



N° d'ordre : 2967

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par CEDRIC GROSJEAN

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : NOYAUX, ATOMES, AGGRÉGATS, PLASMAS

**MESURE DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION INDUITE PAR NEUTRONS RAPIDES
DES NOYAUX ^{232}Th / ^{233}U DANS LE CADRE DES CYCLES DE COMBUSTIBLE
INNOVANTS**

Soutenue le : 4 Mars 2005

Après avis de :

MM. E. Liatard, professeur, Université Joseph Fourier de Grenoble
G. Rudolf, directeur de recherche CNRS, IRES de Strasbourg

Rapporteurs

Devant la commission d'examen formée de :

MM. J. Labarsouque, professeur, Université de Bordeaux 1
M. Aïche, maître de conférence, Université de Bordeaux 1
G. Barreau, Directeur de recherche CNRS, CENBG
T. Ethvignot, physicien chercheur, CEA/DAM île de France
E. Liatard, professeur, Université Joseph Fourier de Grenoble
G. Rudolf, directeur de recherche CNRS, IRES de Strasbourg

Président

Rapporteur

Examineurs



A Céline et Louka

Remerciements

Je tiens, tout d'abord, à remercier Mr Pierre Aguer, l'ancien directeur du Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan et Mr Bernard Haas, son successeur, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire et m'avoir permis d'effectuer ce travail dans de bonnes conditions.

A travers Mrs M. Delpéch et C. Lebrun, je remercie également le groupement de recherche GEDEPEON pour son aide financière apportée à ce travail.

Je suis très reconnaissant à Mr J. Labarsouque pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse, et aux deux rapporteurs, Mr E. Liatard et Mr G. Rudolf, pour l'ensemble de leurs remarques et corrections apportées à ce manuscrit.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à mon directeur de thèse, Mr Gérard Barreau, pour son soutien professionnel et son implication dans ce travail. Je le remercie sincèrement des connaissances scientifiques (théoriques et expérimentales) qu'il m'a transmises au cours de ces années. J'ai, par ailleurs beaucoup apprécié ses qualités humaines.

Je suis reconnaissant, par ailleurs, à Mr Mourad Aïche, d'avoir co-dirigé mon travail de thèse et d'avoir soutenu ma candidature pour un poste d'ATER à l'université de Bordeaux 1. Cette expérience, riche d'enseignements, me sera utile dans mon avenir professionnel. Je le remercie également de la confiance qu'il m'a accordée tout au long de ce travail.

Je remercie chaleureusement le groupe de physique théorique du CEA de Bruyères Le Châtel, en particulier Mr E. Baugé, pour sa contribution concernant les calculs en modèle optique nécessaires à l'aboutissement de ce travail. Je suis doublement reconnaissant à T. Ethvignot, responsable du groupe DPTA/SPN, d'avoir accepté d'être membre du jury de cette thèse et de nous avoir accueilli pour une campagne de mesures auprès de l'accélérateur électrostatique Van de Graaff du CEA/DAM d'île de France. Mes remerciements sont adressés également à tout le personnel de l'accélérateur pour leur disponibilité et leurs compétences. Je tiens à remercier Mr X. Ledoux qui nous a accompagné et aidé durant ces deux semaines de prises de données et également pour sa contribution concernant la caractérisation des films plastiques utilisés dans ce travail.

J'associe à ces remerciements l'ensemble du personnel du CENBG. Merci au personnel de l'atelier mécanique et du bureau d'études, en particulier à Mrs Gérard Brut et , qui ont contribué à la conception et à la réalisation de la partie expérimentale de ce travail. Merci aux services informatique et administratif pour leur convivialité.

Je désire remercier le personnel de l'entreprise ARCANE (Hervé Guégan et Quy Le Minh) pour leur contribution concernant la caractérisation de nos cibles et films utilisés dans ce travail (Mesures RBS et ERDA). J'ai été touché par leur gentillesse et leur serviabilité.

Je remercie également le groupe ICMCB de l'université de Bordeaux 1, en particulier F. Dartigue, d'avoir effectué les mesures d'épaisseur de nos films plastiques qui ont été précieuses dans ce travail.

Enfin, je suis reconnaissant au groupe ACEN du CENBG dans lequel j'ai effectué cette thèse et aux collaborations LPSC-Grenoble et CEA- Saclay . En particulier je remercie Serge Czajkowski et Béatrice Jurado pour leur sympathie, leur soutien et leurs différents conseils.

Mes sincères remerciements à Michaël Petit pour nos relations professionnelles et amicales tout au long de cette thèse et de nos nombreuses discussions.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à tous mes amis, ma famille et ma belle- famille. Je pense, en particulier, à ma mère qui a toujours été présente et qui m'a soutenu tout au long de mes études. Merci pour sa confiance et un grand bravo à ce petit bout de femme qui a surmonté maintes épreuves dans sa vie. Encore merci et je leur souhaite que du bonheur.

Je finirai par toi, Céline, qui a toujours cru en moi et a été d'un grand soutien moral tout au long de ces années. Merci du fond du cœur et je souhaite que du bonheur à nous et à notre fils, Louka.

Table des matières

INTRODUCTION.....	5
Chapitre 1 Filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$: cycle du combustible du futur ?	7
1.1 Introduction.....	7
1.2 Avantages et inconvénients	11
1.3 Bilan actuel sur les données nucléaires.....	14
1.4 Besoin de nouvelles mesures : projets expérimentaux mis en jeu	17
1.5 Mesures de sections efficaces neutroniques de capture et de fission au C.E.N Bordeaux- Gradignan.....	19
Chapitre 2 TECHNIQUES ET DISPOSITIF EXPERIMENTAUX	21
2.1 Mesure d'une section efficace de fission.....	21
2.2 La diffusion élastique (n, p).....	23
2.3 Principe de notre méthode expérimentale.....	26
2.4 Production des neutrons.....	28
2.5 Dispositif expérimental	30
2.6 Cibles d'actinides utilisées.....	34
2.6.1 Présentation	34
2.6.2 Caractérisation de leur épaisseur par radioactivité α	34
2.7 Détection des fragments de fission.....	38
2.8 Détection des neutrons	39
2.8.1 Principe de détection des protons de recul	39
2.8.2 Choix des films hydrogénés.....	45
2.8.3 Caractérisation des épaisseurs des films utilisés	48
2.8.4 Description du détecteur de protons de recul.....	51
2.9 Electronique et acquisition	55
2.10 Etalonnage en énergie des jonctions silicium.....	57

Chapitre 3 Présentation et analyse des données	59
3.1 Introduction.....	59
3.2 Détection des fragments de fission.....	59
3.2.1 Spectres en amplitude des fragments de fission détectés.....	59
3.2.2 Efficacité de détection ε_f	61
3.3 Détection des protons de recul.....	68
3.3.1 Principe des mesures.....	68
3.3.2 Spectres des protons de recul détectés par une jonction silicium.....	69
3.3.3 Spectres des protons de recul détectés par un télescope ΔE - E	71
3.3.4 Réponse du détecteur de neutrons.....	75
3.4 Détermination du flux de neutrons expérimental.....	77
3.4.1 Description du programme de simulation Monte Carlo.....	77
3.4.2 Optimisation de la géométrie du détecteur à protons de recul.....	80
3.4.3 Présentation des spectres de protons de recul détectés.....	84
3.4.4 Détermination du flux de neutrons arrivant sur les cibles étudiées.....	88
3.4.5 Validation expérimentale de notre méthode.....	90
Chapitre 4 Présentation et analyse des sections efficaces de fission mesurées	93
4.1 Méthode d'analyse et application à la réaction $^{238}\text{U}(n, f)$	93
4.2 Détermination de la section efficace de fission du ^{232}Th induite par neutrons rapides.....	98
4.3 Détermination de la section efficace de fission de l' ^{233}U induite par neutrons rapides.....	100
4.3.1 Présentation des mesures.....	100
4.3.2 Rôle de la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}$ pour $E_n \geq 6$ MeV.....	102
4.3.3 Correction des mesures associées à la réaction $^{233}\text{U}(n, f)$ pour $E_n \geq 6$ MeV.....	104
4.4 Présentation générale des sections efficaces de fission mesurées et de leurs erreurs.....	108

Chapitre 5 Interprétation des résultats pour ^{233}U	113
5.1 Introduction.....	113
5.2 Cadre de notre analyse	114
5.3 Description du modèle utilisé.....	116
5.3.1 Section Efficace de formation du noyau composé	117
5.3.2 Désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron.....	119
5.3.3 Désexcitation du noyau composé par émission γ	120
5.3.4 Désexcitation du noyau composé par fission.....	121
5.3.5 Calcul des voies de désexcitation (n,nf) et (n, 2n).....	123
5.3.6 Les densités de niveaux	126
5.3.7 Définition des effets de couches utilisés dans ce travail	128
5.3.8 Structure des densités de niveaux en fonction de la déformation du noyau	131
5.4 Présentation des résultats de notre analyse.....	133
CONCLUSION	139
ANNEXES	141
Annexe A : Paramètres physiques de quelques isotopes	143
Annexe B : Validation de la simulation d'angle solide Ω par méthode Monte Carlo dans le cas d'une source isotrope	145
Bibliographie	149
Table des figures	155
Liste des tableaux	161

INTRODUCTION

Depuis une dizaine d'années, l'avenir de la production d'énergie fait l'objet d'un débat de société. Cette production étant actuellement dominée par les combustibles fossiles à 79 %, plusieurs scénarii prédisent que leurs réserves seraient insuffisantes pour subvenir aux besoins énergétiques mondiaux dont la consommation devrait doubler d'ici 2050. Cette croissance entraînerait une augmentation des émissions de gaz à effet de serre qui serait néfaste pour l'environnement. De ce fait certains pays comme la France se sont engagés pour réduire ces émissions [Ky97]. Dans la démarche d'un développement économique, d'un équilibre social et d'un respect de l'environnement (développement durable), les politiques énergétiques s'orientent vers des solutions comme les énergies renouvelables ou l'énergie nucléaire.

Le nucléaire est donc appelé à jouer un rôle de plus en plus important dans la production future d'électricité, mais également dans la production de chaleur, et d'hydrogène. Cependant, son parc doit être renouvelé et repensé. L'énergie nucléaire contribuant aujourd'hui à 17 % de la production d'électricité dans le monde, la satisfaction des besoins estimée à l'horizon 2050 nécessiterait d'accroître d'un facteur 4 à 6 le parc nucléaire mondial actuel. Cet accroissement implique alors un effort important dans la gestion et le stockage des déchets radioactifs qu'elle génère, mais également dans la sûreté des installations.

En France, 76 % de l'électricité est d'origine nucléaire. Son parc de 58 réacteurs à eau pressurisée (REP) produit actuellement chaque année 110 tonnes de combustible irradié. Ce combustible, basé sur le cycle U/Pu, contient les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue (HAVL). Ces déchets posent, aujourd'hui, de sérieux problèmes de sécurité et de nocivité pour l'environnement. Suite à la loi Bataille en 1991, un vaste programme de recherche a été lancé pour trouver de nouvelles options concernant la gestion de ces déchets. Son compte rendu est prévu pour 2006. Une orientation possible est l'étude d'une nouvelle filière du combustible : le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. En effet, ses propriétés moins polluantes sont connues depuis de nombreuses années.

Cependant, le développement de nouveaux types de réacteurs à base de thorium (réacteurs à sels fondus, réacteurs hybrides) se heurte à un manque de données nucléaires fiables. En particulier, les données concernant les sections efficaces neutroniques des nucléides composant ce cycle présentent de grandes disparités et sont parfois incomplètes ou imprécises. Or, ces données sont souvent extraites de mesures anciennes (1950-60). Expérimentateurs et évaluateurs ont décidé de joindre leurs efforts dans le but de réactualiser ces données ou d'en apporter de nouvelles formant ainsi un ensemble plus cohérent.

Le groupe Aval du cycle électronucléaire du C.E.N. Bordeaux Gradignan s'intéresse depuis quelques années à mesurer les sections efficaces neutroniques de capture et de fission des différents radionucléides qui composent le cycle du thorium.

Ce travail s'inscrit dans ce cadre de mesures et consiste plus particulièrement à déterminer les sections efficaces de fission induites par neutrons rapides d'énergie comprise entre 1 et 7 MeV des deux noyaux clés du cycle : ^{232}Th et ^{233}U . Ces mesures impliquent l'utilisation de cibles isotopiquement pures sur lesquelles est envoyé un faisceau de neutrons mono-énergétique. Pour déterminer la section efficace de fission de ces actinides, il est nécessaire de connaître le nombre d'atomes contenus dans chaque cible, de compter le taux de fragments émis et le nombre de neutrons arrivant sur celles-ci. Le neutron n'étant pas une particule chargée, sa détection fait souvent appel à l'utilisation de réactions secondaires dites de référence. Dans ces mesures, la réaction la plus employée est la fission de ^{235}U . En effet, ayant été largement étudiée dans le passé, elle est maintenant bien connue. Néanmoins dans le domaine des neutrons rapides (>100 keV), l'incertitude associée aux meilleures mesures est encore de l'ordre de 5 %. Compte tenu des demandes actuelles concernant les sections efficaces de fission de ^{233}U et du ^{232}Th , cette précision est insuffisante. Nous avons donc choisi une autre réaction connue avec une meilleure précision (< 1 %) sur une large gamme en énergie de neutron (de 1 meV à 50 MeV) : la diffusion élastique (n, p).

Ce mémoire est composé de cinq chapitres.

Le chapitre 1 présente la filière thorium et les raisons de son utilisation comme cycle du combustible pour les systèmes innovants. Nous dresserons un bilan des données nucléaires de ce cycle et nous présenterons les différents projets expérimentaux mis en jeu afin de satisfaire les besoins actuels et futurs.

Le dispositif expérimental utilisé dans ce travail ainsi que les techniques employées pour mesurer une section efficace de fission induite par neutrons rapides seront discutés dans le chapitre 2.

Le chapitre 3 est, quant à lui, consacré au traitement des données mesurées. Nous détaillerons de quelle manière notre dispositif de mesure a été optimisé. En particulier, les réponses des détecteurs de fragments de fission et de neutrons seront étudiées. Une méthode par activation sera également présentée et comparée à notre méthode expérimentale de détermination du flux de neutrons.

La présentation des résultats concernant les isotopes d'uranium 233 , ^{238}U et le noyau fertile ^{232}Th est traitée dans le chapitre 4. Nous discuterons également des incertitudes associées à ces résultats et des corrections que nous avons appliquées notamment pour ^{233}U .

Enfin, dans le chapitre 5, est exposée une analyse microscopique de la fission du noyau ^{233}U . Basée sur un modèle statistique, la section efficace de fission mesurée a permis de fixer les paramètres de celui-ci. A partir de ces données, il a été possible d'en extraire les sections efficaces de capture, de diffusion inélastique, et de la réaction (n, 2n) de ^{233}U .

Chapitre 1 Filière $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$: cycle du combustible du futur ?

1.1 Introduction

La source de production d'énergie nucléaire provient du combustible placé au cœur du réacteur. Il contient des noyaux lourds, dits fissiles, qui, après capture d'un neutron thermique, se scindent en deux noyaux plus légers (fragments de fission) en dégageant une grande quantité d'énergie. Ces fragments ont la faculté de libérer des neutrons rapides (2 à 3 par fission) qui vont provoquer de nouvelles fissions dans le combustible et ainsi permettre de créer la réaction en chaîne productrice d'énergie. Cette réaction est maîtrisée par l'introduction de barres de contrôle absorbantes de neutrons (barres composées de bore ou de cadmium par exemple) afin de maintenir un rythme de fissions constant. Les principaux atomes fissiles sont l' ^{233}U , l' ^{235}U , le ^{239}Pu et le ^{241}Pu . Seul l' ^{235}U se trouve dans la nature. C'est la source principale de production d'énergie des réacteurs actuels.

Le combustible contient également des noyaux lourds, dits fertiles, qui après capture d'un neutron et deux désintégrations β^- successives aboutissent à des noyaux fissiles. Les deux noyaux fertiles les plus abondant sur terre sont l' ^{238}U et le ^{232}Th . Après capture d'un neutron, ils conduisent respectivement aux noyaux fissiles ^{239}Pu et ^{233}U . Ils forment donc deux cycles de combustible différents : $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ et $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. Le premier réacteur fut construit aux États-Unis au début des années 40. Pour plusieurs raisons (^{235}U est le seul élément naturel fissile, fabrication d'armes nucléaires à base de plutonium), l'utilisation d'un combustible à base d'uranium a été préféré à la filière thorium. Une grande industrie s'est développée autour de cette filière et a logiquement conduit à la construction de centrales nucléaires en France fonctionnant avec des réacteurs à base d'uranium (REP).

