2,34E+02	3,75E+03	6,13E+01	2,83E-01	3,03E-01
7,90E+01	5,93E+04	2,44E+02	5,45E+04	2,33E+02	3,83E+03	6,18E+01	2,55E-01	2,79E-01
8,00E+01	5,87E+04	2,42E+02	5,42E+04	2,33E+02	3,64E+03	6,03E+01	2,38E-01	2,67E-01

FIG. I.2 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence triple entre les scintillateurs YAP.

8,10E+01	5,81E+04	2,41E+02	5,39E+04	2,32E+02	3,57E+03	5,97E+01	2,26E-01	2,56E-01
8,20E+01	5,80E+04	2,41E+02	5,34E+04	2,31E+02	3,52E+03	5,94E+01	2,74E-01	2,99E-01
8,30E+01	5,80E+04	2,41E+02	5,29E+04	2,30E+02	3,19E+03	5,65E+01	4,28E-01	4,35E-01
8,40E+01	5,78E+04	2,40E+02	5,28E+04	2,30E+02	3,14E+03	5,60E+01	4,18E-01	4,28E-01
8,50E+01	5,73E+04	2,39E+02	5,26E+04	2,29E+02	3,18E+03	5,64E+01	3,46E-01	3,67E-01
8,60E+01	5,73E+04	2,39E+02	5,26E+04	2,29E+02	3,02E+03	5,49E+01	4,14E-01	4,27E-01
8,70E+01	5,76E+04	2,40E+02	5,27E+04	2,30E+02	3,01E+03	5,49E+01	4,42E-01	4,51E-01
8,80E+01	5,77E+04	2,40E+02	5,30E+04	2,30E+02	3,00E+03	5,48E+01	4,15E-01	4,29E-01
8,90E+01	5,76E+04	2,40E+02	5,31E+04	2,30E+02	3,10E+03	5,57E+01	3,69E-01	3,88E-01
9,00E+01	5,77E+04	2,40E+02	5,34E+04	2,31E+02	3,02E+03	5,50E+01	3,67E-01	3,86E-01
9,10E+01	5,81E+04	2,41E+02	5,37E+04	2,32E+02	3,03E+03	5,50E+01	3,73E-01	3,94E-01
9,20E+01	5,83E+04	2,41E+02	5,38E+04	2,32E+02	3,09E+03	5,56E+01	3,71E-01	3,90E-01
9,30E+01	5,83E+04	2,41E+02	5,40E+04	2,32E+02	3,02E+03	5,50E+01	3,62E-01	3,84E-01
9,40E+01	5,83E+04	2,42E+02	5,43E+04	2,33E+02	3,13E+03	5,59E+01	2,98E-01	3,26E-01
9,50E+01	5,84E+04	2,42E+02	5,38E+04	2,32E+02	3,10E+03	5,56E+01	3,86E-01	4,02E-01
9,60E+01	5,81E+04	2,41E+02	5,34E+04	2,31E+02	3,04E+03	5,52E+01	4,16E-01	4,31E-01
9,70E+01	5,76E+04	2,40E+02	5,33E+04	2,31E+02	3,01E+03	5,49E+01	3,61E-01	3,83E-01
9,80E+01	5,71E+04	2,39E+02	5,25E+04	2,29E+02	3,06E+03	5,53E+01	3,91E-01	4,07E-01
9,90E+01	5,63E+04	2,37E+02	5,19E+04	2,28E+02	2,98E+03	5,45E+01	3,83E-01	4,02E-01
1,00E+02	5,55E+04	2,36E+02	5,15E+04	2,27E+02	3,08E+03	5,55E+01	2,94E-01	3,24E-01
1,01E+02	5,49E+04	2,34E+02	5,12E+04	2,26E+02	2,77E+03	5,26E+01	3,36E-01	3,66E-01
1,02E+02	5,44E+04	2,33E+02	5,05E+04	2,25E+02	2,77E+03	5,26E+01	3,47E-01	3,76E-01
1,03E+02	5,34E+04	2,31E+02	4,95E+04	2,23E+02	2,85E+03	5,34E+01	3,29E-01	3,58E-01
1,04E+02	5,15E+04	1,31E+02	4,81E+04	1,27E+02	2,60E+03	5,09E+01	3,14E-01	3,19E-01
1,07E+02	4,98E+04	1,58E+02	4,66E+04	1,53E+02	2,47E+03	3,51E+01	3,12E-01	3,25E-01
1,09E+02	4,85E+04	1,56E+02	4,48E+04	1,50E+02	2,35E+03	3,43E+01	4,38E-01	4,33E-01
1,11E+02	4,67E+04	1,53E+02	4,40E+04	1,48E+02	2,14E+03	3,27E+01	3,11E-01	3,32E-01
1,13E+02	4,59E+04	1,52E+02	4,27E+04	1,46E+02	2,13E+03	3,26E+01	4,18E-01	4,22E-01
1,15E+02	4,45E+04	1,49E+02	4,14E+04	1,44E+02	1,93E+03	3,11E+01	4,66E-01	4,66E-01
1,17E+02	4,38E+04	1,48E+02	4,07E+04	1,43E+02	1,89E+03	3,07E+01	5,05E-01	5,02E-01
1,19E+02	4,31E+04	1,47E+02	3,97E+04	1,41E+02	1,92E+03	3,10E+01	5,33E-01	5,23E-01
1,21E+02	4,20E+04	1,45E+02	3,90E+04	1,40E+02	1,92E+03	3,10E+01	4,50E-01	4,52E-01
1,23E+02	4,16E+04	1,44E+02	3,87E+04	1,39E+02	1,82E+03	3,02E+01	4,89E-01	4,89E-01
1,25E+02	4,12E+04	1,43E+02	3,83E+04	1,38E+02	1,79E+03	2,99E+01	4,65E-01	4,70E-01
1,27E+02	4,07E+04	1,43E+02	3,76E+04	1,37E+02	1,82E+03	3,02E+01	5,25E-01	5,19E-01
1,29E+02	4,01E+04	1,42E+02	3,73E+04	1,37E+02	1,86E+03	3,05E+01	4,26E-01	4,34E-01

FIG. I.3 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence triple entre les scintillateurs YAP.

1,31E+02	3,96E+04	1,41E+02	3,66E+04	1,35E+02	1,70E+03	2,92E+01	5,52E-01	±	5,46E-01
1,33E+02	3,93E+04	1,40E+02	3,66E+04	1,35E+02	1,85E+03	3,04E+01	4,00E-01	±	4,11E-01
1,35E+02	3,88E+04	1,39E+02	3,62E+04	1,34E+02	1,77E+03	2,96E+01	4,13E-01	±	4,25E-01
1,37E+02	3,86E+04	1,39E+02	3,57E+04	1,34E+02	1,80E+03	3,00E+01	5,22E-01	±	5,15E-01
1,39E+02	3,85E+04	1,39E+02	3,54E+04	1,33E+02	1,82E+03	3,02E+01	4,84E-01	±	4,82E-01
1,41E+02	3,81E+04	1,38E+02	3,52E+04	1,33E+02	1,82E+03	3,02E+01	4,55E-01	±	4,58E-01
1,43E+02	3,80E+04	1,38E+02	3,51E+04	1,32E+02	1,92E+03	3,10E+01	4,07E-01	±	4,13E-01
1,45E+02	3,74E+04	1,37E+02	3,51E+04	1,32E+02	1,77E+03	2,98E+01	3,24E-01	±	3,49E-01
1,47E+02	3,76E+04	1,37E+02	3,50E+04	1,32E+02	1,82E+03	3,02E+01	3,75E-01	±	3,90E-01
1,49E+02	3,70E+04	1,36E+02	3,49E+04	1,32E+02	1,76E+03	2,86E+01	2,72E-01	±	3,06E-01
1,51E+02	3,70E+04	1,36E+02	3,46E+04	1,32E+02	1,67E+03	2,89E+01	3,95E-01	±	4,13E-01
1,53E+02	3,69E+04	1,36E+02	3,48E+04	1,32E+02	1,54E+03	2,78E+01	3,80E-01	±	4,07E-01
1,55E+02	3,69E+04	1,36E+02	3,46E+04	1,32E+02	1,44E+03	2,69E+01	4,82E-01	±	4,99E-01
1,57E+02	3,70E+04	1,11E+02	3,46E+04	1,07E+02	1,37E+03	2,81E+01	5,99E-01	±	5,86E-01
1,60E+02	3,73E+04	1,11E+02	3,49E+04	1,08E+02	1,09E+03	1,91E+01	8,56E-01	±	8,19E-01
1,63E+02	3,74E+04	1,12E+02	3,53E+04	1,09E+02	1,03E+03	1,85E+01	7,76E-01	±	7,59E-01
1,66E+02	3,79E+04	8,71E+01	3,60E+04	8,48E+01	8,78E+02	1,71E+01	9,24E-01	±	8,77E-01
1,71E+02	3,85E+04	8,77E+01	3,67E+04	8,56E+01	7,13E+02	1,33E+01	1,18E+00	±	1,11E+00
1,76E+02	3,88E+04	8,81E+01	3,70E+04	8,60E+01	5,99E+02	1,09E+01	1,53E+00	±	1,43E+00
1,81E+02	3,82E+04	7,39E+01	3,69E+04	7,26E+01	5,13E+02	1,01E+01	1,42E+00	±	1,34E+00
1,86E+02	3,59E+04	6,31E+01	3,43E+04	6,18E+01	4,31E+02	8,48E+00	1,91E+00	±	1,75E+00
1,97E+02	3,12E+04	5,32E+01	2,99E+04	5,22E+01	3,35E+02	6,47E+00	2,07E+00	±	1,90E+00
2,06E+02	2,66E+04	5,16E+01	2,55E+04	5,05E+01	2,65E+02	5,15E+00	2,30E+00	±	2,12E+00
2,16E+02	2,36E+04	4,85E+01	2,25E+04	4,74E+01	2,65E+02	5,14E+00	2,18E+00	±	2,01E+00
2,26E+02	2,16E+04	4,65E+01	2,08E+04	4,56E+01	2,63E+02	5,13E+00	1,78E+00	±	1,66E+00
2,38E+02	2,03E+04	4,50E+01	1,93E+04	4,39E+01	2,73E+02	5,22E+00	1,85E+00	±	1,72E+00
2,48E+02	1,94E+04	4,40E+01	1,84E+04	4,29E+01	2,64E+02	5,14E+00	1,94E+00	±	1,80E+00
2,56E+02	1,84E+04	3,77E+01	1,75E+04	3,67E+01	2,58E+02	5,06E+00	1,76E+00	±	1,62E+00
2,71E+02	1,74E+04	3,41E+01	1,65E+04	3,32E+01	2,12E+02	4,20E+00	2,17E+00	±	1,98E+00
2,86E+02	1,64E+04	3,31E+01	1,56E+04	3,23E+01	1,84E+02	3,44E+00	2,34E+00	±	2,14E+00
3,01E+02	1,54E+04	3,01E+01	1,47E+04	2,94E+01	1,77E+02	3,44E+00	2,13E+00	±	1,95E+00
3,16E+02	1,46E+04	3,23E+01	1,39E+04	3,15E+01	1,63E+02	3,19E+00	2,26E+00	±	2,09E+00
3,32E+02	1,39E+04	3,15E+01	1,33E+04	3,08E+01	1,77E+02	3,43E+00	1,68E+00	±	1,58E+00
3,46E+02	1,34E+04	3,34E+01	1,26E+04	3,24E+01	1,80E+02	3,59E+00	2,26E+00	±	2,08E+00
3,56E+02	1,28E+04	3,14E+01	1,21E+04	3,05E+01	1,99E+02	3,91E+00	1,63E+00	±	1,52E+00
3,71E+02	1,23E+04	3,20E+01	1,16E+04	3,11E+01	2,01E+02	3,93E+00	1,57E+00	±	1,47E+00

FIG. I.4 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence triple entre les scintillateurs YAP.