Au fil du temps, le combustible se dégrade et produit des déchets radioactifs. Ces déchets sont classés en plusieurs catégories suivant leur degré de radiotoxicité. Pour le combustible à l'oxyde d'uranium (UOX) d'un REP d'E.D.F., 96% de la masse du combustible irradié correspond aux actinides qualifiés de majeur (95 % d'uranium et 1 % de plutonium). Ces actinides peuvent être recyclés pour produire de l'énergie. En effet, depuis quelques années, le procédé Purex, mis en oeuvre à l'usine Cogema de la Hague, permet de séparer l'uranium et le plutonium du combustible usé. Le plutonium est ensuite recyclé sous forme de combustible MOX utilisé dans un tiers des réacteurs du parc nucléaire français. Néanmoins, ce procédé est insuffisant pour stabiliser la production de plutonium qui contribue à elle seule à 90% de la radioactivité dans un réacteur. Des estimations parlent même de 670 tonnes de plutonium qui seraient produits en 2070 pour des conditions d'utilisation similaires du parc actuel [Be02]. Les 4 % restants contiennent les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue (HAVL). Ces déchets sont considérés comme les déchets ultimes du cycle du combustible car ils n'ont aucune utilité énergétique. Le tableau (1.1) présente un inventaire des éléments composants ces déchets pour un combustible UOX usé à 33 GW-j/t.

nature	élément	isotope	période (ans)	masse (g/t)	teneur isotopique	DPUI (Sv/Bq)
actinides mineurs < 1kg/t	Np	237	2 140 000	430	100 %	$1,1 \cdot 10^{-7}$
	Am	241	432	220	67 %	$2,0 \cdot 10^{-7}$
		243	7 380	100	31 %	$2,0 \cdot 10^{-7}$
	Cm	243	28,5	0,3	1 %	$2,0 \cdot 10^{-7}$
		244	18,1	24	94 %	$1,6 \cdot 10^{-7}$
		245	8 530	1	5 %	$3,0 \cdot 10^{-7}$
produits de fission > 2 kg/t	Se	79	65 000	4,7	9 %	$2,3 \cdot 10^{-9}$
	Zr	93	1 500 000	710	20 %	$1,1 \cdot 10^{-9}$
	Tc	99	210 000	810	100 %	$6,4 \cdot 10^{-10}$
	Pd	107	6 500 000	200	16 %	$3,7 \cdot 10^{-9}$
	Sn	126	100 000	20	40 %	$5,1 \cdot 10^{-9}$
	I	129	15 700 000	170	81 %	$7,4 \cdot 10^{-8}$
	Cs	135	2 300 000	360	10 %	$1,4 \cdot 10^{-8}$

Tableau 1.1 : Inventaire des principaux éléments à vie longue présents dans un combustible usé à l'oxyde d'uranium (UOX) déchargé à 33 GW.j/t.

Ce tableau montre que pour une tonne d'un combustible usé de type UOX, ces déchets HAVL regroupent 75 % de produits de fission (^{129}I , ^{135}Cs , ^{99}Tc , ^{93}Zr) et 25 % d'actinides mineurs (^{237}Np , $^{241/243}\text{Am}$, $^{243-245}\text{Cm}$) formés à partir de captures neutroniques successives sur les isotopes de plutonium et d'uranium. La dernière colonne du tableau nous renseigne sur la dose efficace par unité d'ingestion (DPUI) de chaque élément pour un individu adulte. Ce facteur mesure la radiotoxicité de ces éléments sur les tissus humains après ingestion. A radioactivité égale, les effets sont plus importants avec les actinides mineurs qu'avec les produits de fission. Si l'on regarde maintenant l'évolution de cet inventaire radiotoxique au cours du temps, la figure (1.1) montre que la radioactivité du combustible usé est dominée par les produits de fission dans la première décennie, puis ce sont les actinides mineurs et le plutonium qui prennent le relais pendant 10000 ans. Au-delà, seul le plutonium contribue à cette radioactivité. C'est seulement au bout de 100000 ans que le combustible atteint sa radioactivité initiale, c'est-à-dire celle du minerai d'uranium. Ces déchets posent donc de sérieux problèmes de nuisance et de sécurité pour l'environnement. A cause de leur durée de vie longue, les actinides mineurs et le plutonium sont en grande partie responsable de la nuisance à long terme de ces déchets.

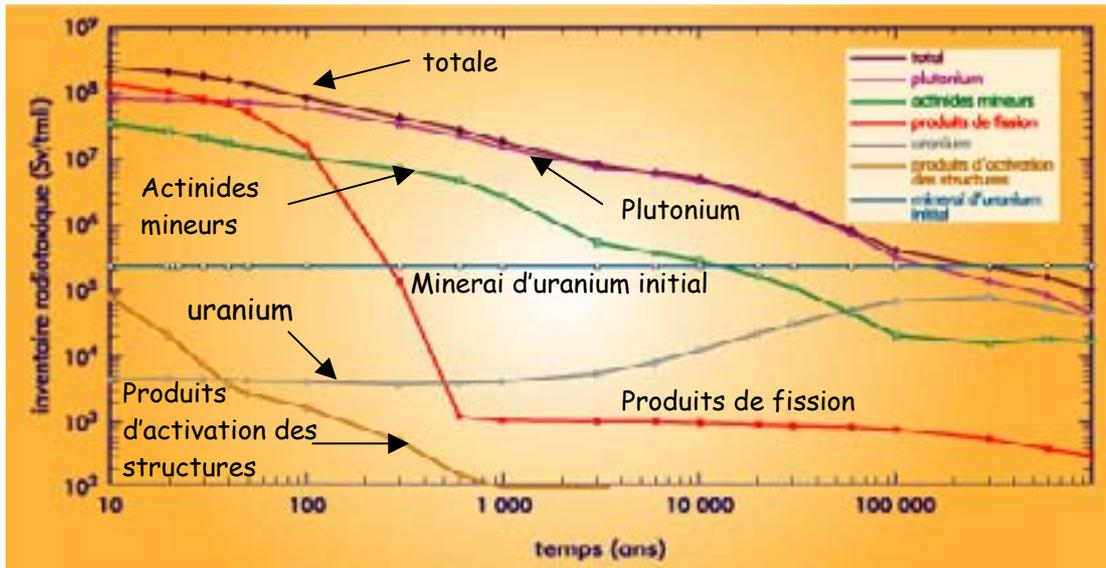


Figure 1.1 : Radiotoxicité au cours du temps exprimée en sievert par tonne de métal lourd initial (Sv/tmli) des éléments composant un combustible usé d'oxyde d'uranium enrichi à 3,5 % en uranium 235, déchargé à un taux de combustion de 45 GW-j/t et refroidi cinq ans (figure extraite de Clefs CEA n°46)

La présence de certains produits de fission à vie très courte tels que le strontium 90 et le césium 137 rendent également ces déchets hautement radioactifs et thermogènes pendant les premières décennies de leur existence. Ceci pose donc de sérieux problèmes de sécurité concernant leur stockage.

Compte tenu de la demande énergétique mondiale croissante, le nucléaire pourrait être une composante essentielle des sources d'énergie du futur à condition de diminuer la production des déchets radioactifs ultimes du cycle électronucléaire, d'améliorer la sécurité des entreposages, d'économiser les ressources en uranium et de consommer le plutonium tout en maîtrisant les risques de prolifération (détournement du plutonium à des fins militaires). Depuis une dizaine d'année, la loi Bataille [Ba91] a permis de tracer les contours d'un programme de recherche sur l'aval du cycle électronucléaire (PACE) s'étalant sur une quinzaine d'années. Ce programme est mené par des scientifiques du C.E.A. et de l'A.N.D.R.A. en collaboration avec le C.N.R.S. et des partenaires industriels (E.D.F., Cogema et Framatome). Il est organisé autour de cinq groupements de recherches dont les trois axes principaux sont :

- la recherche des solutions permettant la séparation et la transformation des éléments radioactifs à vie longue (HAVL) en éléments à vie plus courte, voir en éléments stables (transmutation). Elle a été confiée aux groupements GEDEPEON (GEstion des Déchets Et Production d'Énergie par Options Nouvelles) et PRACTIS.
- l'étude des possibilités de stockage dans les couches géologiques profondes (réalisation de laboratoires souterrains). Elle a été confiée au groupement FORPRO.
- l'étude des procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface des déchets radioactifs à vie longue et à haute activité. Elle a été confiée au groupement NOMADE.

Dans cette optique, le groupement de recherche GEDEPEON étudie, en particulier, de nouveaux types de réacteurs et la filière du thorium comme cycle du combustible du futur. Afin de transmuter les actinides mineurs ou d'incinérer les produits de fission à vie longue, un système hybride, réacteur sous critique piloté par accélérateur serait bien adapté. Un exemple est représenté sur la figure (1.2).

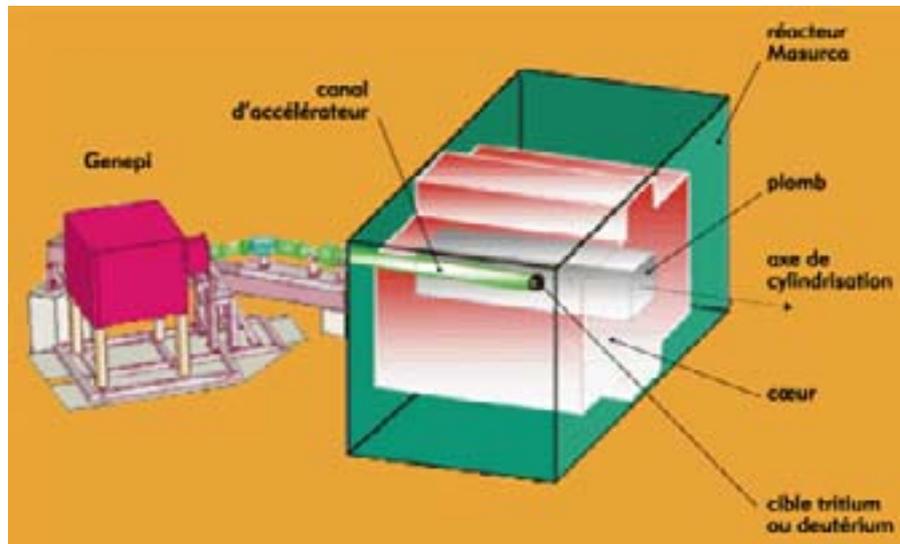


Figure 1.2 : Exemple de système hybride constitué de l'accélérateur Genepi (source intense de neutrons pulsés) couplé au réacteur expérimental Masurca. (Figure extraite de clefs CEA n°46).

Ce système, composé du réacteur expérimental Masurca de la DEN/CEA à Cadarache et du générateur de neutrons Genepi conçu par le laboratoire de physique subatomique et de cosmologie de Grenoble (LPSC), a été testé expérimentalement en mai 2003 dans le cadre du programme européen MUSE. Ce test a permis, pour la première fois au monde, de montrer qu'il était possible de contrôler la puissance d'un réacteur sous critique par une source externe de neutrons [Nu02].

Par ailleurs, ce groupe de recherche étudie également dans le cadre des réacteurs du futur (génération IV), des réacteurs à sels fondus. Le sel à base de thorium servirait à la fois comme combustible et comme caloporteur. Ces réacteurs à neutrons thermiques devront être au moins régénérateurs (la matière fissile consommée est régénérée) voire surgénérateurs (production de matière fissile). Cette étude s'inspire largement des travaux passés effectués notamment à l'Oak Ridge National Laboratory (ORNL) aux Etats-Unis à partir des années 50 [Br57].

Le choix du combustible pour ces deux types de réacteur (hybride et sels fondus) s'oriente plutôt vers la filière du thorium dont le potentiel est connu depuis les années 50. Nous allons voir maintenant les raisons de cette orientation.

Comme le montre la figure (1.4), le principe de fonctionnement du cycle du thorium est similaire à celui de la filière uranium ($^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$). Partant du noyau fertile ^{232}Th , la capture d'un neutron de ce noyau conduit au ^{233}Th . Le ^{233}Th , de durée de vie relativement courte (22,3 minutes), décroît par désintégration β^- vers le noyau pivot du cycle, le protactinium 233. Au bout de 27 jours, la moitié de la population de ce noyau a décru par β^- pour donner le noyau fissile du cycle ^{233}U producteur d'énergie.

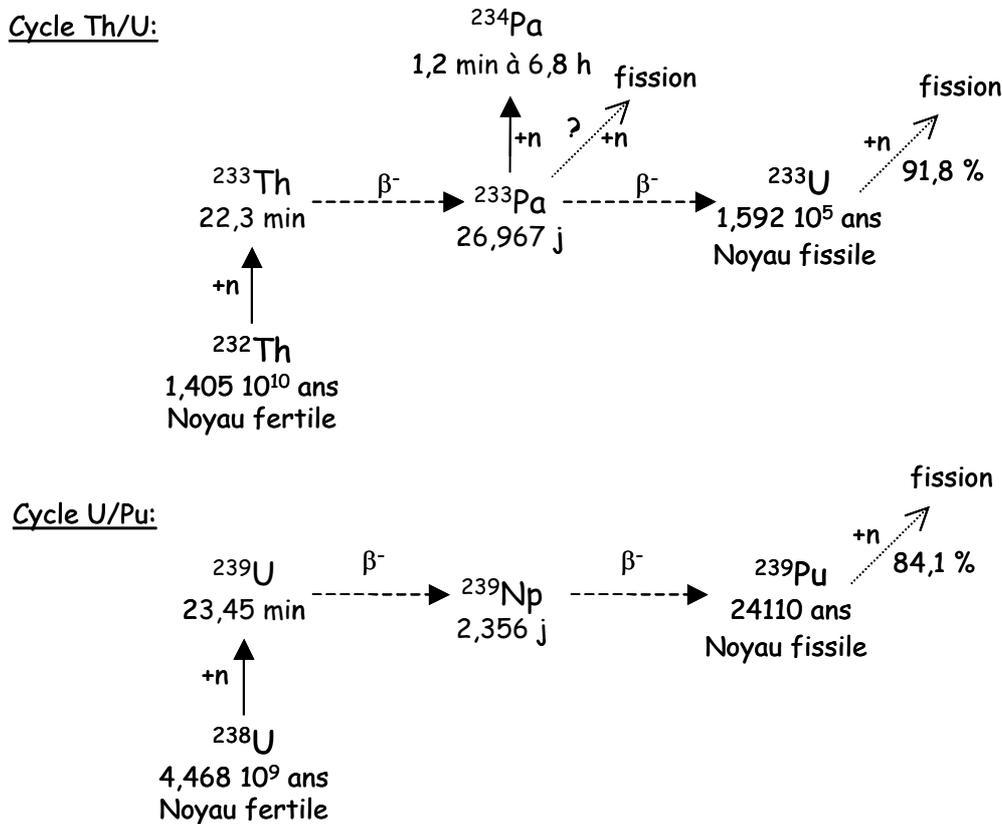


Figure 1.4 : Schémas simplifiés des cycles Th/U et U/Pu.

Par rapport au cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$, la filière du thorium présente de nombreux avantages :

- L'abondance des réserves naturelles de thorium. Ce noyau étant relativement stable (1,4 10^{10} ans), sa quantité, aujourd'hui, est estimée à trois fois celle de l'uranium.
- Son plus grand rendement énergétique. La probabilité de fission de l' ^{233}U est de l'ordre de 92 % alors que celle du ^{239}Pu n'est que de 84 %.
- Une filière plus saine pour l'environnement. En effet son utilisation permet de réduire d'un facteur 100 la production d'actinides mineurs et de plutonium. Cette baisse s'explique simplement par le fait que le cycle débute par un noyau plus léger (six unités de masse et deux unités atomiques plus faibles que l' ^{238}U).

- Pour atteindre les radionucléides à vie longue ($Z > 94$), il faut d'avantages de captures neutroniques sur les éléments du cycle. Cette filière est également beaucoup moins nocive pour les tissus humains. En effet, un moyen de mesurer cette nocivité est de regarder le facteur de dose efficace par unité d'ingestion (DPUI) des noyaux composant ces filières. Ce facteur dépend de la constante radioactive du noyau considéré, du type de radioactivité et de l'énergie des particules émises. Un tableau en annexe A rassemble ces paramètres physiques pour plusieurs isotopes. La dernière colonne correspond au coefficient de dose (DPUI) extrait du CIPR 68 de ces isotopes. Ce tableau montre que les isotopes d'uranium possèdent un facteur DPUI cinq fois plus faible que les isotopes de plutonium. Ceci s'explique par le fait que la probabilité de fission spontanée (colonne 4) est largement plus faible pour les isotopes d'uranium que ceux du plutonium. La production de neutrons issus de ces fissions spontanées peut être négligée dans le cas des isotopes de l'uranium alors qu'elle ne peut l'être pour ceux du plutonium. Sachant que, pour la même quantité d'énergie déposée dans un tissu humain, un neutron d'énergie de 1 MeV correspond à une radiotoxicité vingt fois supérieure à celle d'un photon γ d'énergie quelconque, l'activité neutronique des isotopes du plutonium engendre une radiotoxicité plus importante dans le cas de la filière uranium. Cette filière régénératrice permettrait également de brûler tout le combustible alors que dans le cas de la filière uranium, l' ^{238}U constitue 95 % du combustible utilisé.
- La surgénération est possible pour les deux types de spectres énergétiques de neutrons (thermique et rapide) alors que pour le cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$, elle n'est possible que pour des neutrons rapides [Nu02]. Cela permet de produire plus de matière fissile qu'on en consomme. Cette matière pourrait servir de combustible pour le déploiement d'autres réacteurs. La surgénération est un atout majeur pour l'utilisation de cette filière dans les réacteurs du futur (génération IV).

Néanmoins l'utilisation de cette filière comporte plusieurs inconvénients gênants mais surmontables. Laissée longtemps à l'écart au profit de la filière uranium, elle a besoin encore aujourd'hui d'un développement industriel important. Présentons maintenant, les inconvénients majeurs de ce cycle avec leurs solutions envisagées quand elles existent :

- L'absence de matière fissile au démarrage d'un réacteur utilisant cette filière (^{233}U n'existe pas à l'état naturel) se traduit par une augmentation du temps de doublement de cette filière. Une solution envisagée serait d'utiliser un mélange de thorium et de plutonium dont les stocks ne cessent de croître.
- La période de désintégration du noyau ^{233}Pa ($T_{1/2}=27$ jours) engendre une perte de réactivité en fonctionnement et une augmentation de l'activité lors du refroidissement du réacteur après son arrêt. Cette augmentation est due à la fission de ce noyau après capture d'un neutron. Une des solutions impose sa séparation en ligne du reste du combustible avant d'être réinjecté sous forme d' ^{233}U . Cette séparation implique un travail important de R&D en chimie des actinides.

- La manipulation du thorium lors de son extraction du minerai ou dans le combustible usé impose des mesures de radioprotection importantes. En effet, suite à sa désintégration α , la filiation radioactive du ^{232}Th engendre l'émission d'un γ dur de 2,615 MeV ($A_\gamma=4,1 \cdot 10^6$ Bq/kg) en fin de chaîne. Néanmoins, cet inconvénient peut s'avérer un avantage pour éviter les risques de détournement d'uranium 233 à des fins militaires. La détection de ce γ signifiera la présence de ^{232}Th et/ou de ^{233}U .
- Le manque de données nucléaires fiables, voire absentes, concernant notamment les sections efficaces de réaction des différents noyaux composant le cycle. La solution est de réactualiser ces données la plupart du temps anciennes (mesures datant des années 60, 70) en remesurant ces sections efficaces avec une meilleure précision et en développant des modèles théoriques plus complets permettant des meilleures évaluations de celles-ci.

1.3 Bilan actuel sur les données nucléaires

Le développement futur de réacteurs innovants fonctionnant au thorium impose d'améliorer les données nucléaires existantes ou d'en établir de nouvelles. En particulier, ceci implique de réduire les marges d'incertitudes concernant les sections efficaces neutroniques des différents éléments composant un réacteur. De nouvelles mesures sont donc nécessaires. Cependant, elles ne sont pas suffisantes pour couvrir l'ensemble des besoins (isotopes, réactions, domaine d'énergie). Elles doivent être complétées par des calculs théoriques issus de modèles nucléaires réalistes permettant d'interpoler ou d'extrapoler ces mesures. La cohérence entre les informations délivrées par les modèles et les mesures implique un travail d'évaluation de ces données.

L'évaluation des données nucléaires a conduit à la naissance de banques de données pour l'ensemble des réactions d'un grand nombre d'isotopes dans un domaine d'énergie allant de la fraction de l'électronvolt à 20 MeV. Elles regroupent cinq grandes bibliothèques internationales :

- la base de données européenne JEF (Joint Evaluated File).
- la base de données américaine ENDF (Evaluated Nuclear Data File).
- la base de données japonaise JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library).
- la base de données russe BROND (Biblioteka Rekomendovannykh Osenjonnykh Nejtronnykh Dannykh).
- la base de données chinoise CENDL (Chinese Evaluated Nuclear Data library).

Chaque bibliothèque représente une compilation importante de données expérimentales dont les incertitudes sont évaluées à l'aide de calculs statistiques complexes qui tiennent compte des incertitudes de mesures.

Les figures suivantes montrent les sections efficaces neutroniques de capture ou de fission des noyaux principaux composant le cycle du thorium (figure 1.5) et le cycle de l'uranium (figure 1.6) pour les différentes bases de données présentées ci dessus.

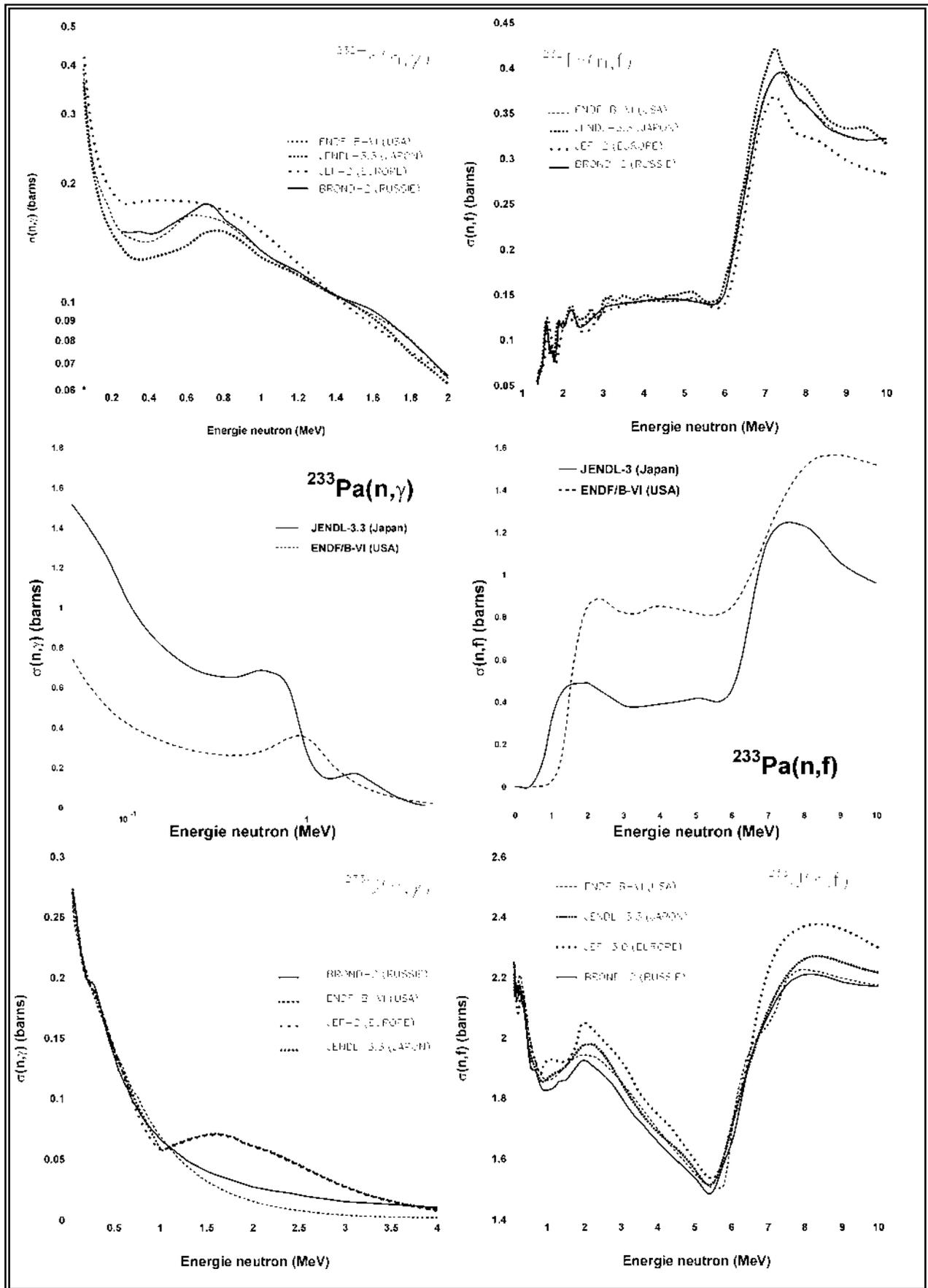


Figure 1.5 : Sections efficaces neutroniques de capture et de fission des noyaux ^{232}Th , ^{233}Pa , et ^{233}U issues des différentes bibliothèques internationales en fonction de l'énergie des neutrons.

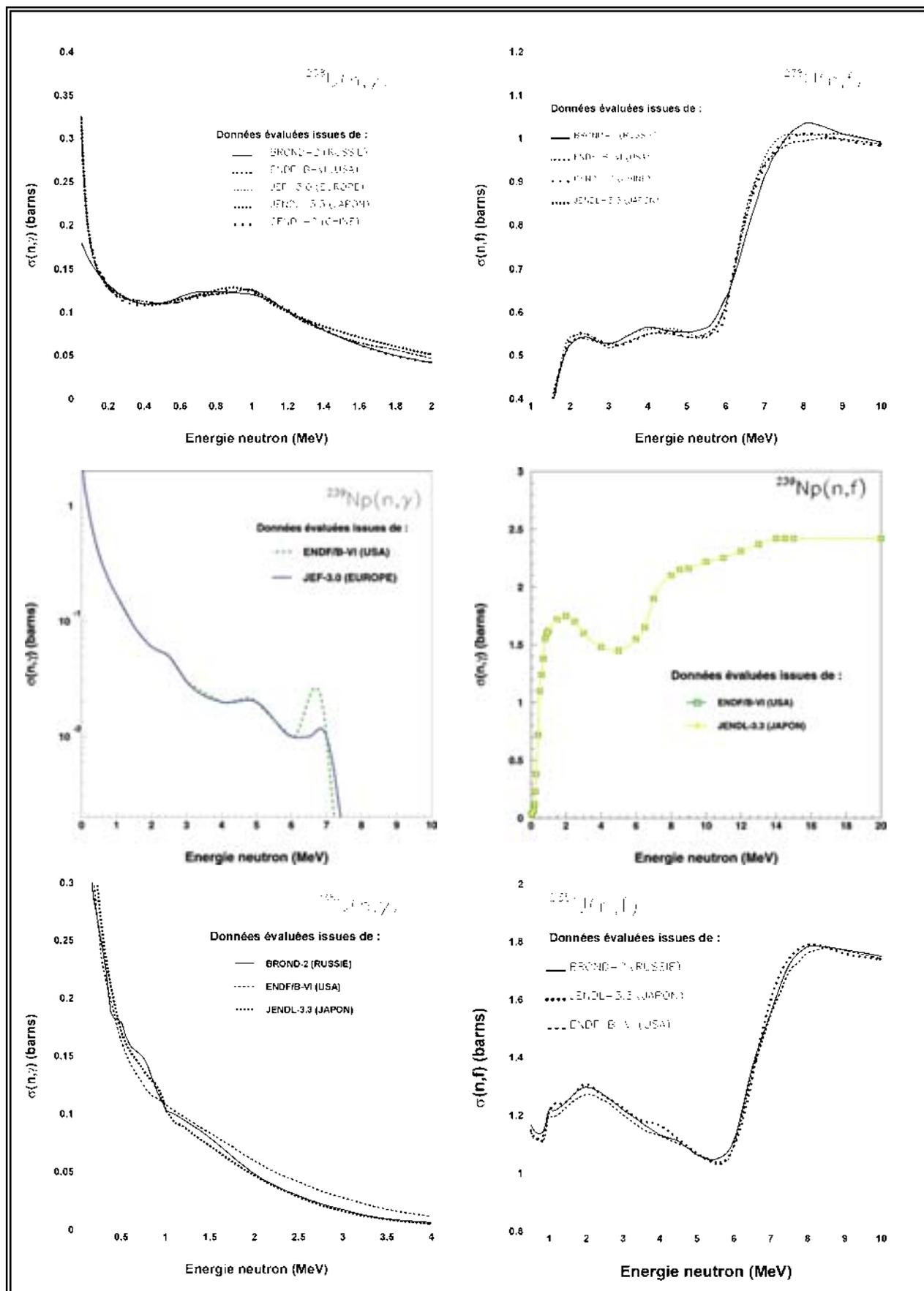


Figure 1.6 : Sections efficaces neutroniques de capture et de fission des noyaux ^{238}U , ^{239}Np et ^{239}Pu issues des différentes bibliothèques internationales en fonction de l'énergie des neutrons.

D'après les figures, on remarque une meilleure cohérence des bases de données pour les trois noyaux de la filière uranium présentés. En effet, dans le cas de la filière thorium, la dispersion des valeurs est parfois supérieure à 12 % pour les réactions $^{232}\text{Th}(n, \gamma)$ et $^{232}\text{Th}(n, f)$, à 40 % pour $^{233}\text{Pa}(n, \gamma)$ et $^{233}\text{Pa}(n, f)$, et à 8 % pour $^{233}\text{U}(n, f)$. Le bilan sur ces données est aujourd'hui insuffisant pour le démarrage de nouveaux réacteurs à combustible thorium.

Le déploiement de tels réacteurs à neutrons thermiques n'est possible qu'à condition d'estimer correctement le temps nécessaire pour démarrer un nouveau réacteur à partir du combustible régénéré, appelé temps de doublement. Or, ce temps dépend du pouvoir de régénération du réacteur déterminé à partir du rapport, noté α , entre la section efficace neutronique de capture et celle de fission du noyau fissile ^{233}U du cycle. Un réacteur régénérateur, voire surgénérateur implique une connaissance précise de ce rapport. Actuellement, l'incertitude associée à ce rapport dans le domaine des neutrons thermiques est mal connue. Des mesures datant des années 60 montrent des dispersions importantes. Des calculs plus récents [Nu02] ont montré que le temps de doublement passe de 31 à 110 ans si la section efficace de capture de ^{233}U est modifiée de 10 %. De plus, une erreur de 3 % sur ce rapport permettrait d'encadrer le temps de doublement entre 27 et 40 ans (incertitude de l'ordre de 30%).

Pour le concept de réacteurs critiques ou sous critiques basés sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ en spectre rapide et dédiés à l'incinération ou la transmutation des déchets à vie longue, la précision des données sur les sections efficaces neutroniques des actinides mineurs ou des produits de fissions est également insuffisante. Les incertitudes associées à ces données ont un impact trop important sur la valeur de la fraction des neutrons retardés. En conséquence, la puissance résiduelle du cœur du réacteur lors de son refroidissement est encore mal évaluée.

Pour le cycle du combustible $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$, l'objectif est d'atteindre une précision sur les données neutroniques comparable voire meilleure à celle de la filière uranium. Plusieurs programmes de mesures et d'évaluations de ces sections efficaces ont été proposés afin de réduire leurs marges d'incertitude et de minimiser ainsi leur impact sur les paramètres clés caractérisant le cœur de ces réacteurs du futur.

1.4 Besoin de nouvelles mesures : projets expérimentaux mis en jeu

La réduction des incertitudes associées aux données neutroniques dépend essentiellement de la performance des techniques expérimentales microscopiques utilisées. Des projets expérimentaux innovants ont été mis en place depuis quelques années dans le cadre du programme PACE. En ce qui concerne les mesures de sections efficaces, celles des réactions (n, γ) et (n, f) sont les plus demandées. Le tableau (1.2) regroupe les demandes concernant ces réactions pour les principaux isotopes intervenant dans un combustible usé à base de thorium.

Element	Type de réaction	Précision associée à la section efficace
^{232}Th	(n, f)	5 %
	(n, γ)	2 %
^{231}Pa	(n, f)	20 %
	(n, γ)	20 %
^{233}Pa	(n, f)	20 %
	(n, γ)	20 %
^{232}U	(n, f)	20 %
	(n, γ)	75 %
^{233}U	(n, f)	1 %
	(n, γ)	3 %
^{234}U	(n, f)	3 %
	(n, γ)	5 %
^{236}U	(n, f)	5 %

Tableau 1.2 : Précisions des sections efficaces des réactions (n, f) et (n, γ) extraites des recommandations AIEA [As99] des différents isotopes intervenant dans le cycle du thorium.

Les sections efficaces de fission de ^{233}U et du ^{232}Th , par exemple, sont demandées respectivement avec une précision de 1 et de 5 %. Pour ^{233}U , cette précision se justifie par le fait qu'étant l'élément fissile du groupe, il intervient fortement dans le calcul du bilan neutronique du réacteur, mais également dans le temps de doublement. Pour le ^{232}Th , élément fertile du cycle, une précision de 5 % est nécessaire car il contribue de façon importante dans le bilan des neutrons retardés comparé à ^{233}U (2 % par rapport à 0,25 % pour ^{233}U). Ceci peut poser des problèmes dans la détermination précise du paramètre de criticité du réacteur dans les systèmes hybrides (A.D.S).

Plusieurs groupes de recherches se sont lancés dans les réévaluations de ces sections efficaces. La collaboration européenne n_TOF vise comme objectif de mesurer les sections efficaces de fission de ces isotopes avec une précision inférieure à 5 % pour une gamme en énergie de neutron allant de 1 eV à 200 MeV. Ces mesures se déroulent auprès de la base de temps de vol du CERN à Genève d'une longueur de 200 m permettant une excellente résolution en énergie.

Des mesures de sections efficaces induites par neutrons ont également été effectuées à l'installation de temps de vol de Gelina à Geel ($^{129}\text{I}(n, f)$, $^{233}\text{Pa}(n, f)$). Le groupe strasbourgeois GRACE de l'Institut de Recherches Subatomiques a en projet de déterminer la section efficace de réaction (n, 2n) du noyau fissile ^{233}U auprès de cette installation. Cette réaction n'a jamais été mesurée jusqu'à présent de manière directe compte tenu des difficultés techniques qu'elle soulève.

Dans le cadre du projet PEREN, le laboratoire L.P.S.C. de Grenoble s'est lancé dans un vaste programme de réactualisation des sections efficaces totales d'éléments légers comme le carbone et le fluor (^{12}C , F). Ce sont des mesures par transmission effectuées notamment auprès du spectromètre à temps de ralentissement du laboratoire L.P.S.C. de Grenoble pour des énergies de neutrons de 1 à 100 eV, mais également auprès de l'accélérateur électrostatique de type Van De Graff de 4 MV du C.E.N. Bordeaux- Gradignan pour des énergies de neutrons de 0,1 à 0,5 MeV.

Pour finir, Le groupe ACEN du C.E.N. Bordeaux- Gradignan est impliqué activement dans ce programme, grâce, en partie, à cet accélérateur permettant des mesures de sections efficaces neutroniques allant de la cinquantaine de keV à 7 MeV.