3,83E+02	1,17E+04	3,12E+01	1,10E+04	3,03E+01	2,24E+02	4,32E+00	1,44E+00	±	1,34E+00
3,95E+02	1,13E+04	3,36E+01	1,06E+04	3,25E+01	2,23E+02	4,31E+00	1,49E+00	±	1,40E+00
4,05E+02	1,09E+04	3,30E+01	1,02E+04	3,20E+01	2,47E+02	4,74E+00	1,14E+00	±	1,09E+00
4,15E+02	1,05E+04	3,10E+01	1,00E+04	3,02E+01	2,51E+02	5,01E+00	8,23E-01	±	8,14E-01
4,26E+02	1,01E+04	3,03E+01	9,52E+03	2,94E+01	2,44E+02	4,71E+00	1,00E+00	±	9,63E-01
4,37E+02	9,82E+03	2,89E+01	9,16E+03	2,89E+01	2,46E+02	4,73E+00	1,13E+00	±	1,07E+00
4,48E+02	9,49E+03	2,94E+01	8,88E+03	2,84E+01	2,38E+02	4,65E+00	1,07E+00	±	1,02E+00
4,59E+02	9,18E+03	2,86E+01	8,61E+03	2,57E+01	2,29E+02	4,57E+00	1,03E+00	±	9,83E-01
4,72E+02	8,82E+03	2,71E+01	8,42E+03	2,65E+01	2,18E+02	4,26E+00	7,49E-01	±	7,52E-01
4,84E+02	8,45E+03	2,55E+01	7,99E+03	2,48E+01	2,11E+02	4,19E+00	8,80E-01	±	8,60E-01
4,97E+02	8,13E+03	2,33E+01	7,70E+03	2,27E+01	1,99E+02	3,92E+00	8,80E-01	±	8,55E-01
5,12E+02	7,79E+03	2,36E+01	7,41E+03	2,30E+01	1,89E+02	3,67E+00	8,35E-01	±	8,25E-01
5,28E+02	7,50E+03	2,31E+01	7,09E+03	2,25E+01	1,88E+02	3,66E+00	8,89E-01	±	8,66E-01
5,40E+02	7,30E+03	2,21E+01	6,84E+03	2,13E+01	1,85E+02	3,63E+00	1,05E+00	±	9,98E-01
5,55E+02	6,94E+03	2,15E+01	6,56E+03	2,09E+01	1,78E+02	3,44E+00	8,19E-01	±	8,08E-01
5,70E+02	6,72E+03	2,12E+01	6,30E+03	2,05E+01	1,77E+02	3,44E+00	9,67E-01	±	9,31E-01
5,85E+02	6,46E+03	2,08E+01	6,01E+03	2,00E+01	1,74E+02	3,41E+00	1,06E+00	±	1,01E+00
6,00E+02	6,14E+03	2,02E+01	5,82E+03	1,97E+01	1,78E+02	3,45E+00	6,65E-01	±	6,71E-01
6,15E+02	5,94E+03	1,87E+01	5,61E+03	1,82E+01	1,70E+02	3,37E+00	7,40E-01	±	7,32E-01
6,32E+02	5,71E+03	2,02E+01	5,39E+03	1,96E+01	1,65E+02	3,21E+00	7,53E-01	±	7,54E-01
6,46E+02	5,59E+03	1,93E+01	5,19E+03	1,86E+01	1,71E+02	3,38E+00	8,94E-01	±	8,64E-01
6,61E+02	5,32E+03	1,77E+01	4,97E+03	1,71E+01	1,71E+02	3,36E+00	7,57E-01	±	7,40E-01
6,78E+02	5,16E+03	1,80E+01	4,77E+03	1,73E+01	1,64E+02	3,20E+00	9,12E-01	±	8,75E-01
6,94E+02	4,96E+03	1,76E+01	4,57E+03	1,69E+01	1,61E+02	3,17E+00	8,98E-01	±	8,63E-01
7,10E+02	4,80E+03	1,85E+01	4,41E+03	1,78E+01	1,63E+02	3,19E+00	8,90E-01	±	8,60E-01
7,24E+02	4,64E+03	1,76E+01	4,29E+03	1,69E+01	1,69E+02	3,36E+00	7,18E-01	±	7,07E-01
7,39E+02	4,46E+03	1,82E+01	4,18E+03	1,57E+01	1,67E+02	3,54E+00	5,54E-01	±	5,63E-01
7,56E+02	4,27E+03	1,63E+01	4,04E+03	1,48E+01	1,58E+02	3,14E+00	4,56E-01	±	4,87E-01
7,72E+02	4,18E+03	1,57E+01	3,83E+03	1,50E+01	1,63E+02	3,19E+00	7,58E-01	±	7,34E-01
7,89E+02	3,98E+03	1,53E+01	3,72E+03	1,48E+01	1,51E+02	2,98E+00	5,51E-01	±	5,64E-01
8,06E+02	3,83E+03	1,42E+01	3,54E+03	1,36E+01	1,51E+02	2,86E+00	6,31E-01	±	6,24E-01
8,25E+02	3,72E+03	1,44E+01	3,42E+03	1,38E+01	1,47E+02	2,86E+00	6,77E-01	±	6,67E-01
8,43E+02	3,54E+03	1,40E+01	3,37E+03	1,37E+01	1,42E+02	2,81E+00	3,14E-01	±	3,63E-01
8,61E+02	3,40E+03	1,27E+01	3,18E+03	1,23E+01	1,41E+02	2,80E+00	4,84E-01	±	4,82E-01
8,82E+02	3,31E+03	1,26E+01	3,05E+03	1,20E+01	1,29E+02	2,54E+00	7,06E-01	±	6,90E-01
9,03E+02	3,19E+03	1,18E+01	2,94E+03	1,13E+01	1,19E+02	2,38E+00	7,15E-01	±	7,00E-01

FIG. I.5 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence triple entre les scintillateurs YAP.

9,26E+02	2,99E+03	1,14E+01	2,77E+03	1,10E+01	1,18E+02	2,32E+00	6,36E-01	±	6,31E-01
9,49E+02	2,89E+03	1,12E+01	2,66E+03	1,08E+01	1,12E+02	2,21E+00	6,11E-01	±	6,13E-01
9,72E+02	2,76E+03	1,03E+01	2,55E+03	9,90E+00	1,10E+02	2,19E+00	6,52E-01	±	6,42E-01
9,96E+02	2,63E+03	1,02E+01	2,40E+03	9,81E+00	1,01E+02	2,01E+00	7,74E-01	±	7,52E-01
1,02E+03	2,46E+03	9,37E+00	2,30E+03	9,05E+00	1,02E+02	2,02E+00	4,76E-01	±	4,93E-01
1,05E+03	2,37E+03	8,89E+00	2,17E+03	8,51E+00	9,53E+01	1,88E+00	7,15E-01	±	6,94E-01
1,08E+03	2,20E+03	8,30E+00	2,02E+03	7,95E+00	8,74E+01	1,74E+00	7,13E-01	±	6,95E-01
1,11E+03	2,10E+03	7,34E+00	1,91E+03	7,00E+00	8,15E+01	1,62E+00	8,30E-01	±	7,89E-01
1,15E+03	1,89E+03	7,46E+00	1,80E+03	7,27E+00	7,19E+01	1,41E+00	3,76E-01	±	4,19E-01
1,19E+03	1,80E+03	6,88E+00	1,73E+03	6,75E+00	7,21E+01	1,44E+00	1,97E-01	±	2,61E-01
1,22E+03	1,74E+03	6,37E+00	1,57E+03	6,04E+00	6,79E+01	1,35E+00	9,42E-01	±	8,66E-01
1,27E+03	1,57E+03	5,84E+00	1,47E+03	5,66E+00	6,12E+01	1,22E+00	4,68E-01	±	4,89E-01
1,31E+03	1,50E+03	5,83E+00	1,36E+03	5,58E+00	5,72E+01	1,14E+00	8,44E-01	±	8,11E-01
1,36E+03	1,35E+03	5,04E+00	1,24E+03	4,84E+00	5,78E+01	1,15E+00	5,73E-01	±	5,70E-01
1,41E+03	1,24E+03	5,06E+00	1,16E+03	4,92E+00	5,11E+01	1,01E+00	4,48E-01	±	4,76E-01
1,46E+03	1,15E+03	4,09E+00	1,06E+03	3,93E+00	5,19E+01	1,03E+00	5,04E-01	±	5,04E-01
1,53E+03	1,03E+03	3,81E+00	9,41E+02	3,64E+00	4,08E+01	8,11E-01	7,57E-01	±	7,31E-01
1,60E+03	9,02E+02	3,47E+00	8,52E+02	3,37E+00	3,70E+01	7,37E-01	3,73E-01	±	4,06E-01
1,67E+03	8,06E+02	3,15E+00	7,39E+02	3,02E+00	3,43E+01	6,85E-01	6,37E-01	±	6,29E-01
1,75E+03	6,91E+02	2,71E+00	6,45E+02	2,62E+00	3,25E+01	6,45E-01	3,75E-01	±	4,00E-01

FIG. I.6 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence triple entre les scintillateurs YAP.

Temps relatif	Signal sans activation	Bruit de fond sans activation	Fission non corrigée de $\epsilon_{CAF}$	Rapport $\alpha$
2,00E+00	4,07E+04 ± 5,60E+01	5,22E+04 ± 6,34E+01	6,03E+02 ± 8,68E+00	-1,39E+02 ± -1,72E+01
1,50E+01	1,42E+04 ± 6,87E+01	1,63E+04 ± 7,38E+01	1,61E+03 ± 2,83E+01	-1,64E+01 ± -1,20E+00
1,40E+01	1,67E+04 ± 5,78E+01	1,79E+04 ± 5,98E+01	8,54E+02 ± 1,69E+01	-9,27E+00 ± 2,72E-01
1,70E+01	1,44E+04 ± 8,49E+01	1,53E+04 ± 8,75E+01	7,46E+02 ± 1,37E+01	-7,74E+00 ± 1,34E+00
2,20E+01	7,96E+03 ± 3,99E+01	7,74E+03 ± 3,94E+01	8,82E+02 ± 1,71E+01	-1,33E+00 ± 8,75E-01
2,40E+01	5,58E+03 ± 3,74E+01	5,23E+03 ± 3,62E+01	6,80E+02 ± 1,30E+01	5,43E-01 ± 1,32E+00
2,90E+01	3,80E+03 ± 2,76E+01	3,34E+03 ± 2,58E+01	6,72E+02 ± 1,30E+01	3,86E-01 ± 1,02E+00
3,30E+01	3,61E+03 ± 2,69E+01	3,20E+03 ± 2,53E+01	5,96E+02 ± 1,09E+01	5,91E-01 ± 1,12E+00
3,80E+01	2,16E+03 ± 1,76E+01	1,82E+03 ± 1,61E+01	5,51E+02 ± 1,05E+01	-1,55E+00 ± 5,68E-01
4,30E+01	1,65E+03 ± 1,54E+01	1,34E+03 ± 1,38E+01	4,29E+02 ± 8,45E+00	-5,45E-01 ± 7,75E-01
5,00E+01	1,60E+03 ± 1,51E+01	1,25E+03 ± 1,33E+01	4,13E+02 ± 7,68E+00	6,39E-01 ± 9,55E-01
5,70E+01	1,54E+03 ± 1,60E+01	1,23E+03 ± 1,43E+01	4,17E+02 ± 7,71E+00	-4,26E-01 ± 8,25E-01
6,40E+01	1,38E+03 ± 1,40E+01	1,09E+03 ± 1,25E+01	4,37E+02 ± 8,54E+00	-1,51E+00 ± 5,72E-01
7,00E+01	1,26E+03 ± 1,18E+01	1,02E+03 ± 1,06E+01	3,68E+02 ± 7,26E+00	-1,59E+00 ± 5,65E-01
7,70E+01	1,27E+03 ± 1,07E+01	1,08E+03 ± 9,90E+00	3,32E+02 ± 6,44E+00	-1,97E+00 ± 5,24E-01
8,60E+01	1,21E+03 ± 1,10E+01	9,93E+02 ± 9,97E+00	2,52E+02 ± 5,02E+00	1,48E+00 ± 1,25E+00
9,70E+01	9,38E+02 ± 7,66E+00	7,88E+02 ± 7,02E+00	2,58E+02 ± 5,08E+00	-2,05E+00 ± 4,65E-01
1,07E+02	8,03E+02 ± 6,87E+00	6,79E+02 ± 6,32E+00	1,90E+02 ± 3,68E+00	-9,54E-01 ± 7,30E-01
1,23E+02	7,55E+02 ± 6,87E+00	6,26E+02 ± 6,26E+00	1,65E+02 ± 3,21E+00	4,60E-01 ± 1,04E+00
1,40E+02	7,54E+02 ± 4,34E+00	6,88E+02 ± 4,15E+00	1,58E+02 ± 3,14E+00	-2,72E+00 ± 3,49E-01
1,56E+02	3,44E+02 ± 1,43E+00	3,18E+02 ± 1,38E+00	7,88E+01 ± 1,57E+00	-3,83E+00 ± 2,72E-02
1,96E+02	1,93E+02 ± 1,18E+00	1,80E+02 ± 1,14E+00	2,04E+01 ± 4,07E-01	2,69E+00 ± 1,76E+00
3,64E+02	1,33E+02 ± 9,24E-01	1,20E+02 ± 8,77E-01	1,88E+01 ± 3,76E-01	1,44E+00 ± 1,36E+00
5,02E+02	9,18E+01 ± 6,84E-01	8,15E+01 ± 6,45E-01	1,70E+01 ± 3,39E-01	-6,11E-01 ± 8,64E-01
6,58E+02	5,90E+01 ± 4,76E-01	5,26E+01 ± 4,49E-01	1,40E+01 ± 2,78E-01	-2,72E+00 ± 4,69E-01