1.5 Mesures de sections efficaces neutroniques de capture et de fission au C.E.N Bordeaux- Gradignan

Depuis une petite dizaine d'années, le groupe Aval du cycle électronucléaire du Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux- Gradignan s'intéresse aux mesures de sections efficaces de capture et de fission induites par neutrons des éléments du cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. Tout a commencé au laboratoire, avec la mesure de la section efficace de capture radiative du ^{232}Th [Ka01]. Elle a été mesurée avec une incertitude de 5 % auprès de l'accélérateur Van de Graaff du centre pour des neutrons d'énergie comprise entre 50 keV et 2 MeV. Ces mesures ont permis de valider la base de données JENDL-3 entre 50 et 800 keV et au delà de 1,5 MeV. Le groupe s'est ensuite intéressé aux mesures des sections efficaces de capture et de fission du ^{233}Pa : véritable défi pour les expérimentateurs. En effet compte tenu de la forte activité de ce noyau ($7,7 \cdot 10^8$ Bq/ μg), la fabrication et l'utilisation de ces cibles sont délicates. Pour ces raisons, ces sections efficaces sont difficilement mesurables par réaction directe. Pour contourner ces problèmes, la technique des réactions de transfert a été utilisée. Le principe est de déterminer les probabilités de fission et de capture du noyau composé ^{234}Pa à partir de la réaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p)^{234}\text{Pa}$. Ces mesures se sont déroulées avec succès auprès de l'accélérateur tandem d'Orsay. Elles ont fait l'objet de deux thèses ([Pe02], [Bo04]) et d'une publication pour la mesure de la section efficace de fission du ^{233}Pa [Pe03].

La figure (1.7) présente les résultats obtenus pour les réactions $^{232}\text{Th}(n, \gamma)$, $^{233}\text{Pa}(n, f)$ et $^{233}\text{Pa}(n, \gamma)$.

Ce travail s'inscrit donc dans ce cadre de mesures dont l'objectif est de réactualiser les sections efficaces de fission des deux noyaux principaux (^{232}Th , ^{233}U) du cycle dans le domaine des neutrons rapides. Ces mesures ont été effectuées auprès des accélérateurs électrostatiques de type Van de Graaff du C.E.N. Bordeaux Gradignan et du C.E.A./D.A.M. de Bruyères Le Châtel pour une gamme en énergie de neutrons comprise entre 0,95 et 6,5 MeV.

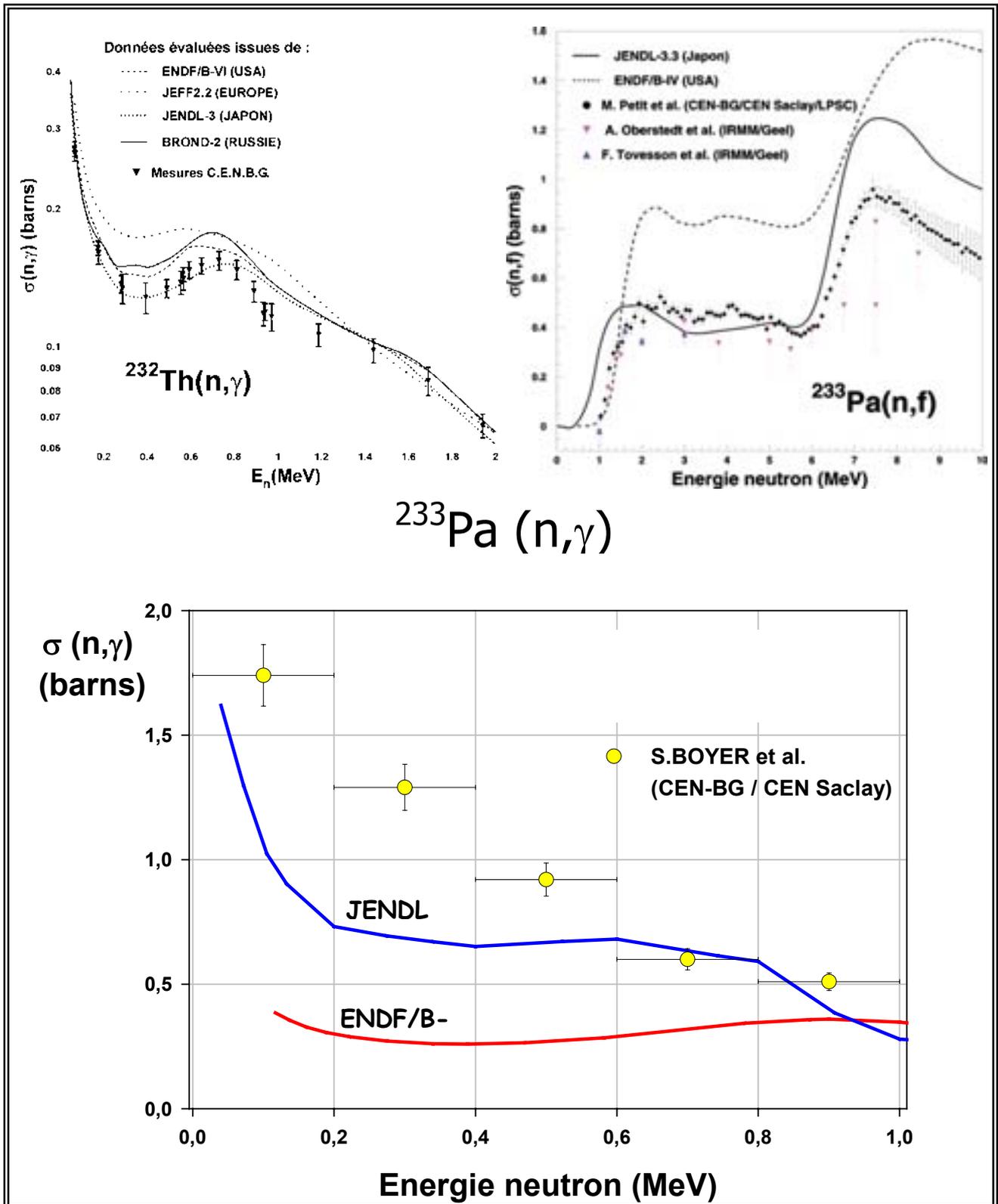


Figure 1.7 : Sections efficaces des réactions $^{232}\text{Th}(n,\gamma)$, $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$ et $^{233}\text{Pa}(n,f)$ en fonction de l'énergie des neutrons mesurées par le groupe ACEN du C.E.N de Bordeaux- Gradignan.

Chapitre 2 TECHNIQUES ET DISPOSITIF EXPERIMENTAUX

2.1 Mesure d'une section efficace de fission

Mesurer une section efficace de fission d'un noyau lourd induite par des neutrons mono énergétiques revient à déterminer pour une cible donnée :

- le nombre de fragments de fission (N_f) émis par cette cible au cours du temps Δt .
- le nombre d'atomes la composant (N_{at}^{cible}).
- le flux de neutrons Φ_n ($s^{-1}.cm^{-2}$) arrivant sur celle-ci d'énergie moyenne E_n .

La section efficace de fission à l'énergie E_n est donnée alors par la relation suivante :

$$\sigma_f(E_n) = \frac{N_f}{\Phi_n(E_n) \cdot N_{at}^{cible} \cdot \Delta t} \quad (2.1)$$

Si la détection des fragments de fission est relativement facile, la détermination du flux de neutrons, en revanche, constitue certainement la mesure la plus délicate et la plus complexe. A cause de son absence de charge, le neutron n'ionise pas la matière lors de son passage dans un matériau. Sa détection, de manière directe, est impossible. Néanmoins, il existe deux méthodes permettant de le détecter :

- La première est une méthode dite de la particule associée. Elle est utilisée lorsque que le neutron est produit par des réactions du type $T(p, n)^3He$, $D(d, n)^3He$ ou $T(d, n)^4He$. Elle consiste à détecter en coïncidences la particule chargée associée à l'émission du neutron. Elle permet, en principe, une détermination absolue du flux de neutrons produit. Dans notre gamme d'énergie, cette technique implique l'utilisation de cibles minces de tritium ou de deutérium pour la détection des particules chargées dont l'énergie ne dépasse pas 2 MeV. La séparation de ces particules du faisceau diffusé constitue une difficulté supplémentaire. Cette séparation est néanmoins possible à l'aide d'un spectromètre magnétique (filtre de vitesse). Il s'agit d'une technique complexe non disponible au C.E.N.B.G.
- La seconde est une méthode utilisant des réactions nucléaires dites de référence. C'est la méthode la plus couramment utilisée. Dans ce cas, le neutron est détecté à partir d'une réaction secondaire accompagnée de l'émission d'une particule chargée ou d'un photon γ . Le tableau (2.1) rassemble quelques unes de ces réactions de référence, les domaines d'énergie où elles sont utilisées, ainsi que les incertitudes des sections efficaces associées. La réaction $^{197}Au(n, \gamma)$ occupe une place à part dans cette compilation puisqu'elle représente la section efficace de référence la plus utilisée dans les mesures d'activation [Ka01].

E_n	$^{10}\text{B}(n, \alpha)$	$^6\text{Li}(n, \alpha)$	$^3\text{He}(n, p)$	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)$	$^{235}\text{U}(n, f)$	$^1\text{H}(n, p)$
$E_{\text{therm}} = 25$ meV	0,5 %	0,3 %	0,3 %	3 %	0,4 %	0,5 %
1 keV	1,5 %	0,5 %	0,7 %	8 %	3 %	0,5 %
10 keV	3 %	0,9 %	2 %	8 %	3 %	0,5 %
100 keV	5 %	1,1 %	5 %	7 %	3 %	0,5 %
1 MeV		5 %		8 %	3 %	0,5 %
10 MeV					3 %	0,5 %

Tableau 2.1: Liste des réactions de référence les plus souvent utilisées pour la détection de neutrons. Les incertitudes des section efficace associées à ces réactions sont données par la base américaine ENDF/B-VI.

La figure (2.1) compare la section efficace des autres réactions présentées dans le tableau (2.1) en fonction de l'énergie des neutrons.

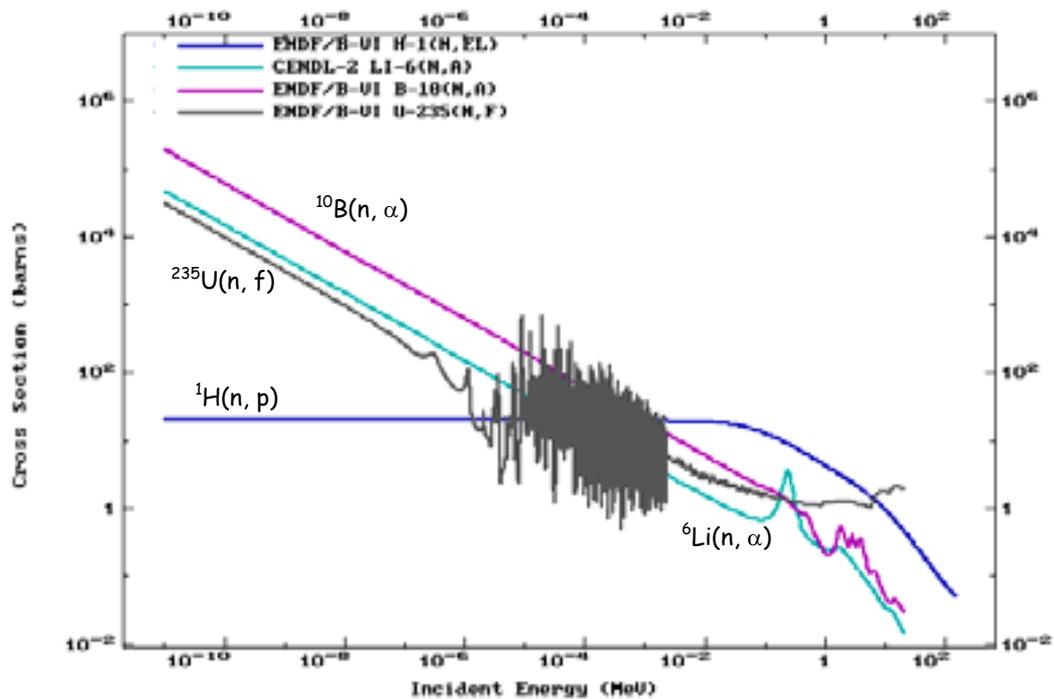


Figure 2.1: Sections efficaces des réactions $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$, $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, $^1\text{H}(n, p)$ et $^{235}\text{U}(n, f)$ en fonction de l'énergie des neutrons.

Les réactions $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ ou $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ sont utilisées pour des énergies de neutrons inférieures à la dizaine de keV. Les sections efficaces de ces réactions sont maintenant bien connues et présentent dans cette région une variation très proche de la loi en $1/\sqrt{E_n}$. Au delà de 100 keV, leur section efficace diminue rapidement alors qu'apparaissent les premières structures résonantes (à 260 keV pour la réaction $^6\text{Li}(n, \alpha)$).

Deux autres réactions présentent en revanche un domaine d'application plus vaste : la fission de l' ^{235}U et la diffusion élastique (n, p).

Dans la plupart des cas, les sections efficaces de fission induite par neutrons sont mesurées en utilisant l' ^{235}U comme noyau de référence. La précision de la section efficace de fission se situe au voisinage de 5 % dans le domaine des neutrons rapides. En revanche, la meilleure précision (0,5 % de 10^{-9} à 20 MeV) de la section efficace de la diffusion (n, p) s'avère particulièrement intéressante. Nous allons examiner dans le paragraphe suivant, le choix de cette dernière, comme réaction de référence.

2.2 La diffusion élastique (n, p)

Depuis la fin des années 50, la diffusion élastique (n, p) a fait l'objet de très nombreux travaux expérimentaux et théoriques sur une gamme d'énergie de plusieurs centaines de MeV. Ces travaux s'intègrent dans l'étude de la force nucléon- nucléon dont la connaissance est fondamentale dans la compréhension et la nature de l'interaction nucléaire. Les premières expériences de mesures de section efficace différentielle de la diffusion (n, p) ont eu lieu à l'université de Columbia pour des neutrons de basse énergie [Me49], aux laboratoires de Los Alamos et de Berkeley pour des neutrons de 14 [Ba49], 27 [Br51] et 90 MeV [Ha49]. Les résultats expérimentaux disponibles à l'époque montraient que :

- la section efficace différentielle de cette réaction dans le système du centre de masse est isotrope pour des neutrons d'énergie inférieure à 10 MeV.
- Elle est également symétrique par rapport à 90 degrés pour des neutrons d'énergie supérieure.

Dès les années 60, J. L. Gammel avait proposé une expression analytique de la section efficace totale de la diffusion élastique (n, p) en fonction de l'énergie des neutrons incidents [Ga63]. Elle s'écrit de la manière suivante :

$$\sigma_{np}(E) = \frac{3\pi}{\left[1,206 \times E + \left(0,0001306 \times E^2 + 0,09415 \times E - 1,86\right)^2\right]} + \frac{\pi}{\left[1,206 \times E + (0,4223 + E)^2\right]} \quad (2.2)$$

E correspond à l'énergie du neutron incident dans le référentiel du laboratoire exprimée en MeV.

On dispose, depuis les années 1970, d'une évaluation complète de la diffusion élastique (n, p) entre 30 keV et 30 MeV concernant la section efficace totale (σ_{np}) et différentielle ($\frac{d\sigma_{np}}{d\omega}$) de la diffusion élastique (n, p). Hopkins et Breit [Ho71] sont à l'origine de cette évaluation dont l'étude a été réalisée à partir de nombreux résultats expérimentaux et théoriques. Ces travaux s'appuient sur des modèles plus complets de l'interaction nucléon- nucléon (prise en compte du couplage spin- orbite, des états de spin $L > 1$, et de potentiels d'interaction plus réalistes). Cette évaluation confirme la bonne précision ($< 1\%$) de l'expression de la section efficace totale proposée par Gammel, expression encore largement utilisée de nos jours. Le mérite de cette évaluation a été surtout de préciser la forme des distributions angulaires des neutrons (protons) diffusés dans le centre de masse de la collision élastique (n, p). Une représentation analytique (en polynômes de Legendre) de ces distributions angulaires est disponible pour des neutrons d'énergie comprise entre 0,1 et 30 MeV. L'analyse de ces distributions montre qu'elles ne sont pas isotropes et présente une asymétrie à 90° par rapport à la direction du neutron incident. Les rapports d'anisotropie exprimés à travers le rapport $W_p(0^\circ)/W_p(90^\circ)$ du nombre de protons diffusés à 0° et à 90° augmente avec l'énergie des neutrons allant de 1,004 à 1 MeV et atteignant 1,023 à 7 MeV. Néanmoins au dessous de 10 MeV, ce facteur d'anisotropie reste faible et inférieur à 3 %.

La figure (2.2) présente, pour une énergie de neutron comprise entre 0,5 et 6 MeV, les sections efficaces de fission de ^{235}U (a) et de la diffusion élastique (n, p) (b). Concernant $^{235}\text{U}(n, f)$, les données évaluées extraites des bases américaine (ENDF/B-VI) et japonaise (JENDL-3.3) présentent encore des écarts supérieurs à 3 %. En revanche, l'approche phénoménologique de Gammel, les évaluations proposées par Hopkins et Breit et extraites de la bibliothèque ENDF sont en excellents accord (écarts $< 0,5\%$). Ceci justifie donc notre choix de la diffusion (n, p) comme réaction de référence pour la détermination du flux de neutrons.