FIG. I.7 – Récapitulatif des données expérimentales pour la coïncidence triple entre les scintillateurs YAP.

## I.2 Récapitulatifs des sources d'incertitudes

Nous rappelons que le spectre de capture et le rapport  $\alpha$  s'obtiennent à partir des spectres par les formules suivantes :

$$C = \frac{1}{\epsilon_i^{capt\ 235U}} (s_i - f_i - N * b_i) \quad (I.1)$$

$$\alpha = \frac{C}{F} = \frac{\epsilon_i^{fis\ 235U} * \epsilon_{CaF}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}} \frac{s_i - f_i - N * b_i}{f_i} \quad (I.2)$$

Nous avons montré dans le chapitre 7 que l'incertitude s'écrit de la façon suivante :

$$\frac{d\alpha_{exp}}{\alpha_{exp}} = \frac{d\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{fis\ 235U}} + \frac{d\epsilon_i^{capt\ 235U}}{\epsilon_i^{capt\ 235U}} + \frac{d\epsilon_{CaF}}{\epsilon_{CaF}} + \frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N} \quad (I.3)$$

Nous avons évalué ces différents termes d'incertitudes :

1. Les efficacités de détection dans les scintillateurs YAP et leurs incertitudes sont indiquées dans les tableaux I.2 et I.3. Les valeurs utilisées pour estimer le rapport  $\alpha$  de l' $^{235}\text{U}$  par la suite sont résumées dans le tableau I.4.
2. L'efficacité de détection de fission  $\epsilon_{CaF}$  est estimée à 76 %. Son erreur est estimée à quelques pourcents (erreur apportée par la simulation MCNP). Le terme d'incertitude  $\frac{d\epsilon_{CaF}}{\epsilon_{CaF}}$  ne compte quasiment pas en comparaison des autres incertitudes. Ce terme devra être connu avec une précision inférieure au pourcent pour la mesure du rapport  $\alpha$  avec la précision voulue initialement. Cependant, avec le dispositif expérimental actuel, la première modification impérative consiste en l'amélioration du rapport signal sur bruit.
3. Le facteur de normalisation est connu avec une erreur de l'ordre du pourcent. Par contre, le terme  $\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i}$  est important quelle que soit la configuration expérimentale. Le tableau I.5 résume les valeurs de ce terme d'erreur.

10 mm				2 mm			
	1	2	3		1	2	3
$\epsilon_i^{fis\ 235U}$	34.77 %	3.047 %	0.167 %	$\epsilon_i^{fis\ 235U}$	44.78 %	5.704 %	0.487 %
$\frac{d\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{fis\ 235U}}$	4.3 %	7.3 %	23 %	$\frac{d\epsilon_i^{fis\ 235U}}{\epsilon_i^{fis\ 235U}}$	4.3 %	7.3 %	23 %

TAB. I.2 – Résumé des valeurs d'efficacité expérimentales de fission de l' $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP de 10 mm d'épaisseur (en gauche) et de 2 mm (en droite), en fonction de la coïncidence.



**10 mm**

	$2 * \frac{b_i}{f_i}$	N	$\frac{dN}{N}$	$\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$
1	95	1.81	1 %	172 %
2	23	1.81	1 %	42 %
3	6	1.81	1 %	11 %

**2 mm**

	$2 * \frac{b_i}{f_i}$	N	$\frac{dN}{N}$	$\frac{b_i}{s_i - f_i - N * b_i} * N * \frac{dN}{N}$
1	131	1.17	1 %	153 %
2	23	1.17	1 %	27 %
3	5.0	1.17	1 %	5.8 %

TAB. I.5 – Calcul du dernier terme d’erreur sur la mesure du rapport  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$ , en fonction de la coïncidence, pour les mesures avec des scintillateurs de 10 mm (en haut) et de 2 mm (en bas). Les valeurs données sont intégrées sur la plage en temps relatif comprise entre 50  $\mu\text{s}$  et 500  $\mu\text{s}$ .

**2 mm**

	1	2	3
$\epsilon_i^{\text{capt } 235\text{U}}$	16.73 %	0.98 %	0.029 %
$\frac{d\epsilon_i^{\text{capt } 235\text{U}}}{\epsilon_i^{\text{capt } 235\text{U}}}$	31 %	34 %	52 %

TAB. I.3 – Résumé des valeurs d’efficacité expérimentales de la capture de  $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP de 2 mm, en fonction de la coïncidence. Les données pour les scintillateurs de 10 mm n’ont pas été mesurées expérimentalement.

**2 mm**

	1	2	3
$\frac{\epsilon_i^{\text{fis } 235\text{U}}}{\epsilon_i^{\text{capt } 235\text{U}}}$	2.66 %	5.76 %	16.6 %
$\frac{d\epsilon_i^{\text{fis}}}{\epsilon_i^{\text{fis}}} + \frac{d\epsilon_i^{\text{capt } 235\text{U}}}{\epsilon_i^{\text{capt } 235\text{U}}}$	35 %	41 %	75 %

TAB. I.4 – Résumé des rapports des efficacités expérimentales de fission sur celles de capture de  $^{235}\text{U}$  dans les scintillateurs YAP de 2 mm (en bas), en fonction de la coïncidence.

Nous avons délimité la mesure du rapport  $\alpha$  en temps à 50  $\mu\text{s}$ . L’explication provient des erreurs sur les efficacités de détection dues au positionnement du système expérimental. Nous avons vu que, à cause de la non-reproductibilité de la position du rail de guidage, l’efficacité de détection du bloc de plomb ne varie pas sans coïncidence, mais elle varie de 22 % en coïncidence double. Les résonances des impuretés du bloc de plomb sont donc détectés avec une efficacité pouvant varier de 22 % en

coïncidence double et 53 % en coïncidence triple.

Nous avons aussi remarqué que le fait de ne pas pouvoir imposer un seuil en énergie rigoureusement identique pour tous les scintillateurs YAP pouvait amener une erreur de 3.5 % sans coïncidence, de 6.85 % en coïncidence au moins double et de 22.9 % en coïncidence au moins triple. Comme nous n'avons pas pu enregistrer les amplitudes des signaux provenant des scintillateurs, nous ne pouvons pas quantifier cette erreur, pourtant non négligeable en coïncidence double et triple.

### **I.3 Comparaison avec d'autres mesures de fission ?**

Actuellement, le dispositif expérimental utilisé ne nous permet pas réellement de mesurer la capture d'un élément fissile. Cependant, imaginons que nous parvenons à améliorer le dispositif en augmentant de façon significative le rapport signal sur bruit. L'incertitude qui limitera la précision du rapport  $\alpha$  restera toujours l'incertitude sur la mesure de la capture. Par contre, nous pouvons alors nous demander si, pour obtenir le rapport  $\alpha$ , il n'est pas intéressant d'utiliser non pas la mesure de la fission mesurée alors avec le dispositif mais une autre mesure de fission plus précise obtenue avec un autre dispositif expérimental.

Imaginons donc que nous mesurons la capture avec notre système (en "oubliant" la mesure intermédiaire de la fission) et que nous mesurons la fission par ailleurs (ici, on garde le même système, mais on pourrait adapter l'épaisseur de cible ou autre). Même si l'on arrive à mesurer très précisément la fission seule avec une autre méthode, cela n'améliorera pas forcément la mesure du rapport  $\alpha$  puisqu'on a introduit d'autres erreurs systématiques pour comparer les deux mesures entre elles :

- La première sera l'erreur sur la normalisation au même flux de neutrons. Nous avons vu que ce terme est de l'ordre du pourcent.
- Si nous n'utilisons pas les mêmes cibles pour mesurer la capture et la fission, l'incertitude sur les masses des cibles intervient. Nous avons vu que nous les connaissons à 1 % près.
- De plus, si nous n'utilisons pas le même système de détection et si nous n'enregistrons pas les amplitudes des signaux énergétiques, une erreur systématique non négligeable provient du fait que les seuils des discriminateurs ne sont pas rigoureusement identiques. Cette erreur est d'autant plus élevée que la coïncidence imposée l'est. Elle peut être égale jusqu'à 23 % en coïncidence triple pour une variation des seuils dans une plage de 20 %.
- Si les chambres à fission utilisées sont différentes (électrode centrale ou tout simplement tension de polarisation imposée différentes), les efficacités de détection de la fission seront distinctes. Nous avons vu que l'incertitude sur l'efficacité de détection de la fission est de l'ordre du pourcent.

Pour conclure, si le dispositif expérimental est modifié de façon à ce que la mesure du rapport  $\alpha$  soit rendue faisable avec la précision souhaitée, alors la comparaison avec une autre mesure de fission obtenue par ailleurs ne pourra pas véritablement améliorer la précision. En effet, pour pouvoir effectuer la comparaison, de nombreuses erreurs rentrent alors en jeu. La mesure directe restera la plus précise.

# Bibliographie

- [1] E. Merle-Lucotte, D. Heuer, C. Le Brun, J.M. Loiseaux : “Scenarios for a worldwide deployment of nuclear power”, International Journal of Nuclear Governance, Economy and Ecology 1 n.2 (2006) 168-192
- [2] P. Russ, P. Criqui : “Post-Kyoto CO2 emission reduction : the soft landing scenario analysed with POLES and other world models”, Energy Policy, vol. 35, n° 2, p. 786-796 (2007)
- [3] IIASA-WEC. Global Energy Perspectives, Cambridge University Press (1998)
- [4] J.L. Bobin, E. Huffer, H. Nifenecker : “L'énergie de demain. Techniques, environnement, économie”, édition EDP Sciences, ISBN : 2-86883-771-9
- [5] Generation IV International Forum : “A Technology Roadmap fo Generation IV Nuclear Energy Systems”, Report GIF-002-00 (2002)  
site internet : <http://nuclear.energy.gov/genIV/neGenIV1.html>
- [6] “Systèmes nucléaires du futur, Génération IV”, Les Clés du CEA, n°55 (2007)
- [7] J.F. Luciani et A. Simon : “Les ressources d'uranium fissile permettent-elles de répondre à une forte croissance de l'énergie nucléaire mondiale ?”, rapport CEA HC/AS/em/2002-192 (2002)
- [8] “ELECNUC - Les centrales nucléaires dans le monde” Edition 2005, CEA
- [9] A. Berthet : “Utilisation du plutonium dans les REP”, Technique de l'ingénieur, BN 3 120
- [10] J.P. Cretté, H. Noël, P. Bacher : “Réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium”, Technique de l'ingénieur, BN 3 170
- [11] H. Bailly, D. Ménessier, C. Prunier : “Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides - conception et comportement”, édition Eyrolles - CEA (1996)
- [12] M. Yvon : “réacteurs à eau ordinaire sous pression. Le projet EPR”, Technique de l'ingénieur, BN 3 102
- [13] E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, V. Ghetta, C. Le Brun et al : “Optimized transition from the reactors of second and third generations to the Thorium Molten Salt Reactor”, Proceedings of the ICAPP 2007 : International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, France (2007)
- [14] A. Nuttin : “Potentialités du concept de réacteurs à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique”, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (2002)

- [15] L. Mathieu : "Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor", Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble (2005)
- [16] D. Heuer, E. Merle-Lucotte, L. Mathieu : "Concept de réacteurs à sels fondus en cycle thorium sans modérateur", Revue Générale du Nucléaire N° 5/2006, p 92-99 (2006)
- [17] C. Le Brun : "Molten salts and nuclear energy production", Journal of Nuclear Materials - 7th International Symposium on Molten Salts Chemistry and Technology (MS7), France (2007)
- [18] E. Merle-Lucotte : "Le concept de TMSR : Réacteurs à sels fondus en cycle thorium", Congrès de la Société Française de Physique, France (2007)
- [19] E. Merle-Lucotte : "Futur du nucléaire - Nucléaire du futur", Rencontres Jeunes Chercheurs (RJC 2006), France (2007)
- [20] X. Doligez, M. Allibert, V. Ghetta, D. Heuer, E. Merle-Lucotte : "Etude par simulation numérique du retraitement des déchets du T.M.S.R. (Thorium Molten Salt Reactor)" Rapport de stage de Master 2 Recherche, LPSC, Grenoble (2007)
- [21] J.F. Briesmeister : "MCNP - A general Monte-Carlo N Particule Transport Code" Los Alamos Laboratory report LA-12625-M (1997)  
site internet : <http://mcnp-green.lanl.gov/index.html>
- [22] O. Méplan et al. : "MCNP Utility for Reactor Evolution",  
site internet : <http://lpsc.in2p3.fr/gpr/MURE/htm/MURE/MURE.html>
- [23] National Nuclear Data Center. Brookhaven National Laboratory,  
site internet : <http://www.nndc.bnl.gov/index.jsp>
- [24] Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR/CSISRS),  
site internet : <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/exfor00.htm>
- [25] Computer Index of Nuclear reaction DATA,  
site internet : <http://www.nndc.bnl.gov/exfor7/cinda.htm>
- [26] B. MacFarlane et al. : "NJOY 97.0, Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B-VI Data", 1988 RSICC Code package PSR-368
- [27] N.M. Larson : "Updated Users's guide for SAMMY : multilevel R-Matrix Fits to Neutrons Data Using Bayes's Equation" 2003 Oak Ridge National Laboratory/TM-9179/R6
- [28] E. Bauge, S. Hilaire : "Modélisation et Evaluation de Données", Ecole Internationale Joliot-Curie, Maubuissons, France (2006)
- [29] Collaboration n-ToF,  
site internet : <http://pceet075.cern.ch/>
- [30] M.B. Chadwick, P. Oblozinsky, M. Herman, N.M. Greene, R.D. McKnight, D.L. Smith, P.G. Young, R.E. MacFarlane, G.M. Hale, S.C. Frankle, A.C. Kahler, T. Kawano, R.C. Little, D.G.

Madland, P. Moller, R.D. Mosteller, P.R. Page, P. Talou, H. Trellue, M.C. White, et al. : "Next Generation Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and Technology", Nuclear Data Sheets, Volume 107, n°12, Pages 2931-3118 (décembre 2006)

- [31] G. Aliberti, G. Palmiotti, M. Salvatores, T.K. Kim, T.A. Taiwo, M. Animescu, I. Kodeli, E. Sartori, J.C. Bosq and J. Tommasi : " Nuclear data sensitivity, uncertainty and target accuracy assessment for future nuclear systems", Annales de Nuclear Energy, p. 700-733, vol. 33, n° 8, (mai 2006)
- [32] E. Chevalier : "Analyse de sensibilité et d'incertitude de données nucléaires", Stage de deuxième année d'école d'ingénieur ENSPG (2007)
- [33] A. Bidaud : "Analyse de sensibilité et d'incertitude de données nucléaires. Contribution à la validation d'une méthodologie utilisant la théorie des perturbations ; application à un concept innovant : réacteurs à sels fondus thorium à spectre épithermique", Thèse de doctorat, université Paris XI Orsay (2005)
- [34] Résumé du rapport de la conférence "Assessment of Nuclear Data Needs for Thorium and other Advanced Cycles", INDC(NDS)-408, AIEA (août 1999)
- [35] L. Perrot : "Validation des bases de données de sections efficaces par l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb entre 0.1 eV et 30 keV. Méthodologie-Résultats", Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (2001)
- [36] N. Thiollière : "Mesure des section efficaces de diffusion élastique du carbone et du fluor sur la plate forme PEREN", Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (2005)
- [37] GENEPI II. Rapport interne, LPSC (2003)
- [38] H. Liskien, A. Paulsen : "Neutron production cross sections and energies for the reactions  $T(P,N)^3\text{He}$ ,  $D(d,n)^3\text{He}$ , and  $T(d,n)^4\text{He}$ ", Inst. for Ref. Mat. and Meas. (IRNM), Geel International, Nuclear Data Tables (Nuclear Data Sect.A), vol.11, p.569 (1973)
- [39] PHOTONIS. Photomultiplier tubes, catalogue (2005)
- [40] Dow Corning 732 : Mastic silicone mono-composant multifonction
- [41] SRIM "Stopping and Range of Ions in Solids",  
site internet : <http://www.srim.org/SRIM/SRIM2006.htm>
- [42] Evaluated Nuclear Data File,  
site internet : <http://www.nndc.bnl.gov/exfor7/endl00.htm>
- [43] D. Belhafaf : "Etude des distributions d'Energie Cinétique des Fragments près de la Symétrie dans la Fission Thermique de l'Uranium 233 et 235", Thèse de doctorat, Université scientifique et médicale de Grenoble, Grenoble (1981)
- [44] J.F. Ziegler : "SRIM, the Stopping and Range of Ions in Matter, Instruction Manual", version 96.xx, pages 37 et 38 (27 novembre 2007)
- [45] GEANT 4,  
site internet : <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>

- [46] K. Amako et al. : "Comparison of GEANT4 electromagnetic physics models against the NIST reference data", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 52, n° 4, p. 910-918 (août 2005)
- [47] S. Incerti et al. : "Simulation of ion propagation in the microbeam line of CENBG using GEANT4", NIM B, vol. 210, p. 92-97 (septembre 2003)
- [48] A. Fasso, A. Ferrari, J. Ranft, and P.R. Sala : "FLUKA : a multi-particle transport code", CERN-2005-10 (2005), INFN/TC\_05/11, SLAC-R-773  
 A. Fasso, A. Ferrari, S. Roesler, P.R. Sala, G. Battistoni, F. Cerutti, E. Gadioli, M.V. Garzelli, F. Ballarini, A. Ottolenghi, A. Empl and J. Ranft : "The physics models of FLUKA : status and recent developments", Computing in High Energy and Nuclear Physics 2003 Conference (CHEP2003), La Jolla, CA, USA, (24-28 mars 2003)  
 site internet : <http://www.fluka.org/>
- [49] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark : "The Stopping and Range of Ions in Solids", Pergamon Press, New York (1985)
- [50] J.P. Biersack and L. Hagmark, Nucl. Instr. and Meth., vol. 174, 257 (1980)
- [51] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark : "The Stopping and Range of Ions in Matter", volumes 2 - 6, Pergamon Press (1977-1985)
- [52] L.C. Northcliffe, R.F. Schilling : "Range and stopping-power tables for heavy ions", Nuclear Data Tables, A7, 233-463 (1970)
- [53] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark : "The Stopping and Range of Ions in Solids", p. 185, Pergamon Press, New York (1985)
- [54] Institute for Reference Materials and Measurements,  
 site internet : <http://www.irmm.jrc.be/html/homepage.htm>
- [55] A. Billebaud : "Système d'acquisition de données sur SUN", Rapport interne (2003)
- [56] S. Pierre : "Techniques de mesure précise de sections efficaces de fission", mémoire du CNAM, Instrumentation, Mesure, option Qualité (juin 2006)
- [57] Glenn F. Knoll : "Radiation Detection and Measurement", troisième édition (1999), ISBN : 0-471-07338-5
- [58] W.R. Leo : "Techniques for nuclear particule physics and experimentation, a how-to approach", Springer-Verlag (1987), ISBN : 3-540-17386-2
- [59] D. Blanc : "Les rayonnements ionisants. Détections, spectrométrie, dosimétrie", édition Masson (1990), ISBN : 2-225-82190-9
- [60] Los Alamos National Laboratory,  
 site internet : <http://www.lanl.gov/>
- [61] Advanced Visual System,  
 site internet : <http://www.av.s.com/>

- [62] R. Brun and F. Rademakers : "ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework", site web : <http://root.cern.ch/>). Nucl. Inst and Meth. in Phys. Res, A389 :81-86 (1997)
- [63] GEANT4, IEEE Transactions on Nuclear Science 53 No. 1 270-278 (2006)
- [64] GoodFellow,  
site internet : <http://www.goodfellow.com/csp/active/gfHome.csp>





Bibliographie associée à l'annexe B uniquement

# Bibliographie

- [ADA83] Yu.V. Adamchuk, M.A. Voskanyan, G. Georgiev, A.L. Kovtun, G.V. Muradyan, N. Stancheva, N. Chikov, N. Yaneva, Yu.G. Shchepkin : “Measurements of the alpha value for  $^{233}\text{U}$ ”, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria et Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Atomnaya Energiya, Vol 65, Issue 6, p. 434, Moscou, URSS
- [ADA86] Yu.V. Adamchuk, M.A. Voskanyan, A.L. Kovtun, G.V. Muradyan, Yu.G. Shchepkin, G.P. Georgiev, N.S. Stancheva, N.F. Tchikov, N.B. Janeva : “U-235 alpha value in thermal neutron energy point”, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria et Inst. At. En. I.V.Kurchatova, Moscou, Russie, Comptes Rendus Acad. Bulgare Sci. Vol 39, Issue 10, p. 59, Bulgarie
- Yu.V. Adamchuk, M.A. Voskanyan, A.L. Kovtun, G.V. Muradyan, Yu.G. Shchepkin, G.P. Georgiev, N.S. Stancheva, N.F. Tchikov, N.B. Janeva : “U-235 alpha value in thermal neutron energy point”, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria et Inst.At.En. I.V.Kurchatova, Moscou, Russie, Bulgarian Journal of Physics, Vol 13, p. 3, Bulgarie
- Yu.V. Adamchuk, M.A. Voskanyan, A.L. Kovtun, G.V. Muradyan, Yu.G. Shchepkin, G.P. Georgiev, N.S. Stancheva, N.F. Tchikov, N.B. Janeva : “U-235 alpha value in thermal neutron energy point”, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria et Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Moscou, Russie, Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect A, Vol 236, p 105, Pays-Bas
- Yu.V. Adamchuk, M.A. Voskanyan, A.L. Kovtun, G.V. Muradyan, Yu.G. Shchepkin, G.P. Georgiev, N.S. Stancheva, N.F. Tchikov, N.B. Janeva : “U-235 alpha value in thermal neutron energy point”, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria et Inst.At.En. I.V.Kurchatova, Moscou, Russie, Bulgarian report to the I.N.D.C. No 008, p .3
- [ADA88] Yu.V. Adamchuk, M.A. Voskanyan, G. Georgiev, A.L. Kovtun, G.V. Muradyan, N. Stancheva, N. Chikov, N. Yaneva, Yu.G. Shchepkin : “Measurements of the alpha-values for U-235”, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria et Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Moscou, URSS, Atomnaya Energiya, Vol 65, Issue 6, p. 434, Russie
- [ADA79] V.M. Adamov et al., Conférence de Knoxville, 995 (1979)
- [ALK83] I.D. Alkhazov et al., Conférence de Moscou, 2, 201 (1983)