Ce choix reprend la technique utilisée par D.M Barton et al [Ba76] pour mesurer la section efficace de fission de ^{235}U induite par des neutrons rapides (1 à 6 MeV). L'application de cette technique aux réactions $^{233}\text{U}(n, f)$ et $^{232}\text{Th}(n, f)$ sont les objectifs principaux de ce travail. Ces sections efficaces ont été mesurées pour une énergie de neutron comprise entre 0,95 et 6,5 MeV. Nous allons, maintenant, nous intéresser au principe de la méthode utilisée.

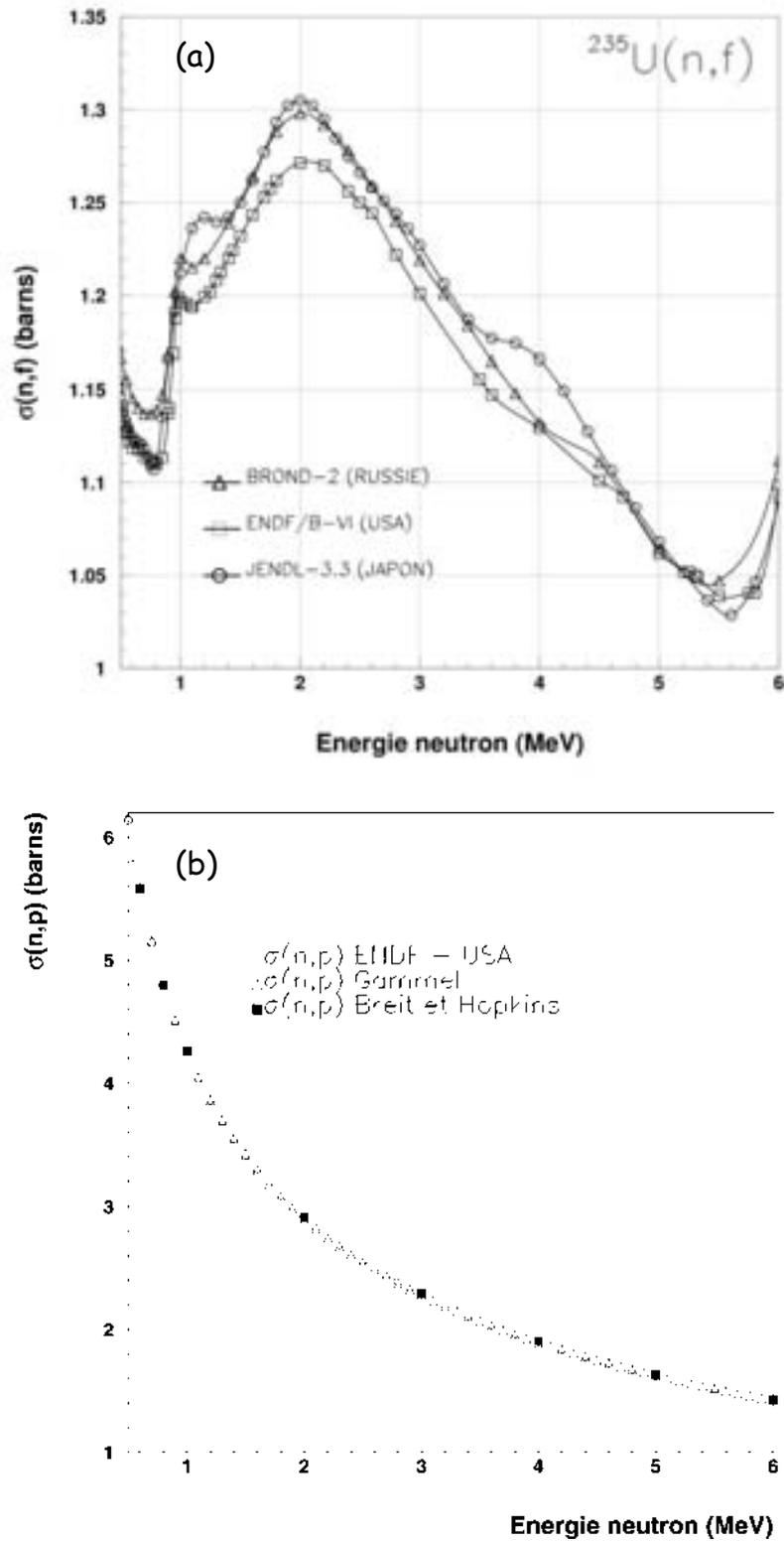


Figure 2.2 : Comparaison des sections efficaces évaluées de fission de ^{235}U et de diffusion élastique (n, p) pour des neutrons de 0,5 à 6 MeV.

2.3 Principe de notre méthode expérimentale

Le principe de notre méthode expérimentale est représenté sur la figure (2.3).

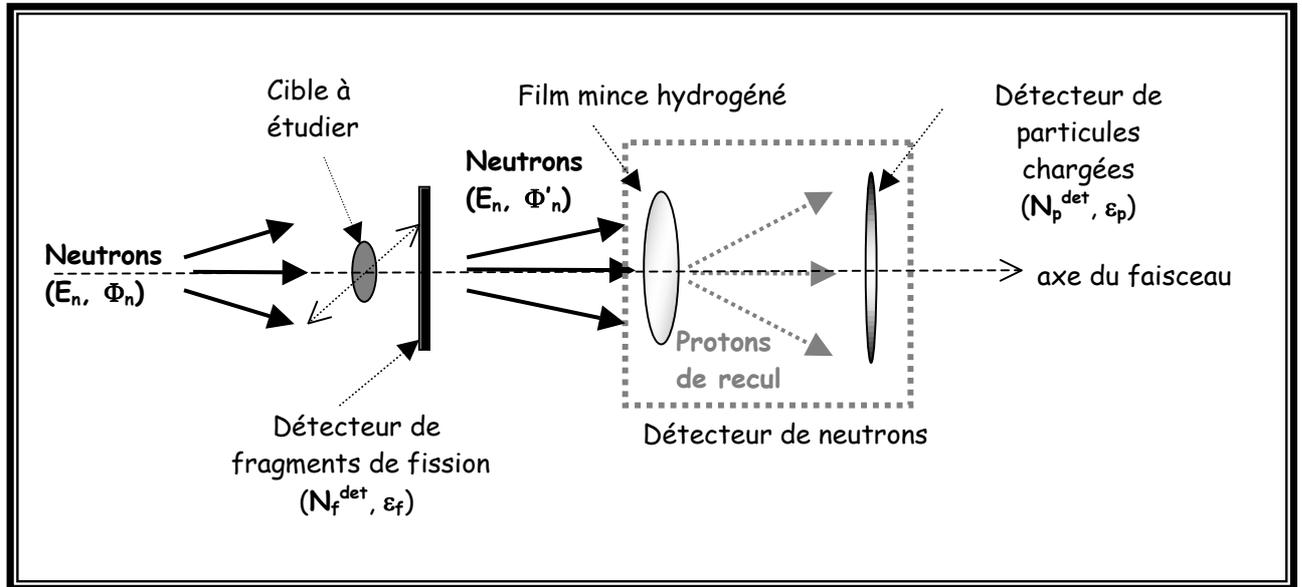


Figure 2.3 : Schéma de principe de la méthode expérimentale

Une cible d'uranium ou de thorium et un film mince hydrogéné sont soumis à un flux intense de neutrons quasi mono énergétiques (Φ_n, Φ'_n). Un détecteur de fission permet le comptage des fragments émis (N_f^{det}) avec une efficacité ϵ_f . Les neutrons issus de la source vont être ensuite diffusés par les atomes d'hydrogène d'un film plastique mince, appelé radiateur, placé dans l'axe du faisceau. Les protons de recul, issus de ces collisions élastiques, sont éjectés du film, puis comptés (N_p^{det}) par un détecteur de particules chargées avec une efficacité ϵ_p . Connaissant le nombre d'atomes d'hydrogène N_H , la géométrie de notre dispositif de détection, le flux de neutrons Φ'_n arrivant sur le film s'écrit:

$$\Phi'_n(E_n) = \frac{N_p^{det}}{\sigma_{np}(E_n) \cdot N_H \cdot \epsilon_p \cdot \Delta t} \quad (2.3)$$

où $\sigma_{np}(E_n)$ représente la section efficace de la diffusion (n, p) à l'énergie E_n et Δt la durée du comptage.

A partir des relations (2.1) et (2.3), la section efficace de fission d'un noyau induite par des neutrons d'énergie E_n peut alors s'exprimer de la manière suivante :

$$\sigma_f(E_n) = \frac{\Phi'_n(E_n)}{\Phi_n(E_n)} \cdot \frac{N_f^{\text{det}}}{N_p^{\text{det}}} \cdot \frac{N_H}{N_{\text{at}}^{\text{cible}}} \cdot \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_f} \cdot \sigma_{np}(E_n) \quad (2.4)$$

- Φ'_n et Φ_n sont respectivement les flux de neutrons arrivant sur le film et la cible de l'actinide étudié.
- Les efficacités de détection ε_p et ε_f tiennent compte de l'ouverture angulaire des détecteurs, de leur efficacité intrinsèque et des effets cinématiques de la fission et de la diffusion élastique (n, p).

D'après la relation (2.4), l'incertitude associée à la section efficace de fission mesurée dépend des erreurs statistiques liées aux nombres de fission et protons détectés par notre dispositif (N_f^{det} et N_p^{det}), aux erreurs systématiques liées au nombre d'atomes contenus dans la cible ($N_{\text{at}}^{\text{cible}}$), au nombre de protons présents à l'intérieur du radiateur (N_H), aux efficacités de détection (ε_p et ε_f) et enfin à l'incertitude associée à la section efficace de la diffusion élastique (n, p) ($\sigma_{np}(E_n)$).

Nous avons vu que l'utilisation de cette méthode implique un flux de neutrons mono énergétiques. Nous allons voir, dans le paragraphe suivant, de quelle manière sont produits ces neutrons.

2.4 Production des neutrons

Les neutrons sont produits par collisions nucléaires entre un faisceau de particules chargées (protons, deutons) et des noyaux légers (^3H , ^2D , ^7Li). L'accélérateur électrostatique de 4 MV de type Van de Graaff du Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux- Gradignan (C.E.N.B.G.), est une machine à faisceau continu qui produit des protons, deutons ou des particules α d'énergie allant de 1 MeV à 3,5 MeV, avec une intensité maximale de $50 \mu\text{A}$. L'énergie des neutrons produits varie avec celle des protons (ou deutons) et avec leur angle d'émission par rapport au faisceau de particules chargées. La figure (2.4) présente les sections efficaces différentielles de production de neutrons (à 0°) des réactions les plus fréquemment utilisées au C.E.N.B.G. en fonction de l'énergie des neutrons. Sur chaque courbe, sont reportées quelques énergies du projectile de la réaction.

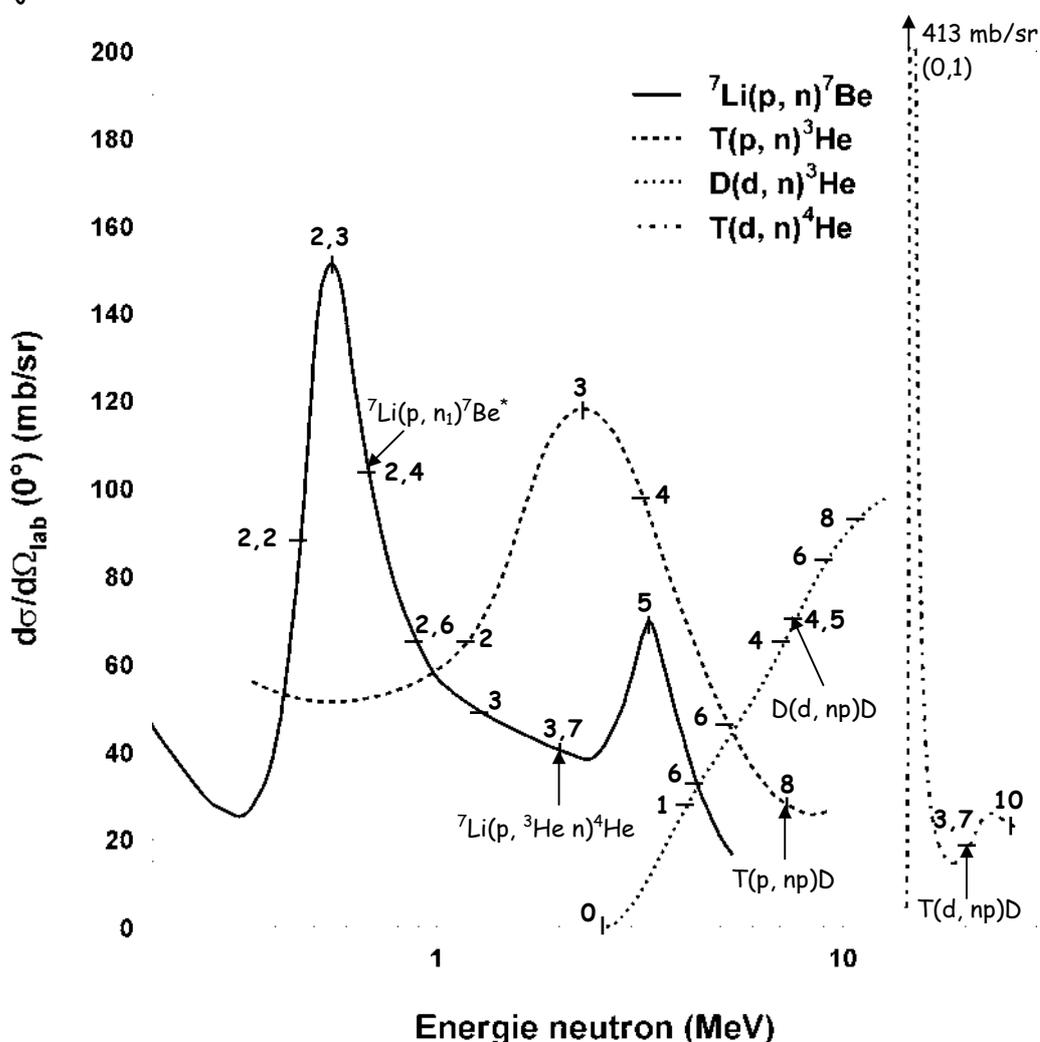


Figure 2.4 : Sections efficaces différentielles (à 0 degrés) dans le laboratoire des réactions $^7\text{Li}(p, n)$, $\text{T}(p, n)$, $\text{D}(d, n)$ et $\text{T}(d, n)$ en fonction de l'énergie des neutrons produits. Sur chaque courbe sont représentées quelques énergies (en MeV) du projectile de ces réactions.

Ces réactions sont, pour la plupart, des réactions endoénergétiques. A partir d'une énergie seuil, elles produisent des neutrons mono-énergétiques (pour un angle d'émission de neutron θ_n donné) sur un domaine en énergie bien défini.

L'accélérateur du C.E.N.B.G. est une machine bien adaptée pour nos mesures. En effet, d'après la figure (2.5), il est possible de couvrir globalement toute la gamme en énergie des neutrons prompts de fission. Il suffit pour cela d'utiliser la réaction adéquate. Pour des neutrons d'énergie inférieure à 650 keV ($E_p=2,4$ MeV), la réaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ est bien adaptée. Au delà de cette énergie, la réaction parasite ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}^*$ s'ouvre et un second groupe de neutrons de plus faible énergie est produit. La réaction ${}^3\text{T}(p, n){}^3\text{He}$ est alors utilisée pour des énergies de neutrons comprises entre 650 keV et 6 MeV. En revanche, l'énergie maximale du faisceau de protons délivré par l'accélérateur est de 3,5 MeV. L'énergie neutron correspondante est limitée à 2,5 MeV. Les capacités énergétiques du Van de Graaff ne permettent donc pas d'explorer la gamme d'énergie de neutron entre 2,5 et 4 MeV. A partir de 4 MeV, la réaction ${}^2\text{D}(d, n){}^3\text{He}$ prend le relais pour produire des neutrons jusqu'à 7 MeV. Cette énergie correspond à l'énergie maximum du faisceau de deutons ($E_{dmax}=3,5$ MeV) délivré par la machine. L'intensité à 0° du flux de neutrons produit par ces réactions, atteint typiquement 10^6 n.s $^{-1}$.cm $^{-2}$ à 5 cm de la source.

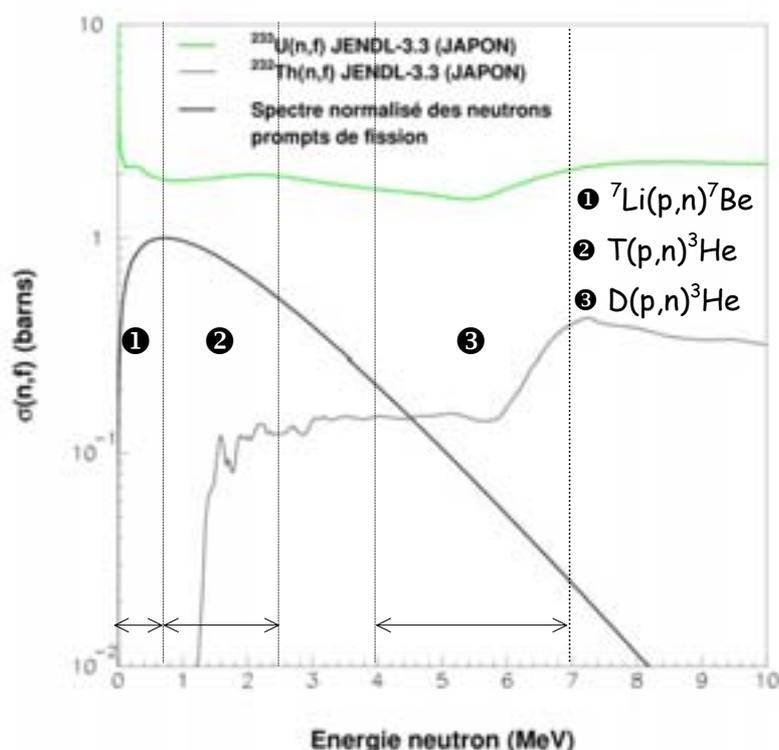


Figure 2.5 : Domaine énergétique possible pour des neutrons mono énergétiques produits au Van de Graaff du C.E.N.B.G. Comparaison avec le spectre énergétique des neutrons prompt de fission.