- [ALK86] I.D. Alkhozov et al., *Jadernye Konstanty*, 4, 19 (1986)
- [ALK88] I.D. Alkhozov et al., *Conférence de Mito*, P.145 (1988)
- [AND58] V.M. Andreev : "Measurements of  $\nu(\text{eff})$  and fission + capture for fast neutrons in U235 and PU239", *Union des Républiques Socialistes Soviétiques, Atomnaya Energiya*, Vol 4, p. 185, Russie  
 V.M. Andreev : "Measurements of  $\nu(\text{eff})$  and fission + capture for fast neutrons in U235 and PU239", *Union des Républiques Socialistes Soviétiques, Soviet Atomic Energy*, Vol 4, p. 247, USA  
 V.M. Andreev : "Measurements of  $\nu(\text{eff})$  and fission + capture for fast neutrons in U235 and PU239", *Union des Républiques Socialistes Soviétiques, Journal of Nuclear Energy*, Vol 9, p. 151, Royaume-Unis
- [ARL79] R. Arlt et al., *Conférence de Knoxville*, 990 (1979)
- [ARL83] R. Arlt et al., *Conférence de Smolenice*, 174 (1983)
- [ARL85] Arlt R. et al., *Isotopenpraxis*, 21, 344 (1985)
- [AZI83] D. Azimi-Garakani and M. Bagheri-Darbandi , *INDC(IRN)-003* (1983)
- [BAN72] R.E. Bandl, H. Miessner, F.H. Froehner : "A measurement of the capture-to-fission ratio alpha for U-235 and Pu-239 with a EW technique", *Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Allemagne, Nuclear Science and Engineering Vol 48*, p. 324, USA  
 R.E. Bandl, H. Miessner, F.H. Froehner : "A measurement of the capture-to-fission ratio alpha for U-235 and Pu-239 with a EW technique", *Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Allemagne, Kernforschungszentrum Karlsruhe Reports, No 1563, Allemagne*  
 R.E. Bandl, H. Miessner, F.H. Froehner : "A measurement of the capture-to-fission ratio alpha for U-235 and Pu-239 with a EW technique", *Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Allemagne, conférence : "3rd Conf.Neutron Cross-Sections+Tech."*, p. 273, Knoxville, USA (1971)
- [BAR76] D.M. Barton et al., *Nuclear Science and Engineering*, 60, 369 (1976)
- [BEC69] Jr.F.D. Becchetti and G.W. Greenlees, *Phys. Rev.*, 182, 1190 (1969)
- [BEE78] H. Beer, F. Kaeppler : "A measurement of the capture-to-fission ratio of 235-U in the neutron energy range from 10 to 500 keV", *Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Allemagne, Kernforschungszentrum Karlsruhe preprint report, No 624*
- [BEE79] H. Beer and F. Kaeppler, *Phys. Rev. C*20, 201 (1979)
- [BES77] C.B. Besant et al., *British Nucl. Ener. Soc.*, 16, 161 (1977)
- [BLO73] Blons et al., *Nucl. Sci. Eng.*, 51, 130 (1973)
- [BOE72] K.H. Boeckhoff et al., *J. Nucl. Energy*, 26, 91 (1972)

- [BOL73] P. Bolotskij, V.I. Petrushin, A.N. Soldatov, S.I. Sukhoruchkin : “Measurement of ratio of capture cross-section up to fission cross-section for Pu-239 in the energy range 0.1 - 30 keV”, Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Moscou, URSS, Conference on Neutron Physics, Vol 4, p. 49, Kiev, URSS (1973)
- [BOR95] S.B. Borzakov et al., AE, 79, 231 (1995)
- [BRO66235] F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports, No 1670, Royaume-Unis
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, conférence : “Reactor Physics Conference”, San Diego, Vol 2, p. 193, USA (1966)
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, U.K. report to EANDC, No 42
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, conférence : “Third Internat. At. En. Conference”, Vol 2, p. 167, Genève, (1964)
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, Brookhaven National Laboratory report, series No 325, USA
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports, No 9, p. 11, Royaume-Unis
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports, No 6, p. 13, Royaume-Unis
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports, No 5, p. 8, Royaume-Unis
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports No 4, Royaume-Unis
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports No 3, Royaume-Unis
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV”, AERE, Harwell, Royaume-Unis, conférence : “Time of Flight Methods Conference”, p. 131, Saclay, France (1961)
- F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : “Eta and neutron cross

sections of U-235 from 0.03 to 200 eV", AERE, Harwell, Royaume-Unis, conférence : "Neutron Physics Symp.", Rensselaer Polytech, p. 109, USA (1961)

F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV", AERE, Harwell, Royaume-Unis, A.E.R.E. Harwell Reports No 123, Royaume-Unis

F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV", AERE, Harwell, Royaume-Unis, Nuclear Instrum.and Methods in Physics Res., Vol 28, p. 205, Pays-Bas

F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV", AERE, Harwell, Royaume-Unis, Nuclear Instrum.and Methods in Physics Res., Vol 4, p. 151, Pays-Bas

[BRO66235bis] F.D. Brooks, J.E. Jolly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of U-235 from 0.03 to 200 eV", AERE, Harwell, Royaume-Unis, conférence : "Reactor Physics Conference", San Diego, Vol 2, p. 193, USA (1966)

[BRO66] F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 1709

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, report to EANDC, No 42L

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, Conférence : "Reactor Physics Conf.", Vol 2, p. 193, San Diego (1966)

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 11 (1967)

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 9, p. 11

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 7, p. 6

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 6, p. 13

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 3

F.D. Brooks, J.E. Joly, M.G. Schomberg, M.G. Sowerby : "Eta and neutron cross sections of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ ", AERE, Harwell, Angleterre, Private communication

- [BRA89] M.C. Brady and T.R. England, Nuclear Science and Engineering, 103, 129 (1989)
- [BUL88] N.N. Buleeva et al., Atomnaja Energija, 65, 348 (1988)
- [CAB62] M.J. Cabell, L.J. Slee : "The ratio of neutron capture to fission for  $^{233}\text{U}$ ", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, Nuclear Energy (Reactor Sci.Techn.), Vol 16, p. 195 (1962)
- [CAB71] M.J. Cabell, M. Wilkins : "The thermal neutron capture cross-section of  $^{233}\text{U}$ ", Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry ,Vol 33, p. 3972  
M.J. Cabell, M. Wilkins : "The thermal neutron capture cross-section of  $^{233}\text{U}$ ", Nuclear Energy (Reactor Sci.Techn.), Vol 16, p. 195
- [CAN78] M. Cance and G. Grenier, Nuclear Science and Engineering, 68, 197 (1978)
- [CAN81] M. Cance and G. Grenier, CEA-N-2194 (1981)
- [CAO68] M.G. Cao, F. Migneco, J.P. Theobald, J.A. Wartena, J. Winter : "Fission cross-section measurement on U-235", Inst. for Ref. Mat. and Meas. (IRMM), Geel International, Journal of Nuclear Energy, Vol 22, p. 211, Royaume-Unis  
M.G. Cao, F. Migneco, J.P. Theobald, J.A. Wartena, J. Winter : "Fission cross-section measurement on U-235", Inst. for Ref. Mat. and Meas. (IRNM), Geel International, conférence : "Nuclear Cross-Sections Techn. Conference", Vol 1, p. 481, Washington, USA (1968)  
M.G. Cao, F. Migneco, J.P. Theobald, J.A. Wartena, J. Winter : "Fission cross-section measurement on U-235", Inst. for Ref. Mat. and Meas. (IRMM), Geel International, private communication
- [CAR78] A.D. Carlson and B.H. Patrick, Harwell Conference, 880(1978)
- [CAR82] A.D. Carlson and J.W. Behrens, Antwerp Conférence, 456(1982)
- [CAR84] A.D. Carlson et al., Private Communication (1984), Paper Presented at Advisory Group Meeting on Nuclear Standard Reference Data, Geel
- [CAR93] A. Carlson, W.P. Poenitz, G.M. Hale, R.W. Peele, D.C. Dodder, C.Y. Fu, and W. Manhart : "The ENDF/B-6 Neutron Cross Section Measurements Standards", NISTIR-5177, Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (Mai 1993)
- [COC58] S.J. Cocking : "Measurement of the ratio of absorption cross-section to fission cross-section for U-233, U-235 and Pu-239 with 0.0011 eV neutrons", AERE, Harwell, Angleterre, Journal of Nuclear Energy, Vol 6, p. 285, Royaume-Unis (1958)  
S.J. Cocking : "Measurement of the ratio of absorption cross-section to fission cross-section for U-233, U-235 and Pu-239 with 0.0011 eV neutrons", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 2076, Royaume-Unis (1958)
- [CON71] J.F. Conant and P.F. Palmedo, Nuclear Science and Engineering, 44, 173 (1971)
- [CON67] D.E. Conway and S.B. Gunst : "Integral Measurements of the Epithermal Neutron Capture-to-Fission Ratios of  $^{233}\text{U}$ , Report WaPT-TM-613, Bettis Atomic Power Laboratory (juin1967)