Pour la production des neutrons, nous avons donc utilisé trois types de cibles :

- Des cibles de lithium pur. Elles sont fabriquées au service des cibles du C.E.N.B.G. par évaporation sous vide du lithium sur un support en tantale de 0,5 mm d'épaisseur et de 28 mm de diamètre. La surface des dépôts est de l'ordre de 1 cm².
- Des cibles solides de TiD et de TiT. Les gaz de tritium et de deutérium sont implantés dans des matrices solides de titane qui sont déposées sur des supports de cuivre de 1 mm d'épaisseur. Ces cibles ont été fabriquées par la SODERN [So].

le tableau (2.2) regroupe les différents paramètres qui caractérisent le faisceau et les cibles productrices de neutrons utilisées pour nos mesures.

Réaction	I _{faisceau} sur cible	Cible	Epaisseur (μg/cm ²)	Q (MeV)	E _{seuil} ^(a) (MeV)	Intensité à 0° du flux neutronique maximal produit à 5 cm de la source (n.s ⁻¹ .cm ⁻²)
T(p,n) ³ He	5 μA	TiT sur 1 mm de Cu	980 (4,7 Curie)	-0,764	E _s = 1,147	1,7 10 ⁶ (E _p =3 MeV)
D(d,n) ³ He	5 μA	TiD sur 1 mm de Cu	1000	3,269		9,5 10 ⁵ (E _d =3,5 MeV) ^(b)
⁷ Li(p,n) ⁷ Be	5 μA	Li naturel sur Ta	de 250 à 500	-1,644	E _s = 1,920	2,5 10 ⁶ à 5 10 ⁶ (E _p =2.3 MeV)

Tableau 2.2 : Caractéristiques du faisceau (Intensité sur la cible) et des sources de neutrons choisis pour nos campagnes de mesures.

(a) : Energie seuil pour la production de neutrons strictement mono-énergétiques.

(b) : Energie limite du faisceau fourni par l'accélérateur.

2.5 Dispositif expérimental

La chambre à réaction a été conçue et réalisée au C.E.N.B.G. Cette chambre a fait l'objet d'une étude approfondie dont le principal objectif était de minimiser les interactions des neutrons incidents avec les matériaux la composant. Elle a été conçue la plus légère possible tout en ayant une bonne tenue mécanique sous vide. Cette étude a permis également d'optimiser son efficacité de détection et d'améliorer la tenue des détecteurs sous irradiation de neutrons. La figure (2.6) présente une vue schématique de notre dispositif.

La face avant de la chambre est composée d'une enceinte cylindrique en aluminium de 25 cm de diamètre et de 28 cm de long. Pour minimiser la quantité de matière traversée par les neutrons, la face avant de l'enceinte est équipée d'une fenêtre en aluminium de 0,7 mm d'épaisseur.

La face arrière de la chambre se compose d'une plaque en aluminium de 28 cm de côté sur laquelle vient se fixer l'enceinte à vide. La plaque repose sur un pied métallique à 1,50 m du sol. Ce pied est fixé sur un plateau dont le déplacement horizontal permet la mise en place de la chambre et facilite d'éventuelles interventions. Une pompe primaire reliée à l'enceinte permet d'atteindre un vide de 10^{-3} milibars. La face avant de la chambre est placée à deux centimètres de la cible de production de neutrons. Elle est alignée dans l'axe du faisceau (0°) par visée optique. Par ailleurs, un compteur proportionnel de type ^3He , enveloppé dans un cylindre de paraffine, est placé dans l'axe du faisceau à 2,42 m de la source de neutrons. Il permet de mesurer l'évolution du flux de neutrons produits à 0° afin de contrôler l'usure des cibles sous irradiation. Enfin, tout le dispositif se situe au-dessus d'une fosse à neutrons de 2 m de profondeur pour minimiser la diffusion des neutrons diffusés par le sol.

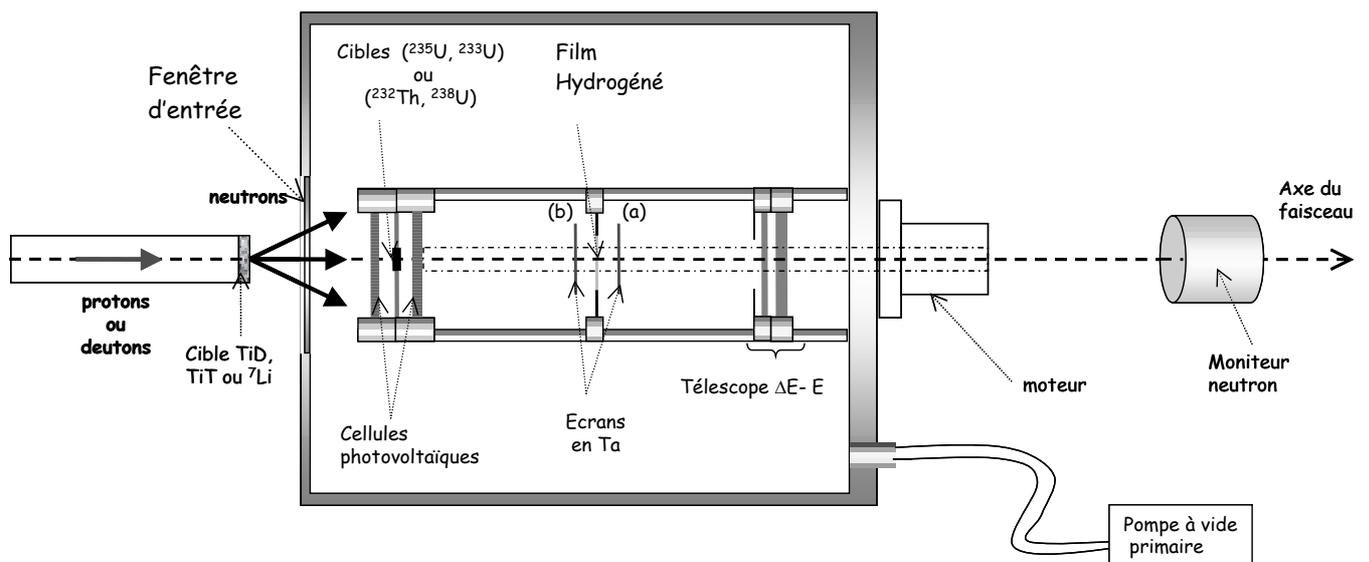


Figure 2.6 : Schéma (vue de dessus) du dispositif expérimental

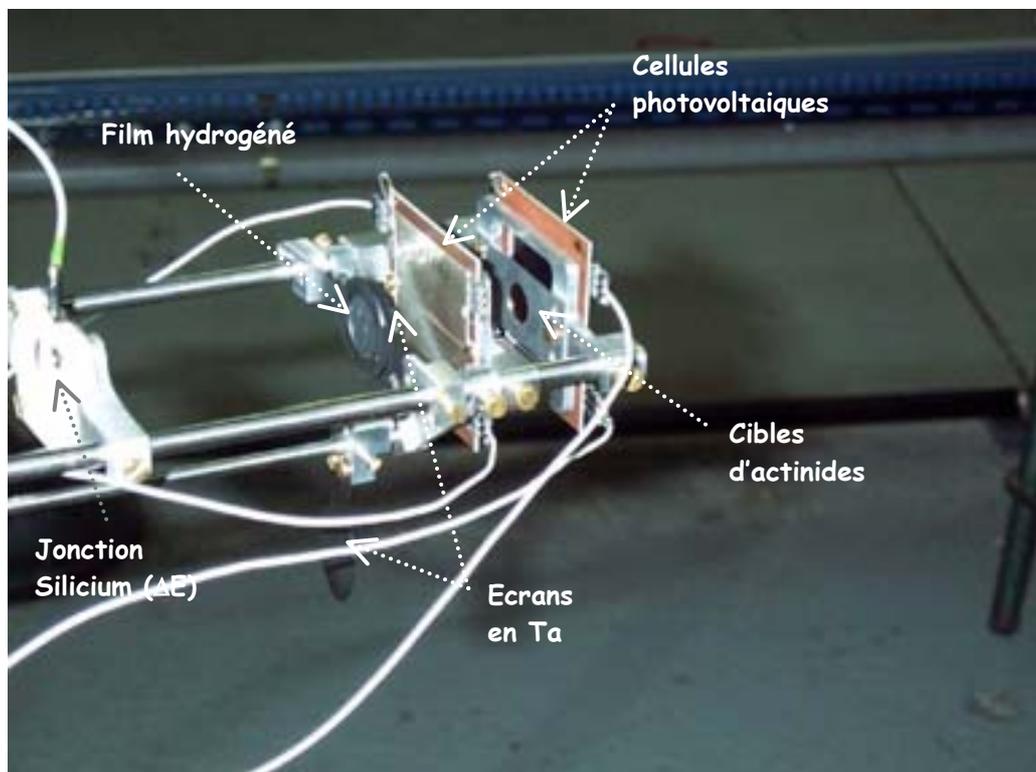
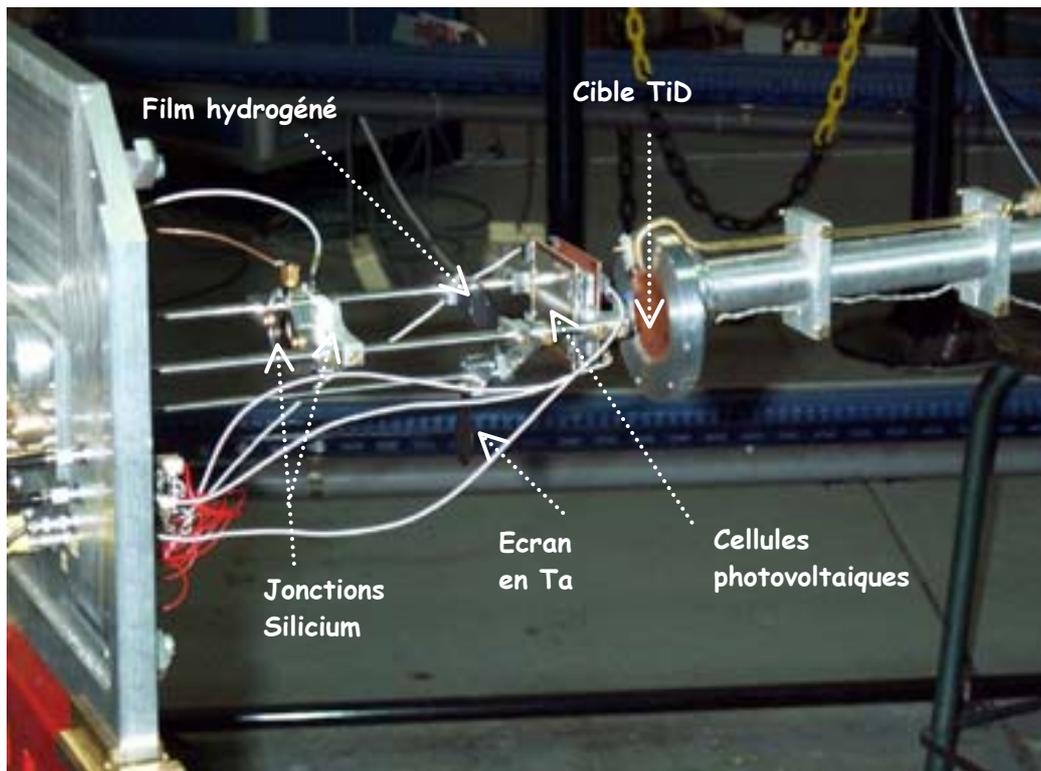


Figure 2.7 : Photographies du dispositif de détection.

L'intérieur de la chambre contient le dispositif de détection dont les photographies sont présentées sur la figure (2.7). Deux tiges en aluminium de 25 cm de long, fixées horizontalement sur la face arrière de la chambre, assurent un alignement précis entre les différents dispositifs de détection et la source de production de neutrons. Le dispositif peut être divisé en deux parties :

- La première, située à 4 cm de la source de neutrons, est composée de deux cibles placées dos à dos. Chaque cible fait face à un système composé de deux cellules photovoltaïques. Ces cellules détectent un seul des deux fragments de fission émis par chaque cible (voir les photographies précédentes). Les combinaisons de cibles suivantes ont été étudiées : le couple de noyaux fissiles $^{233}\text{U}/^{235}\text{U}$ et le couple de noyaux fertiles $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$.
- La seconde partie, placée à une dizaine de centimètres de la source de neutrons, est composée d'un film mince hydrogéné (polypropylène C_3H_6), appelé radiateur, et d'une ou de deux jonctions silicium à barrière de surface. Le film plastique est posé sur un anneau en tantale de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Son diamètre intérieur est de 15 mm et définit la surface utile du radiateur. Les jonctions sont placées derrière le film à une distance de 7,5 cm environ. Elles permettent de détecter les protons de recul issus de la diffusion élastique (n, p), sortant du radiateur et émis préférentiellement aux petits angles. L'ensemble (radiateur, jonction(s) silicium) constitue notre détecteur de neutrons.

Par ailleurs, une tige en aluminium de 30 cm de longueur porte à l'une de ces extrémités un jeu de deux écrans circulaires excentrés en tantale (Ta) de 30 mm de diamètre et de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Cette tige est entraînée par un moteur externe à deux positions a et b :

- Position a (Bf) : l'un des deux écrans en Ta vient masquer la face arrière du film de polypropylène (PP). Les protons de recul sortant du radiateur sont alors arrêtés dans l'écran en tantale. Cette position permet de mesurer le bruit de fond arrivant sur les jonctions.
- Position b (PP) : l'écran en Ta masquant la face arrière du film est retiré du faisceau. Les protons de recul sont détectés par les jonctions silicium. Pour tenir compte des interactions (n, Ta), le second écran est introduit entre le flux de neutrons incidents et le radiateur.

L'utilité de la position (a) sera discutée un peu plus tard dans le chapitre. Nous allons maintenant examiner les caractéristiques des cibles d'actinides utilisées.

2.6 Cibles d'actinides utilisées

2.6.1 Présentation

Les cibles d' ^{235}U , d' ^{238}U et de ^{232}Th ont été fabriquées par spectrométrie de masse (spectromètre magnétique SIDONIE) auprès du service SEMIRAMIS du Centre de Spectrométrie Nucléaire et Spectrométrie de Masse (C.S.N.S.M) d'Orsay. Cette technique permet de réaliser des dépôts d'une grande pureté isotopique (99,9 %). Chaque dépôt est monté sur un support en aluminium de 0,3 mm d'épaisseur. Chaque cible est recouverte d'un écran en aluminium de 0,5 mm d'épaisseur. Un trou circulaire de 10 mm de diamètre permet de définir la surface active de la cible.

La cible d' ^{233}U utilisée a été fabriquée par électrodéposition sur une feuille d'aluminium de 0,47 mm d'épaisseur. Elle est montée sur un support rectangulaire en aluminium de 0,5 mm d'épaisseur. Les différentes caractéristiques des cibles utilisées sont répertoriées dans le tableau (2.3) suivant :

Type de cible	Quantité	Épaisseur ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	Diamètre de collimation (mm)
^{232}Th	2	~ 400	$\phi_c = 10,0$
^{238}U	2	~ 400	$\phi_c = 10,2$
^{235}U	1	~ 400	$\phi_c = 10,0$
^{233}U	1	~ 200	$\phi_c = 11,0$

Tableau 2.3 : Caractéristiques des cibles d'actinides utilisées.

Les épaisseurs (200- 400 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) des cibles utilisées ont été choisies afin d'éviter l'auto absorption des fragments de fission lors de leur parcours dans celles-ci. En effet, ces épaisseurs restent faibles devant le parcours des fragments de fission (≈ 10 à $15 \text{ mg}/\text{cm}^2$) dans l'uranium ou le thorium [No70].

2.6.2 Caractérisation de leur épaisseur par radioactivité α

Les noyaux d' 233 , 235 , ^{238}U et de ^{232}Th sont des émetteurs α à vie longue. Le tableau (2.4) présente la durée de demi- vie ($T_{1/2}$), la constante radioactive (λ) de chaque noyau et l'énergie des α émis les plus probables avec leur intensité (I_α).