- [COR75] F. Corvi, P. Giacobbe : "Capture-To Fission Ratio of 235-U from the Measurement Of Low Energy Gamma-Rays", ENEA Centro Ricerche Energia di Bologna Italy et Inst. for Ref. Mat. and Meas. (IRMM, Geel), Conférence : "Conference on Nucl.Cross-Sect.and Techn.", p. 599, Washington, USA (1975)
- [COX74] S.A. Cox : ANL/NDM-5 (1974)
- [CRA58] D.S. Craig, G.C. Hanna, D.G. Hurst, S.A. Kushneriuk, W.B. Lewis, A.G. Warn : "Long Irradiation of Natural Uranium", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, Canada, conférence : "Second Internat. At.En. Conference", Vol 16, p. 83, Genève (1958)
- [COR81] F. Corvi et al., NEANDC(E) 232U, vol 3, 5 (1981)
- [CZI70] J.B. Czirr, J. Lindsey : "U-235 and PU-239 capture-to-fission ratios", Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA-USA, conférence : "Nuclear Data for Reactors Conference", Vol 1, p. 331(47), Helsinki (1970)  
 J.B. Czirr, J. Lindsey : "U-235 and PU-239 capture-to-fission ratios", Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA-USA, Report : U.C., Lawrence Rad.Lab. (Berkeley and Livermore), No 72454, USA (1970)  
 J.B. Czirr, J. Lindsey : "U-235 and PU-239 capture-to-fission ratios", Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA-USA, Nuclear Science and Engineering, Vol 41, p. 56, USA (1970)
- [CZI75] J.B. Czirr and G.S. Sidhu, Nuclear Science and Engineering, 57, 18 (1975)
- [CZI75b] J.B. Czirr and G.S. Sidhu, Nuclear Science and Engineering, 58, 371 (1975)
- [CZI76] J.B. Czirr and G.S. Sidhu, Nuclear Science and Engineering, 60, 383 (1976)
- [DER74] Deruyter et al., Nucl. Sci. Eng., 54, 423 (1974)
- [DEU46] M. Deutsch, M. Kahn, J.A. Miskel : "Determination of the number of fissions in two irradiated samples of U-235", Los Alamos National Laboratory, NM USA, Los Alamos Scientific Lab. Reports, No 511 (1946)
- [DIV58] B.C. Diven, J. Terrell, A. Hemmendinger : "Capture-to-fission ratios for fast neutrons in U235", Los Alamos National Laboratory, NM USA, Physical Review, Vol 109, p. 144, USA
- [DUR66] R.W. Durham, G.C. Hanna, M. Lounsbury, C.B. Bigham, R.G. Hart, R.W. Jones : "The ratio of capture to fission in U235 and Pu239", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, Canada, conférence : "Nuclear Data For Reactors Conf.", Vol 2, p. 17(2), Paris, France (1966)  
 R.W. Durham, G.C. Hanna, M. Lounsbury, C.B. Bigham, R.G. Hart, R.W. Jones : "The ratio of capture to fission in U235 and Pu239", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, Canada, Canadian report to EANDC, No 17, p. 4
- [DUS84] V.N. Dushin et al., Sov. Atom. Energy, 55, 656 (1984)



- [DVU74] V.G. Dvukhshestnov, Yu.A. Kazanskiy, E.A. Plaksin, V.M. Furmanov : "Capture cross-section to fission cross-section ratio measurement method", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk URSS, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya Reports, No 18, p. 3, Russie  
 V.G. Dvukhshestnov, Yu.A. Kazanskiy, E.A. Plaksin, V.M. Furmanov : "Capture cross-section to fission cross-section ratio measurement method", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk URSS, Conférence : "Neutron Physics Conference", Kiev, Vol 2, p. 318, URSS (1971)  
 V.G. Dvukhshestnov, Yu.A. Kazanskiy, E.A. Plaksin, V.M. Furmanov : "Capture cross-section to fission cross-section ratio measurement method", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, URSS, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya Reports, No 12, p. 7, Russie  
 V.G. Dvukhshestnov, Yu.A. Kazanskiy, E.A. Plaksin, V.M. Furmanov : "Capture cross-section to fission cross-section ratio measurement method", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, URSS, Fiz.-Energ Institut Obninsk Reports, No 285, Russie
- [EAS70] L.V. East et al., LA-4605-MS (1970)
- [EGE55] P.A. Egelstaff, J.E. Sanders : "Neutron yields from fissile nuclei", AERE, Harwell, Angleterre, conférence : "1st UN Conf. Peaceful Uses Atomic Energy", Vol 4, p. 307, Genève (1955)
- [ESC64] L.J. Esch, F. Feiner : "Measurement of alpha for  $^{233}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  in the epithermal region", Knolls Atomic Power Laboratory, Schenectady, NY, Transactions of the American Nuclear Society, Vol 7, p. 272
- [EVA73] A.E. Evans and M.M. Thorpe, Nuclear Science and Engineering, 50, 80 (1973)
- [FES80] H. Feshbach et al., Ann. Phys. (N.Y.) 125, 429 (1980)
- [FIL88] A.A. Filatenkov et al., Jadernye Konstanty, 2, 56 (1988)
- [FRE80] J. Frehaut et al., Nuclear Science and Engineering, 74, 29 (1980)
- [FRE80b] J. Frehaut et al., EXFOR 20506.002 (1980), 21685.002 (1980)
- [FRE82] J. Frehaut et al., 1982 Antwerp Conf., 78 (1982)
- [FOS71] D.G. Foster and D.W. Glasgow, Phys. Rev., C3, 576 (1971)
- [GIL65] A. Gilbert and A.G.W. Cameron, Can. J. Phys., 43, 1446 (1965)
- [GNI77] N.L. Gnidak, A.L. Kiriljuk, E.A. Pavlenko, V.P. Vertebnyj, N.A. Trofimova, A.V. Grebnev : "Neutron cross-sections and alfa-value of U-235 for neutron energy 2.0 keV", Inst. Yadernykh Issledovaniy A.N. Ukrainskoi SSR, Kiev, URSS, conférence : "4. All Union Conf. on Neutron Phys.", Vol 2, p. 223, Kiev, URSS (18-22 Avril 1977)
- [GON86] R.K. Goncharov, A.V. Zvonarev, V.I. Ivanov, Yu.A. Kazanskiy, B.V. Koloskov, M.N. Nikolaev, Pavlovich, B.A. Petrukhin, M. Yu. Semenov, N.V. Skorikov, E. Ya. Smetanin, A.M. Tsibulya, V.S. Shkolnik : "Comparison of the calculated alfa-values for

U-235 and Pu-239 with those obtained from the analysis of the fuel elements irradiated in BN-350 reactor", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, Atomnaya Energiya, Vol 61, Issue 6, p. 456

[GRE73]

F.L. Green et al., WAPD-TM-1073 (1973)

[GRI00]

Yu.V. Grigoriev, V.Ya. Kitaev, V.V. Sinitsa, H. Faykov-Stanchik, G.V. Mezentseva, Yu.V. Safronov, M. Stempinsky, N.V. Yaneva : "The Investigation of Resonance Structure of Neutron Cross-Sections and the Alpha-Value of U-235 For Different Temperatures", Sofia, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria, Univ. of Lodz, Lodz Poland Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk Russie, journal : Vop. At.Nauki i Tekhn., Ser.Yadernye Konstanty Vol 2002, Issue 1-2, p. 45, Russie (2002)  
Yu.V. Grigorev, V.V. Sinitsa, S.B. Borzakov, G.L. Ilchev, H. Faikov-Stanczyk, Ts.Ts. Panteleev, N.B. Yaneva : "Investigation of Neutron Cross-Sections and Alfa- Value  $\text{Alfa}=\text{Sigma-G}/\text{Sigma-F}$  For 235U in Energy Range 1 Milli-eV - 2 eV", Institute Sofia, Inst. of Nuclear Res. and Nuclear Energy Bulgaria Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, Joint Inst. for Nucl. Res., journal : Vop. At.Nauki i Tekhn., Ser.Yadernye Konstanty, Vol 2000, Issue 1, p. 3, Russie (2000)

Yu.V. Grigorev, G.P. Georgiev, Kh. Stanchik : "Gamma-ray multiplicity and alpha value measurement for U-235, resonances", Institute Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, Joint Inst. for Nucl. Res. Journal : Vop. At.Nauki i Tekhn., Ser.Yadernye Konstanty, Vol 1994, Issue 4, p. 89, Russie

Yu.V. Grigoriev, V.Ya. Kitaev, V.V. Sinitsa, K.V. Moiseev, H. Faikov-Stanchik, Ts.Ts. Panteleev : "Measurement of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra, The Alfa-Value of 239Pu in the Energy Range 2-2150 keV And of a Resonance Self-Shielding Effect in The Alfa-Value of 235U, 239Pu in the 4.65-2150 eV Energy Range", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, Joint Inst. for Nucl. Res. (1999)

Yu.V. Grigoriev, V.Ya. Kitaev, V.V. Sinitsa, K.V. Moiseev, H. Faikov-Stanchik, Ts.Ts. Panteleev : "Measurement of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra, The Alfa-Value of 239Pu in the Energy Range 2-2150KeV And of a Resonance Self-Shielding Effect in The Alfa-Value of 235U, 239Pu in the 4.65-2150 eV Energy Range", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, Yadernaya Fizika, Vol 62, Issue 5, p. 923, Russie

Yu.V. Grigoriev, V.Ya. Kitaev, V.V. Sinitsa, K.V. Moiseev, H. Faikov-Stanchik, Ts.Ts. Panteleev : "Measurement of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra, The Alfa-Value of 239Pu in the Energy Range 2-2150KeV And of a Resonance Self-Shielding Effect in The Alfa-Value of 235U, 239Pu in the 4.65-2150 eV Energy Range", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, J. Nucl. Science and Technol., Tokyo, Supplement, Vol 2, Issue 1, p. 222, Japon

Yu.V. Grigoriev, V.Ya. Kitaev, V.V. Sinitsa, K.V. Moiseev, H. Faikov-Stanchik, Ts.Ts. Panteleev : "Measurement of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra, The Alfa-

Value of  $^{239}\text{Pu}$  in the Energy Range 2-2150KeV And of a Resonance Self-Shielding Effect in The Alfa-Value of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  in the 4.65-2150 eV Energy Range", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, rapport de conférence : "Conf. on Nucl. Data for Sci. and Techn.", p. 221, Tsukuba, Japon (2001)

Yu.V. Grigoriev, V.Ya. Kitaev, V.V. Sinitsa, K.V. Moiseev, H. Faikov-Stanchik, Ts.Ts. Panteleev : "Measurement of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra, The Alfa-Value of  $^{239}\text{Pu}$  in the Energy Range 2-2150KeV And of a Resonance Self-Shielding Effect in The Alfa-Value of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  in the 4.65-2150 eV Energy Range", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, rapport de conférence : "Joint Inst. for Nucl. Res.", Dubna Reports No 98, 212, p. 233

Yu.V. Grigogev, V.V. Sinitsa, V.Ya. Kitaev, H. Faikov-Stanczyk, G.P. Georgiev, Hyon Sung Ho : "Measurements of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra And the Alpha Value For Uranium-235 and Plutonium-239", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, rapport de conférence : "Joint Inst. for Nucl. Res.", Dubna Reports No 98, 202, p. 250 (1998)

Yu.V. Grigogev, V.V. Sinitsa, V.Ya. Kitaev, H. Faikov-Stanczyk, G.P. Georgiev, Hyon Sung Ho : "Measurements of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra And the Alpha Value For Uranium-235 and Plutonium-239", rapport de conférence : "Joint Inst. for Nucl. Res.", Dubna Reports No 96, 336, p. 318

Yu.V. Grigogev, V.V. Sinitsa, V.Ya. Kitaev, H. Faikov-Stanczyk, G.P. Georgiev, Hyon Sung Ho : "Measurements of the Gamma-Ray Multiplicity Spectra And the Alpha Value For Uranium-235 and Plutonium-239", Fiziko-Energeticheskii Inst., Obninsk, Russie, rapport de conférence : "Joint Inst. for Nucl. Res.", Dubna Reports No 96, 336, p. 318 (1996)

- [GUD89] A.N. Gudkov et al., AE, 66, 100 (1989)
- [GWI76] R. Gwin et al., Nuclear Science and Engineering, 59, 79 (1976)
- [GWI78] R. Gwin et al, ORNL-TM-6246 (1978)
- [GWI84] R. Gwin et al., Nuclear Science and Engineering, 87, 381 (1984)
- [GWI84b] R. Gwin, R. R. Spencer, R. W. Ingle, J. H. Todd, and S. W. Scoles, Nuclear Science and Engineering 88, 37 (1984).
- [GWI86] R. Gwin et al, Nuclear Science and Engineering, 94, 365 (1986)
- [GWI96] R. Gwin, To be published in Nuclear Science Engineering.
- [HAL63] J. Halperin et al : "The average Capture/Fission Ratio of  $^{233}\text{U}$  for epithermal neutrons", Nuclear Science and Engineering, vol 16, number 2, p. 245 (juin 1963)
- [HAO82] G. Haouat et al., Nuclear Science and Engineering, 81, 491 (1982)
- [HAR79] J. Hardy : " $^{235}\text{U}$  Resonance Fission Integral and Alpha Based on Integral Measurements", ENDF-300, Sec. B.1, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY (1979)

- [HAR86] J.A. Harvey, N.W. Hill, F.G. Perey, G.L. Tweed, and L.C. Leal, proceedings de la conférence internationale : "Nuclear Data for Science and Technology", Mito, Japan (30 mai - 3 juin, 1988)
- [HER85] C.M. Herbach et al., INDC(GDR)-37 (1985)
- [HID85] K. Hida, JAERI-M 85-035, p. 166 (1985)
- [HOG60] C.H. Hogg, J.R. Berreth, R.P. Schuman : "U235 Capture cross section", Idaho Nuclear Corp., Idaho Falls, ID USA, Washington AEC Office Reports, No 1028, p. 50, USA (1960)
- [HOP61] J.C. Hopkins, B.C. Diven : "Neutron capture to fission ratios in U233, U235, Pu239", Los Alamos National Laboratory, NM USA, Nuclear Science and Engineering, Vol 12, p. 169, USA  
 J.C. Hopkins, B.C. Diven : "Neutron capture to fission ratios in U233, U235, Pu239", Los Alamos National Laboratory, NM USA, Conférence : "Time of Flight Methods Conference", p. 407, Saclay, France (1961)
- [HOP62] J.C. Hopkins et al : "Neutron capture to fission ratios in 233U, 235U, 239Pu", Nuclear Science and Engineering, vol 12, p. 169-177 (1962)
- [HOW84] R.E. Howe, Nuclear Science and Engineering, 86, 157 (1984)
- [IGA91] S. Igarasi and T. Fukahori : "Program CASTHY - Statistical Model Calculation for Neutron Cross Sections and Gamma Ray Spectrum", JAERI 1321, NEANDC(J)-156/U, INDC(JPN)-143/L (1991)
- [IGN64] K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Atomnaya Energiya, Vol 16, Issue 2, p. 110, Russie  
 K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Soviet Atomic Energy, Vol. 16, p. 121, USA  
 K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Journal Nuclear Energy, Part A+B (Reactor Sci.Techn.) Vol 18, p. 719, Royaume-Unis  
 K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Energie Atomique, Vol 16, Issue 2, p. 19, France  
 K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst.

Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Atomnaya Energiya, Vol 16, Issue 3, p. 211, Russie

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Soviet Atomic Energy, Vol 16, p. 251, USA

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Journal Nuclear Energy, Part A+B (Reactor Sci.Techn.) Vol 18, p. 523, Royaume-Unis

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Energie Atomique, Vol 16, Issue 3, p. 31, France

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Inst. Teoret. i Experiment. Fiziki, Moscou Repts, No 147, Russie

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, International Nucl. Data Committee report, séries No 7E

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Inst. Teoret. i Experiment. Fiziki, Moscou Repts, No 153, Russie

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, International Nucl. Data Committee report, séries No 8E

K.G. Ignatev, I.V. Kirpichnikov, S.I. Sukhoruchkin : "Measurements eta and partial cross-sections of U-235 and Pu-239 isotopes for resonance energy neutrons", Inst. Teoret. and Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Joint Inst. for Nucl. Res., reports No 2313, Dubna

[IGN79] A.V. Ignatyuk, Sov. J. Nucl. Phys., 29, 450 (1979)

[IJJ99] S. Iijima et al., JAERI-M 87-025, p. 337 (1987)  
T. Nakagawa et al., JAERI-Data/Code 99-031 (1999).

[ING50] M.G. Inghram, D.C. Hess, R.J. Hayden, F.T. Hagemann : "Ratio of capture to fission cross section of  $^{233}\text{U}$  for moderated pile neutrons", Argonne National Laboratory,

Illinois, USA, Argonne National Laboratory report, séries No. 4515, p. 15

- [IWA88] T. Iwasaki et al., Mito Conference, P. 91 (1988)
- [JOH91] R.G. Johnson et al., Private Communication (1991)
- [KAL88] V.A. Kalinin et al., Atomnaja Energij, 64, 194 (1988)
- [KAL91] V.A. Kalinin et al., Atomnaja Energij, 71, 181 (1991)
- [KAN55] W.R. Kanne, H.B. Stewart, F.A. White : "Capture-to-fission ratio of Pu239 and U235 for intermediate energy neutrons", Knolls Atomic Power Laboratory, Schenectady, NY, USA, conférence : "1st UN Conf. Peaceful Uses Atomic Energy", Vol 4, p. 315 (595), Genève (1955)
- [KAR78] K. Kari, KfK-2673 (1978)
- [KAW99] T. Kawano et al., JAERI-Research 99-009 (1999)
- [KAW00] T. Kawano et al., JAERI-Research 2000-004 (2000)
- [KAW01] T. Kawano et al., Phys. Rev., C63, 034601 (2001)
- [KEE57] G.R. Keepin et al., J. Nucl. Ener, 6, 1 (1957)
- [KEE67] G.R. Keepin et al., Phys. Rev., 107, 1044 (1957)
- [KEE69] G.R. Keepin, LA-4320, (1969)
- [KIK70] Y. Kikuchi and S. An, J. Nucl. Sci. Technol., 7, 157 (1970)
- [KIK99] Y. Kikuchi et al., JAERI-Data/Code 99-025 (1999)
- [KNI72] H.H. Knitter et al., Zeit. Physik, 257, 108 (1972)
- [KON75] V.N. Kononov, E.D. Poletaev, B.D. Jurlov : "Measurement of alpha-value, fission cross-section and capture cross-section for U-235 and Pu-239 in the neutron energy range 10-80 keV", Fiziko-Energeticheskii Inst., Atomnaya Energiya, Vol 38, Issue 2, p. 82, Obninsk, URSS
- [KRI72] M.S. Krick and A.E. Evans, Nuclear Science and Engineering, 47, 311 (1972)
- [KUK55] G.M. Kukavadse, L.L. Goldin, M.P. Anikina, B.W. Ershler : "Determination of the absorption cross section and of the radiative capture cross section of <sup>233</sup>U for pile neutrons", Institut Teoret. + Experiment, Fiziki, Moscou, Conférence : "Peaceful Uses Atomic Energy", Vol 4, p. 230, Genève (1955)
- [KUR70] M.A. Kurov, Yu.V. Ryabov, So-Don-Sik, N. Chikov : "The ratio measurement of capture cross sections to fission for 92-U-235, 94-Pu-239 in the resonance range of neutrons energies", Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna, Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna Reports, No 5113
- M.A. Kurov, Yu.V. Ryabov, So-Don-Sik, N. Chikov : "The ratio measurement of capture cross sections to fission for 92-U-235, 94-Pu-239 in the resonance range of neutrons energies", Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna, conférence : "Nuclear Data for

Reactors Conference", Vol 1, p. 345, Helsinki (1970)

M.A. Kurov, Yu.V. Ryabov, So-Don-Sik, N. Chikov : "The ratio measurement of capture cross sections to fission for  $^{92}\text{U-235}$ ,  $^{94}\text{Pu-239}$  in the resonance range of neutrons energies", Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya Reports, No 11, p. 35

- [LEA97] L.C. Leal, H. Derrien, N.M. Larson, R.Q. Wright : "R-Matrix Analysis of  $^{235}\text{U}$  Neutron Transmission and Cross Sections in the Energy Range 0 eV to 2.25 keV", ORNL/TM-13516, Lockheed Martin Energy Research Corp., Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN (1997)
- [LEA99] L.C. Leal et al., Nuclear Science and Engineering, 131, 230 (1999)
- [LED] C.M. Lederer and V.S. Shirley, Table of Isotopes, 7th Ed.
- [LIJ82] Li Jingwen et al., 1982 Antwerp Conf., 55 (1982)
- [LIJ86] Li Jingwen et al., INDC(CPR)-009/L, P.3 (1986)
- [LIS97] P.W. Lisowski et al., Private Communication (1997) to T.Fukahori(JAERI)
- [LOA97] D. Loaiza et al., ANS, 76, 361 (1997)
- [LOU70] M. Lounsbury, R.W. Durham, G.C. Hanna : "Measurements of alpha and of fission cross section ratios for  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  AND  $^{239}\text{Pu}$  at thermal energies", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, conférence : "Nuclear Data for Reactors Conference", Vol 1, p. 287 (2), Helsinki (1970)
- [MAD82] D.G. Madland and J.R. Nix, Nuclear Science and Engineering, 81, 213 (1982)
- [MAE65] W.J. Maeck, R.M. Abernathy, J.E. Rein : "Absolute U-235 thermal fission yields of CS-137 and stable Kr, Xe, Nd and Sm isotopes", Idaho Nuclear Corp., Idaho Falls, ID USA, Transactions of the American Nuclear Society, Vol 8, p. 10
- [MAH82] M. Mahdavi et al., 1982 Antwerp Conf., 58 (1982)
- [MAK59] B.P. Maksyutenko, Sov. Phys. JETP, 8, 565 (1959)
- [MAS69] C.F. Masters et al., Nuclear Science and Engineering, 36, 202 (1969)
- [MAT01] H. Matsunobu, Private communication (2001)
- [MEL58] E. Melkonian, V. Perez-Mendez, M.L. Melkonian, W.W. Havens Jr, L.J. Rainwater : "Slow neutron velocity spectrometer studies of the total and fission cross-sections of  $^{235}\text{U}$ ", Columbia University, New York, USA, Nuclear Science and Engineering, Vol 3, p. 435 (1958)
- [MER91] K. Merla et al., 1991 Juelich Conf., p. 510 (1991)
- [MOO59] M.S. Moore et al : "Slow Neutron Total and Fission Cross Sections of  $^{233}\text{U}$ ", Physical Review, vol 18, number 3, p. 714 (mai 1959)
- [MOX92] M.C. Moxon, J.A. Harvey, and N.W. Hill, Private communication ORNL (1992)

- [MUR77] G.V. Muradyan, G.I. Ustroeov, Yu.G. Shchepkin, Yu.G. Adamchuk, M.A. Voskanyan, L.Yu. Prokofeva : "Measurement of radiation-capture and fission cross-sections and their ratio alfa for uranium-235 ", Inst. At.En. I.V. Kurchatova, Moscou, URSS, conf rence : "4.All Union Conf.on Neutron Phys.", Vol 3, p. 119, Kiev, URSS (18-22 avril 1977)
- [OHA99] Ohawa et al., Nuclear Physics A653, 17 (1999)
- [OKA64235] A. Okazaki, M. Lounsbury, R.W. Durham, I.H. Crocker : "A determination of the ratio of capture-to-fission cross sections of U235", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, Canada, Atomic Energy of Canada Ltd. Reports, No 1965, Canada
- [OKA64] A. Okazaki, M. Lounsbury, R.W. Durham : "A determination of the ratio of capture to fission cross section of <sup>233</sup>U", A.E.C.L., Chalk River, Ontario, Atomic Energy of Ltd. Reports, No 2148
- [PAT63] N.J. Pattenden and J.A. Harvey, Nuclear Science and Engineering, 17, 404 (1963)
- [PER73] R.B. Perez, G. de Saussure, and E.G. Silver, Nuclear Science and Engineering 52, 46 (1973)
- [PER74] R.B. Perez et al., Nuclear Science and Engineering, 55, 203 (1974)
- [PIK97] V.M. Piksaikin, private communication (1997)
- [POE74] W.P. Poenitz, Nuclear Science and Engineering, 53, 370 (1974)
- [POE77] W.P. Poenitz, Nuclear Science and Engineering, 64, 894 (1977)
- [POE81] W.P. Poenitz et al., Nuclear Science and Engineering, 78, 333 (1981)
- [POE83] W.P. Poenitz and J.F. Whalen, ANL/NDM-80 (1983)
- [PRO78] V.S. Prokopenko, V.Ya. Gabeskiriya, A.V. Inchagov, Yu.B. Novikov, V.M. Prokopev, V.V. Tikhomirov, A.P. Chetverikov : "Measurements of the Alfa-Value For 235U, 238U, 239Pu In the Active Section of the Reactor BOR-60", Inst. Teoret. + Experiment. Fiziki, Moscou, Russie, Journal : Atomnaya Energiya, Vol 45, Issue 3, p. 230, Russie (1978)
- [REE83] P.L. Reeder and J.G. Williams, Phys. Rev., 28C, 1740 (1983)
- [REY73] Reynolds et al. : KAPL-M-7323 (1973)
- [RYA68] Yu.V. Ryabov, So-Don-Sik, N. Chikov, N. Yaneva : "Measured ratio of radiative capture and fission cross sections of U-235 and Pu-239 in the renance region" , Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna International, Atomnaya Energiya, Vol 24, p. 351, Russie
- Yu.V. Ryabov, So-Don-Sik, N. Chikov, N. Yaneva : "Measured ratio of radiative capture and fission cross sections of U-235 and Pu-239 in the renance region" , Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna International, Soviet Atomic Energy, Vol 24, p. 435, USA