Noyau	$T_{1/2}$ (ans)	$\lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}}$ (s ⁻¹)	E_α ^(a) (MeV)	\bar{E}_α ^(b) (MeV)	I_α ^(c) (%)
²³² Th	1,405 10 ¹⁰	1,564 10 ⁻¹⁸	3,950 4,013	3,988	23 77
²³³ U	1,592 10 ⁵	1,381 10 ⁻¹³	4,729 4,782 4,824	4,816	1,6 14,1 83,3
²³⁵ U	7,038 10 ⁸	3,123 10 ⁻¹⁷	4,215 4,366 4,398 4,596	4,391	6,4 17 57 5,6
²³⁸ U	4,468 10 ⁹	4,919 10 ⁻¹⁸	4,151 4,198	4,187	23 77

Tableau 2.4 : Caractéristiques de la radioactivité α des actinides étudiés pour nos mesures : L'énergie des α a été déterminée par A. Rytz [Ry91]

$$(a) : \bar{E}_\alpha = \frac{\sum_i I_{\alpha_i} \cdot E_{\alpha_i}}{\sum_i I_{\alpha_i}}$$

(b) : valeur moyenne des rapports d'embranchement α reportés dans la littérature.

Le principe de la méthode, schématisé sur la figure (2.8), consiste à mesurer l'activité α de chaque cible utilisée (A_α).

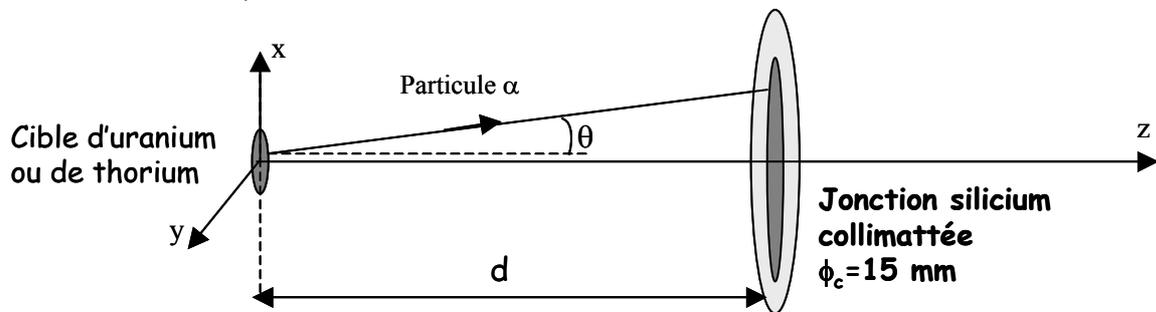


Figure 2.8 : Principe de la mesure de l'activité des cibles d'actinides utilisées.

Chaque cible est placée à une distance d devant une jonction silicium de $150 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La surface de détection est définie par un collimateur de 15 mm de diamètre. Les particules α émises sont détectées par la jonction à cette distance et sont comptées (N_α^{det}) pendant une durée Δt . La figure (2.9) montre un exemple des spectres en énergie des particules α détectées par la jonction pour chaque noyau étudié.

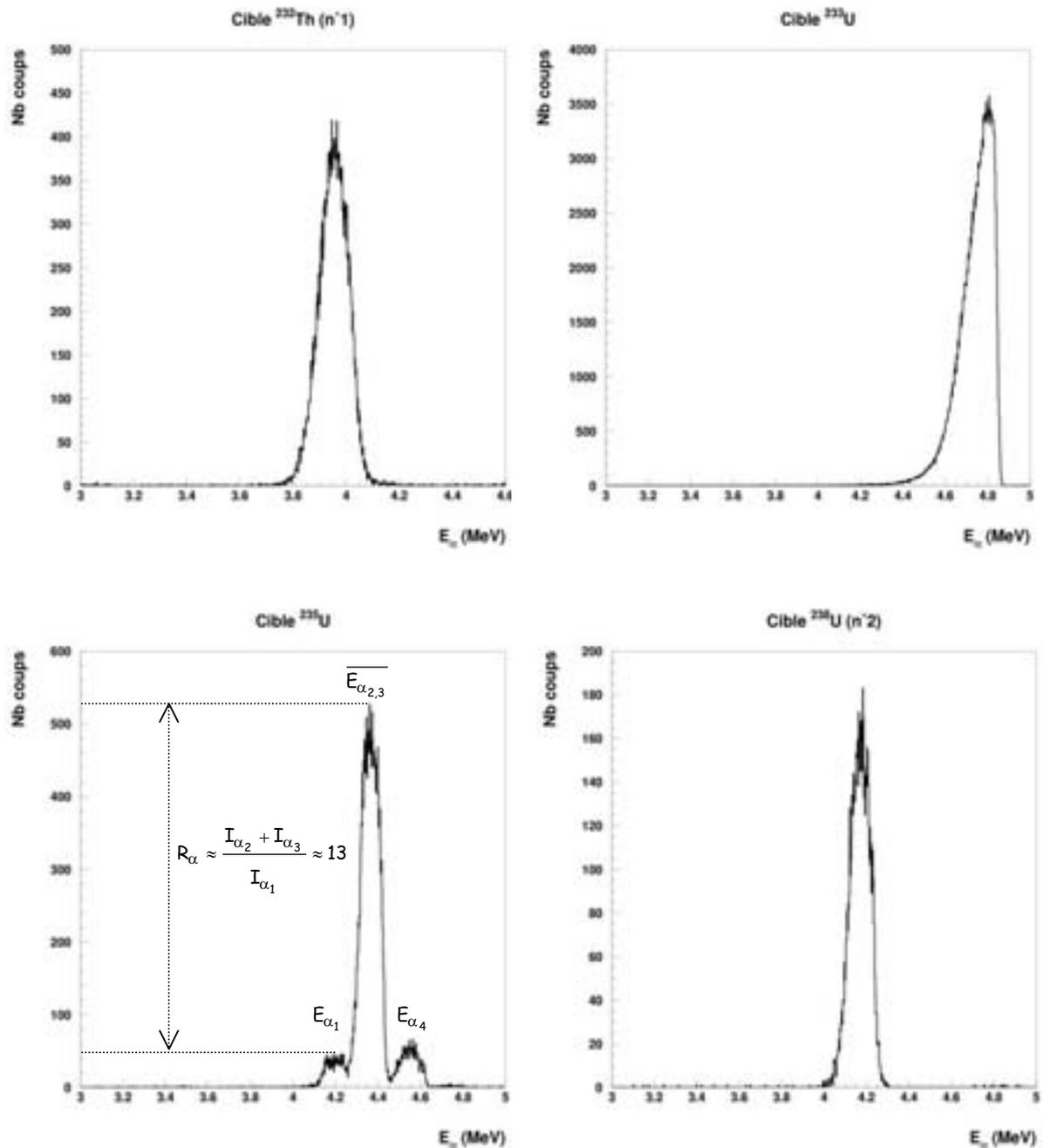


Figure 2.9 : Spectres en énergie des particules α détectées par la jonction à une distance d pour chaque cible utilisée.

La résolution de la jonction ne permet pas de séparer les particules dont l'écart en énergie est inférieur 90 keV. Pour les cibles d' 233 , ^{238}U et ^{232}Th , les particules α détectées sont donc associées à un seul pic dont l'énergie moyenne correspond à celle donnée dans le tableau (2.4). Pour la cible d' ^{235}U , il est possible de distinguer l'émission de trois groupes d' α d'énergie différente. Le spectre est en bon accord avec les données du tableau (2.4) d'un point de vue énergétique et intensité. Ces spectres confirment également que les cibles sont isotopiquement pures.

L'activité dans 4π stéradians de chaque cible à l'instant t est définie par :

$$A_{\alpha}(t) = \frac{4\pi}{\Omega} \cdot \frac{N_{\alpha}^{\text{det}}}{\Delta t} \quad (2.5)$$

avec Ω , l'angle solide de détection obtenu par simulation Monte Carlo. La validation de cette simulation est présentée en annexe A dans le cas de la source étalon utilisée pour l'étalonnage en énergie des jonctions silicium. Les durées de demi-vie de ces noyaux étant très longues ($>10^5$ ans), l'activité de ces cibles à la date t où les mesures ont été effectuées, correspond à leur activité initiale. Le nombre d'atomes ou de noyaux-cible de l'actinide considéré ($N_{\text{at}}^{\text{cible}}$) est alors donné par l'expression suivante :

$$N_{\text{at}}^{\text{cible}} = \frac{A(t=0)}{\lambda} = \frac{4\pi}{\Omega} \cdot \frac{N_{\alpha_i}^{\text{det}}}{\lambda \times \Delta t} \quad (2.6)$$

λ est la constante radioactive de l'actinide étudié.

Pour chaque cible, plusieurs mesures ont été effectuées en faisant varier la distance d . Le tableau (2.5) présente l'activité moyenne, le nombre d'atomes par unité de surface et l'épaisseur (en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) des différentes cibles utilisées.

Cible	\bar{A}_{α} (Bq)	$N_{\text{at}}^{\text{cible}}$ (10^{17} at)	Épaisseur ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
^{232}Th (n°1)	$1,193 \pm 0,005$	$7,631 \pm 0,035$	$374 \pm 1,7$
^{232}Th (n°2)	$1,138 \pm 0,005$	$7,275 \pm 0,030$	$357 \pm 1,5$
^{233}U	77321 ± 170	$5,599 \pm 0,012$	$228 \pm 0,5$
^{235}U	$25,73 \pm 0,26$	$8,239 \pm 0,086$	$406 \pm 4,1$
^{238}U (n°1)	$3,907 \pm 0,034$	$7,495 \pm 0,066$	$363 \pm 3,1$
^{238}U (n°2)	$4,646 \pm 0,044$	$8,915 \pm 0,082$	431 ± 4

Tableau 2.5 : Caractérisation des épaisseurs des cibles utilisées.

L'incertitude associée aux épaisseurs mesurées n'excède pas 1%. Ces mesures ont été essentielles pour la détermination précise de la section efficace de fission de ces noyaux.

Nous allons maintenant aborder la détection des fragments de fission.

2.7 Détection des fragments de fission

Un détecteur de fragments de fission doit vérifier les conditions suivantes :

- une grande efficacité de détection.
- Une bonne stabilité sous irradiation intense de neutrons.

Il doit être également transparent aux neutrons pour perturber le moins possible le flux incident. Notre choix s'est porté sur des cellules photovoltaïques dont les caractéristiques sont parfaitement adaptées pour nos mesures. Ces caractéristiques ont été largement étudiées dans le mémoire de thèse de M. Petit [Pe02]. Contrairement aux jonctions silicium utilisées habituellement, elles présentent une bonne tenue sous irradiation de neutrons et un faible coût. L'utilisation de ces cellules permet également de concevoir une géométrie de détection adaptée à nos besoins. Par ailleurs, leur fonctionnement est différent des jonctions silicium. Lors du passage d'un fragment de fission, le silicium des cellules est ionisé sur un parcours de 10 micromètres environ et les charges sont collectées selon le phénomène de "funneling" (funnel=entonnoir) [Hs81].

En revanche, à cause de leur résistance inverse très faible ($\sim 0,1-1 \Omega \cdot \text{cm}$), il est impossible d'appliquer une tension de polarisation aux cellules afin d'augmenter la zone de déplétion dans le silicium. L'amplitude du signal collecté est donc beaucoup plus faible que dans les jonctions Si. Ceci implique l'emploi de préamplificateur très performant [Pe02]. Au nombre de quatre (un par cellule), ils sont disposés à l'intérieur de la chambre à réaction.

Notre dispositif de détection est représenté sur la figure (2.10). Compte tenu de la faible épaisseur des cibles de thorium et d'uranium utilisées et des faibles sections efficaces de fission à mesurer (surtout pour le ^{232}Th), le taux de fission émis dans 4π est faible. Pour maximiser le taux de comptage, nous avons choisi une géométrie de détection relativement compacte. La distance entre la cible et le système de détection est de l'ordre de 6 mm. Le dispositif est composé de deux cellules photovoltaïques rectangulaires (cellules solaires en silicium de $20 \times 40 \text{ mm}^2$) de $350 \mu\text{m}$ d'épaisseur chacune. Leur face avant comprend une grille métallique recouverte d'une couche mince anti-reflet de TiO_2 qui donne un aspect bleuté aux cellules. Elles sont maintenues par un cadre isolant de $0,813 \text{ mm}$ d'épaisseur. Une fine couche de cuivre ($0,035 \text{ mm}$) a été déposée sur le cadre permettant de récupérer le signal électrique délivré par la face arrière des cellules photovoltaïques. Il joue également le rôle de collimateur en définissant une surface de détection des fragments de fission de $34 \times 34 \text{ mm}^2$.

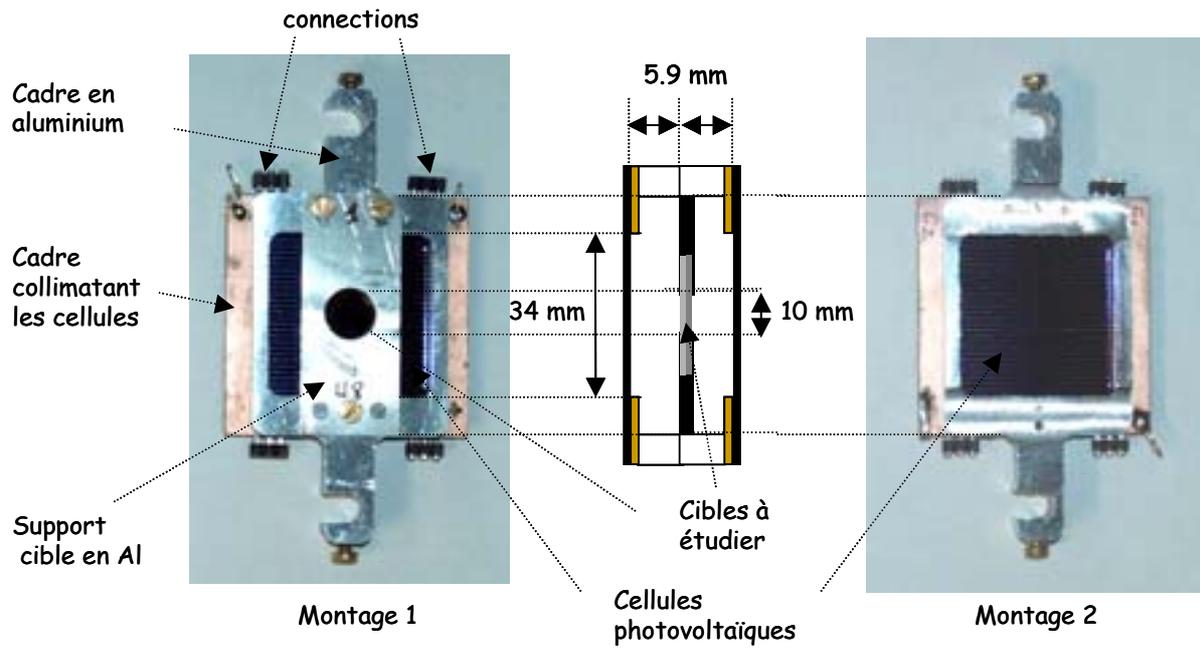


Figure 2.10 : Schéma et photographie représentant notre système de détection des fragments de fission.

L'efficacité géométrique de détection du dispositif est de 65 % dans 2π stéradians.

2.8 Détection des neutrons

2.8.1 Principe de détection des protons de recul

Tout d'abord, commençons à rappeler quelques relations fondamentales de la cinématique de la diffusion élastique (n, p). Considérons dans le système du laboratoire, la collision élastique d'un neutron d'énergie E_n avec un proton initialement au repos. Les lois de conservation de l'énergie cinétique et de la quantité de mouvement permettent de déterminer l'énergie cinétique du proton en fonction de son angle d'émission θ_p . Dans le cas non relativiste, on obtient la relation suivante :

$$E_p = \frac{4m_n m_p}{(m_n + m_p)^2} \cdot E_n \cdot \cos^2 \theta_p \quad (2.7)$$

Comme le neutron et le proton sont des particules de masse quasi identique ($\frac{m_n}{m_p} = 1,00138$), on peut donc réécrire l'équation (2.7) de la manière suivante :

$$E_p \approx E_n \cdot \cos^2 \theta_p \quad (2.8)$$

$$\text{avec } \theta_p + \theta_n \approx \frac{\pi}{2} \quad (2.9)$$

où θ_n est associé à la direction d'émission du neutron dans le système du laboratoire.