Yu.V. Ryabov, So-Don-Sik, N. Chikov, N. Yaneva : "Measured ratio of radiative capture and fission cross sections of U-235 and Pu-239 in the resonance region" , Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna International, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya Reports, No 5, p. 61, Russie

- [SAF59] G.J. Safford, E. Melkonian : "Determination of the absolute fission cross section of U-235", Columbia University, New York, USA, Physical Review, Vol 113, p. 1285, USA (1959)
- [SAN57] J.E. Sanders, H.M. Skarsgard, C.J. Kenward : "The energy dependence of the fission-neutron yield per neutron absorbed in  $^{233}\text{U}$  over the range 0.025 - 2.2 eV", Atomic Energy Research Establishment (AERE, Harwell, England), Journal of Nuclear Energy, Vol 5, p. 186
- J.E. Sanders, H.M. Skarsgard, C.J. Kenward : "The energy dependence of the fission-neutron yield per neutron absorbed in  $^{233}\text{U}$  over the range 0.025 - 2.2 eV", Atomic Energy Research Establishment (AERE, Harwell, England), A.E.R.E. Harwell Reports, No. 2076
- [SCH74] R.B. Schwartz et al., Nuclear Science and Engineering, 54, 322 (1974)
- [SAU66] G. de Saussure, L.W. Weston, R. Gwin, R.W. Ingle, J.H. Todd, R.W. Hockenbury, R.R. Fullwood, A. Lottin : "Measurement of the neutron capture and fission cross sections and of their ratio, alpha, for U-233, U-235, and Pu-239", Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN USA et Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, NY USA, conférence : "Nuclear Data For Reactors Conference", Vol 2, p. 233(48), Paris, France (1966)
- [SAU67] G. de Saussure, R. Gwin, L.W. Weston, and R.W. Ingle : "Simultaneous Measurements of the Neutron Fission and Capture Cross Section for  $^{235}\text{U}$  for Incident Neutron Energy from 0.4 eV to 3 keV", ORNL/TM-1804, Martin Marietta Energy Systems, Inc., Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN (1967)
- [SCH83] M.R. Schmorak, Nucl. Data Sheets, 40, 1 (1983)
- [SCH88] R. A. Schrack : "Measurement of the  $^{235}\text{U}(n,f)$  Reaction from Thermal to 1 keV", Nuclear Data for Science and Technology, p. 101, Mito, Japan (1988)
- [SCH85] I.D. Schroder et al., Trans. Amer. Nucl. Soc., 50, 154 (1985)
- [SHI97] K. Shibata et al., JAERI-Research 97-074 (1997)
- [SIM67] O.D. Simpson et al : "Total neutron cross sections of  $^{233}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  from 0.02 to 0.08~eV", Nuclear Science and Engineering, vol 7, p. 187-192 (1960)
- [SNI66] N.L. Snidow : "Neutron Cross Section for  $^{233}\text{U}$ ", BAW-393-5 (1966)
- [SNY44] T. Snyder, R. Williams : "Number of neutrons per fission for 25 AND 49.", Los Alamos National Laboratory, Los Alamos Scientific Lab. Reports No 102 (1944)

- [SKA58] H.M. Skarsgard, C.J. Kenward : "Measurements of the energy dependence of the fission neutron yield per neutron absorbed in Pu-239 and U-235 in the range 0.006-0.36 eV", AERE, Harwell, Angleterre, Journal of Nuclear Energy, Vol 6, p. 212, Royaume-Unis  
H.M. Skarsgard, C.J. Kenward : "Measurements of the energy dependence of the fission neutron yield per neutron absorbed in Pu-239 and U-235 in the range 0.006-0.36 eV", AERE, Harwell, Angleterre, A.E.R.E. Harwell Reports, No 2267, Royaume-Unis
- [SMI64] A.B. Smith, Nuclear Science and Engineering, 18, 126 (1964)
- [SMI66] A.B. Smith and J.F. Whalen, Phys. Rev. Letters, 16, 526 (1966)
- [SMI82] A.B. Smith et al., 1982 Antwerp Conf., 39 (1982)
- [SPE84] R.R. Spencer, J.A. Harvey, N.W. Hill, and L. Weston, Nuclear Science and Engineering, 96, 318 (1987)
- [SPI56] P.E. Spivak, B.G. Erozolimskij, G.A. Dorofeev, V.N. Lavrenchik, I.E. Kutikov, Ju.P. Dobrynin : "Average Neutron Number Nu-eff Emitted By The U-233, U-235, Pu-239 Isotopes At The Neutron Capture In The Energy Range From 30 To 900 keV", Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Moscou, Atomnaya Energiya, Vol 1, Issue 3, p. 21, Russie  
P.E. Spivak, B.G. Erozolimskij, G.A. Dorofeev, V.N. Lavrenchik, I.E. Kutikov, Ju.P. Dobrynin : "Average Neutron Number Nu-eff Emitted By The U-233, U-235, Pu-239 Isotopes At The Neutron Capture In The Energy Range From 30 To 900 keV", Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Moscou, Journal of Nuclear Energy, Vol 4, p. 79, Royaume-Unis
- [SYN79] S. Synetos and J.G. Williams, INDC(NDS)-107, 183 (1979)
- [SZA76] I. Szabo and G.P. Marquette, ANL-76-90, p. 208 (1976)
- [1] Ting Shun-Liang : "Evaluation of alpha values of  $^{235}\text{U}$  in the keV neutron energy region", Inst.of Atomic Energy, Beijing China, Reports No 77112
- [UTT66] C.A. Uttley et al., 1966 Paris Conf., Vol 1, p. 165 (1966)
- [VEE78] L.R. Veaser and E.D. Arther, 1978 Harwell Conf., p. 1054 (1978)
- [VER73] V.V. Verbinski et al., Phys. Rev., C7, 1173 (1973)
- [VER80] V.P. Vertebnyy, N.L. Gnidak, A.V. Grebnev, A.L. Kirilyuk, E.A. Pavlenko, N.A. Trofimova : "Determination of total cross section and scattering cross section of  $^{235}\text{U}$  for neutron energies 2. and 24.5 keV", Inst.Yadernykh Issledovaniy Ukrainskoi A.N., Kiev Ukraine, Conférence "All Union Conf. on Neutron Phys.", Kiev, URSS, 15-19 Sep 1980, Vol. 2, p. 254
- [VOR71] P.E. Vorotnikov, V.A. Vucolov, E.A. Koltipin, Yu.D. Molchanov, G.B. Jankov : "Measurement of capture to fission cross-sections ratio for U-235", Inst. At. En. I.V. Kurchatova, Moscou, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya Reports, No 12, p. 17, Russie

- [WAG88] C. Wagemans, P. Schillebeeckx, A.J. Deruyter, and R. Barthelemy : "Subthermal fission Cross Section measurements for  $^{233}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ " Nuclear Data for Science and Technology, p. 91, Mito, Japan (1988)
- [WAR87] J.A. Wartena, H. Weigmann, and C. Burkholz, Report IAEA Tecdoc 491, p. 123 (1987)
- [WAS82] O.A. Wasson et al., Nuclear Science and Engineering, 80, 282 (1982)
- [WAS82b] O.A. Wasson et al., Nuclear Science and Engineering, 81, 196 (1982)
- [WEI90] H. Weigmann, P. Geltenbort, B. Keck, K. Shrenckenbach, and J. A. Wartena, Proc. Intern. Conf. on The Physics of Reactors, Marseille, France, Vol P1, p. 133 (1990)
- [WES64] L.W. Weston, G. de Saussure, R. Gwin : "Ratio of capture to fission in  $\text{U}^{235}$  at keV neutron energies", Institute Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN USA, Nuclear Science and Engineering, Vol 20, p. 80, USA
- [WES67] L.W. Weston et al : "Measurement of the neutron fission and capture cross sections for  $^{233}\text{U}$  in the energy region 0.4 to 1000 eV" USAEC Report Oak Ridge National Laboratory-TM-1751, Oak Ridge National Laboratory (1967)  
L.W. Weston, R. Gwin, G. de Saussure : "Measurement of Neutron Fission and Capture Cross Sections for  $^{233}\text{U}$  in the region 0.4 to 1 000 eV", Oak Ridge National Laboratory, internal report (1967)
- [WES68] L.W. Weston, R. Gwin, G. de Saussure : "Measurement of Neutron Fission and Capture Cross Sections for  $^{233}\text{U}$  in the region 0.4 to 2 000 eV", Oak Ridge National Laboratory, Nuclear Science and Engineering, Vol 34, p. 1-12 (1968)
- [WES70] L.W. Weston, R. Gwin and G. de Saussure : "Neutrons Fission and Capture Cross Sections measurements for  $^{233}\text{U}$  in the energy region 0.02 to 1 eV", Oak Ridge National Laboratory, Nuclear Science and Engineering, Vol 42, p. 143-149 (1970)
- [WES] Weston et al., Nuclear Science and Engineering, 34, 1 (1968)  
Weston et al. : Nucl. Sci. Eng., 42, 143 (1970)
- [WES84] L.W. Weston and J.H. Todd, Nuclear Science and Engineering, 88, 567(1984)
- [WES92] L.W. Weston and J.H. Todd, Nuclear Science and Engineering 111, 415 (1992)
- [WIL46] D. Williams, P. Yuster : "Capture cross section of  $\text{U-}^{235}$  for pile neutrons", Los Alamos National Laboratory, NM USA, Los Alamos Scientific Lab. Reports, No 512 (1946)
- [YAM90] N. Yamamuro, JAERI-M 90-006 (1990).
- [YEN75] C.S. Yen : "Measurements of the ratio of the cross sections of  $^{235}\text{U}$  for capture and fission in the neutron energy range 200 eV to 20 keV", Kernforschungszentrum, Karlsruhe Allemagne, Kernforschungszentrum Karlsruhe Reports No 2191, Allemagne

C.S. Yen : "Measurements of the ratio of the cross sections of  $^{235}\text{U}$  for capture and fission in the neutron energy range 200 eV to 20 keV", Kernforschungszentrum, Karlsruhe Allemagne, Nuclear Science and Engineering, Vol 61, Issue 4, p. 471, USA

[YOU77] P.G. Young et al., LA-6947 (1977)

[ZIN46] W.H. Zinn, H. Kanner : "Eta for  $^{233}\text{U}$ ", Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, USA, Chicago University Metallurgical Labs Reports, No 3651



**“Dans une série de relevés, celui qui semble correct et au delà de tout soupçon, est celui où l’instrumentation était en panne.”**

5ième loi de Murphy