Le nombre de protons $N_p(E_p)dE_p$ ayant une énergie comprise entre E_p et E_p+dE_p correspond au nombre de protons diffusés dans un angle solide élémentaire $d\Omega = 2\pi \cdot \sin(\theta_p) \cdot d\theta_p$. Pour une collision, on a la relation suivante :

$$N(E_p) \cdot dE_p = \sigma_{np}(E_n, \theta_p) \cdot 2\pi \cdot \sin(\theta_p) \cdot d\theta_p \quad (2.10)$$

Le terme $\sigma_{np}(E_n, \theta_p)$ représente la section efficace différentielle de la diffusion (n, p) (unité : mb/sr) ou la distribution angulaire des protons diffusés dans le système du laboratoire. Elle dépend de l'énergie E_n du neutron incident et de l'angle d'émission θ_p du proton diffusé. Dans la littérature, cette section efficace est exprimée le plus souvent à partir de la distribution angulaire des neutrons diffusés dans le système du centre de masse ($\bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n)$). Le passage du centre de masse au laboratoire permet d'exprimer cette distribution angulaire de la manière suivante :

$$\sigma_{np}(E_n, \theta_p) = 4 \cdot \bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n) \cdot \cos(\theta_p) \quad (2.11)$$

$$\text{Sachant que } \bar{\theta}_n = \pi - 2 \cdot \theta_p \quad (2.12)$$

La distribution angulaire dans le centre de masse des neutrons diffusés ($\bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n)$) peut être ensuite paramétrée en une somme de polynômes de Legendre dont les coefficients $C_i(E_n)$ sont ajustés sur des données expérimentales. Son expression est donnée par la relation suivante :

$$\bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n) = \sum_{i=1}^4 C_i(E_n) \cdot P_i(\cos \bar{\theta}_n) \quad (2.13)$$

La figure (2.11) représente cette distribution angulaire dont les coefficients $C_i(E_n)$ sont extraits des résultats de J.C Hopkins et G. Breit [Ho71]. Elle est normalisée par rapport à sa valeur à 90° pour une énergie de neutron de 1, 3, 6 et 10 MeV. On notera que la figure (2.11) vérifie bien les caractéristiques énoncées au début du chapitre. A savoir que la section efficace différentielle de diffusion (n, p) dans le centre de masse présente bien une anisotropie qui augmente avec l'énergie des neutrons. Elle reste néanmoins relativement faible (< 4 %). Dans le domaine d'énergie de ce travail ($E_n < 6,5$ MeV), nous pouvons, en première approximation, la considérer comme une distribution isotrope dans le centre de masse. Cette approximation permet d'écrire :

$$\bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n) = \frac{\sigma_{np}(E_n)}{4\pi} \quad (2.14)$$

où $\sigma_{np}(E_n)$ correspond à la section efficace totale de la diffusion élastique (n, p) d'un neutron d'énergie E_n . On a vu que la formule phénoménologique de Gammel permet de la déterminer avec une bonne précision.

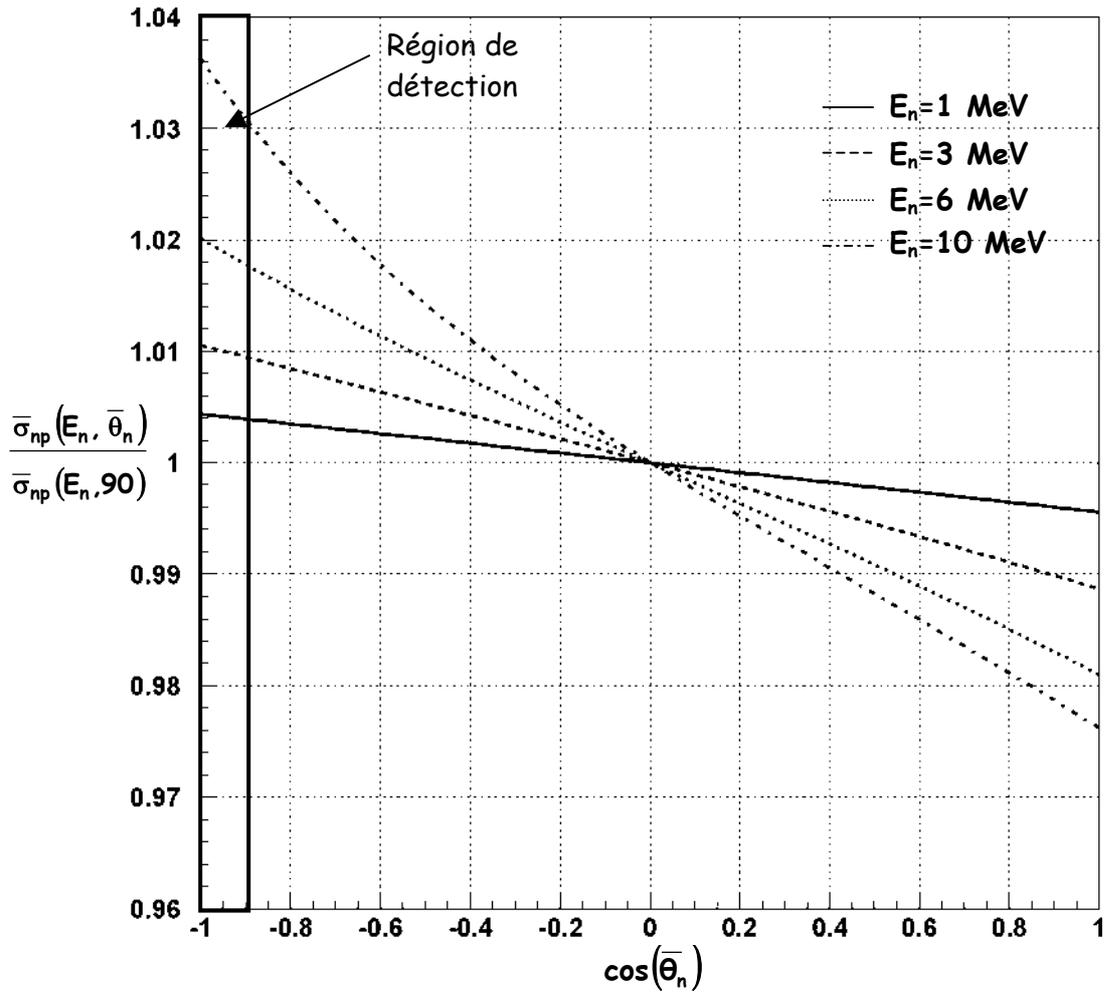


Figure 2.11 : Evolution de l'anisotropie $(\frac{\bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n)}{\bar{\sigma}_{np}(E_n, 90)})$ de la diffusion (n, p) exprimée dans le centre de masse en fonction $\bar{\theta}_n$ pour des neutrons d'énergie égale à 1, 3, 6 et 10 MeV.

La relation (2.11) devient alors :

$$\sigma_{np}(E_n, \theta_p) = \frac{\sigma_{np}(E_n)}{\pi} \cdot \cos(\theta_p) \quad (2.15)$$

D'après (2.10), le nombre $N_p(E_p)dE_p$ peut alors s'écrire :

$$N(E_p) \cdot dE_p = \sigma_{np}(E_n) \cdot 2 \cdot \sin(\theta_p) \cdot \cos(\theta_p) \cdot d\theta_p \quad (2.16)$$

Sachant que $dE_p = E_n \cdot 2 \cdot \sin(\theta_p) \cdot \cos(\theta_p) \cdot d\theta_p$, on a finalement :

$$N(E_p) \cdot dE_p = \frac{\sigma_{np}(E_n)}{E_n} \cdot dE_p \quad (2.17)$$

La relation (2.17) permet de retrouver une propriété connue de la diffusion des neutrons sur l'atome d'hydrogène. A savoir que pour une énergie de neutron inférieure à 10 MeV, le spectre en énergie des protons diffusés est uniforme et couvre un domaine en énergie allant de $E_p = 0$ jusqu'à $E_p^{\max} = E_n$ dans le système du laboratoire. Cette propriété est depuis longtemps exploitée dans les détecteurs de neutrons "4 π " tels que les scintillateurs ou compteurs proportionnels gazeux. A partir du nombre de protons diffusés dans le compteur, il est possible de déterminer le flux de neutrons arrivant sur celui-ci. En réalité, leur fonction de réponse n'est pas tout à fait rectangulaire à cause d'effets de bord entraînant une distorsion du spectre des protons détectés. Ces effets sont difficiles à calculer et conduisent à une incertitude sur l'efficacité absolue de détection (5 à 10%). Pour contourner ce type de problème, une méthode consiste à ne détecter que les protons les plus énergétiques (ceux diffusés vers l'avant). Cette technique n'est pas nouvelle puisque dès le début des années 50, on irradiait avec des neutrons un film plastique (polyéthylène, mylar) et un ou plusieurs détecteurs placés derrière lui (jonctions silicium, compteurs à gaz, scintillateurs de type NaI ou CsI) [Jo60]. Fonctionnant en coïncidences ou anti-coïncidences, ils détectaient sous un petit angle solide, les protons de recul sortant du film et issus de la diffusion élastique (n, p). Certes, l'utilisation de cette technique entraîne une perte d'efficacité, mais la résolution en énergie du détecteur de protons de recul est nettement améliorée. Le schéma de principe est présenté sur la figure (2.12).

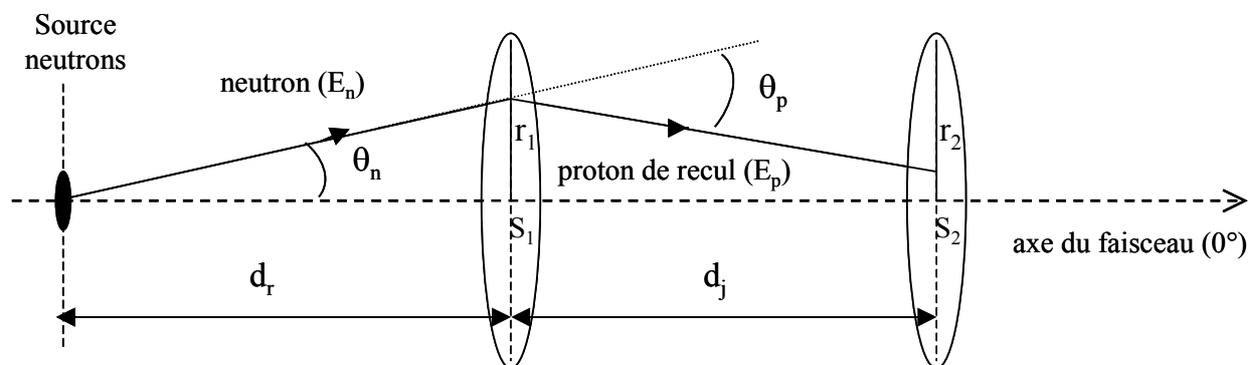


Figure 2.12 : principe de fonctionnement du détecteur de protons de recul.

Un flux de neutrons mono énergétiques ($\Phi_n^{\text{rad}}(E_n)$) arrive sur un film mince hydrogéné, appelé radiateur. Ce film de rayon r_1 , composé de N_H atomes d'hydrogène, est placé à une distance d_r de la source de neutrons. Une partie de ces neutrons interagissent par collisions élastiques avec les atomes d'hydrogène du film. Les protons de recul les plus énergétiques sont émis vers l'avant et sortent du film en ayant perdu une partie de leur énergie. Ils sont ensuite détectés par un détecteur de particules chargées du type jonction silicium de rayon r_2 et placé à une distance d_j suffisamment grande pour appliquer l'approximation aux petits angles.

La fonction de réponse d'un tel dispositif a fait l'objet de nombreuses études prenant en compte les effets géométriques et l'influence du radiateur ([Go71], [Go72], [Ha76]). Les résultats sont présentés sous forme analytique dont l'emploi n'est pas toujours immédiat. C'est pour cette raison que nous nous sommes orientés vers une approche du type simulation Monte Carlo. Cette simulation permet de déterminer la réponse du dispositif, c'est-à-dire l'efficacité et le spectre en énergie des protons de recul détectés. Cette simulation sera détaillée dans le prochain chapitre. Néanmoins, en premier lieu, une simulation simple du dispositif permet d'obtenir l'allure du spectre en énergie des protons de recul détectés en fonction des paramètres géométriques (r_1 , r_2 , d_j) fixés. Plusieurs hypothèses simplificatrices ont été effectuées :

- le flux de neutrons arrivant sur le radiateur est supposé uniforme (parallèle à l'axe du faisceau).
- Le radiateur est supposé infiniment mince. La perte d'énergie des protons dans le radiateur est donc négligeable.
- La distribution angulaire des protons est supposée isotrope dans le système du centre de masse.

Le principe de cette simulation est similaire à celle déjà utilisée pour déterminer l'activité d'une source émettrice α (voir Annexe B). Elle est lancée sur N événements et est arrêtée lorsque 10^5 protons sont détectés par la jonction silicium. Un événement correspond à une diffusion élastique (n , p) dans le radiateur. L'angle d'émission θ_p et l'énergie cinétique E_p du proton diffusé sont déterminés à partir des relations de cinématique établies ci-dessus. A chaque événement, les caractéristiques (θ_p , E_p) du proton diffusé sont enregistrées. La simulation permet de déterminer le spectre en énergie des protons arrivant sur la jonction pour une configuration géométrique donnée du dispositif. Une étude systématique a permis d'établir ce spectre pour différentes valeurs de la distance radiateur- jonction (d_j). La figure (2.13) présente les résultats obtenus pour un radiateur et une jonction de rayons égaux à $r_1=7,5$ mm et $r_2=12,5$ mm. L'énergie des neutrons a été fixée à $E_n= 2$ MeV. Elle montre que la fonction de réponse du dispositif varie avec la distance entre le radiateur et la jonction (d_j). Pour une valeur faible de d_j (détecteur silicium très proche du radiateur), cette fonction correspond à une distribution carrée similaire à celle donnée par la relation (2.17). Lorsque l'on éloigne le détecteur du radiateur, on sélectionne les protons émis préférentiellement vers l'avant. Etant les plus énergétiques ($E_p \approx E_n \cdot \cos^2 \theta_p$), la fonction de résolution du compteur s'améliore nettement.

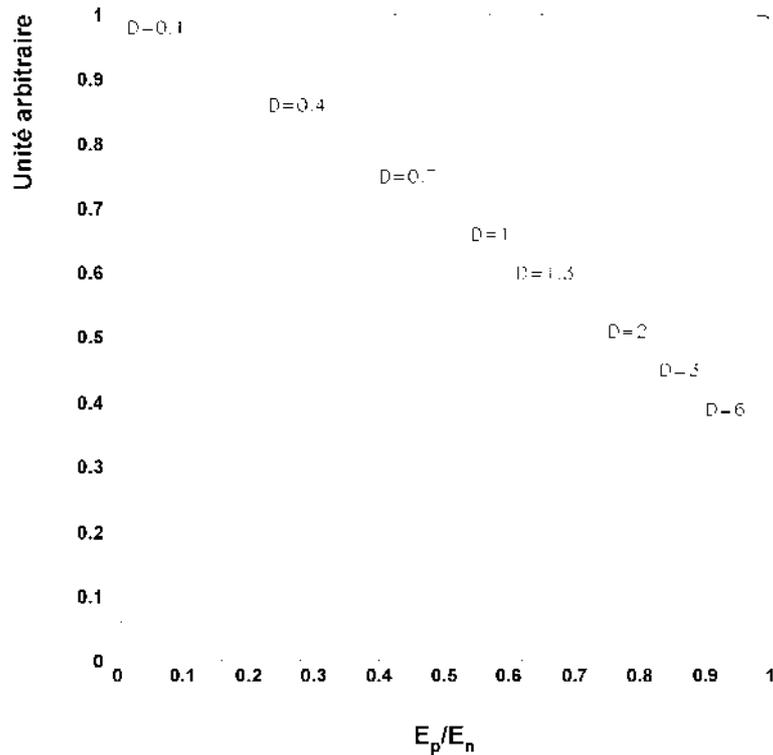


Figure 2.13 : Spectres en énergie des protons de recul normalisés pour différentes valeurs de $D=d_1/r_2$ avec $r_1=7,5$ mm et $r_2=12,5$ mm et pour des neutrons incidents d'énergie $E_n=2$ MeV.

Augmenter la distance entre le radiateur et le détecteur silicium permet de réduire considérablement la dispersion en énergie des protons de recul détectés. Le nombre total de protons détectés (N_p^{det}) est déterminé par intégration des spectres présentés ci-dessus. On a l'expression suivante :

$$N_p^{\text{det}} = \int_{\Omega} dt \int N_p(E_p) dE_p = \Phi_n^{\text{rad}}(E_n) \cdot N_H^{\text{at}} \cdot \sigma_{np}(E_n) \cdot \varepsilon_p^{\text{géom}} \cdot \Delta t \quad (2.18)$$

$$\text{Où} \quad \varepsilon_p^{\text{géom}} = \frac{\Omega}{2\pi} \quad (2.19)$$

Sachant que Ω représente l'angle solide sous tendu par l'ensemble radiateur- jonction silicium.

On rappelle que :

- $\Phi_n^{\text{rad}}(E_n)$ est le flux de neutrons ($s^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$) arrivant sur le radiateur. Dans le cas de l'approximation aux petits angles ($d_r \gg r_1$), ce flux est supposé uniforme.
- N_H^{at} correspond au nombre d'atomes d'hydrogène contenu dans le radiateur.
- $\sigma_{np}(E_n)$ est la section efficace totale de la diffusion (n, p) pour une énergie E_n des neutrons incidents. Ce terme est donné par la formule de Gammel.
- Δt caractérise la durée de la mesure.

Le choix de la géométrie nous a conduit à favoriser l'émission des protons vers l'avant. Les dimensions du radiateur ($r_1=7,5$ mm) et du détecteur de protons de recul ($r_2=12,5$ mm) sont petites devant la distance d_j les séparant (57,8 mm). Pour prendre en compte les effets d'anisotropie des neutrons incidents et des protons de recul détectés, l'approximation proposée par Hansen et al [Ha76], qui consiste à introduire un facteur correctif multiplicatif (ε_A) dans le terme d'efficacité du dispositif, conduit à l'expression de N_p^{det} suivante :

$$N_p^{\text{det}} = \Phi_n^{\text{rad}}(E_n) \cdot N_H^{\text{at}} \cdot \sigma_{np}(E_n) \cdot \varepsilon_p \cdot \Delta t \quad (2.20)$$

$$\text{avec } \varepsilon_p = \varepsilon_p^{\text{géom}} \times \varepsilon_A \quad (2.21)$$

Le terme ε_p représente l'efficacité réelle de notre détecteur de protons de recul. La détermination de ε_p passe par la simulation Monte Carlo de notre dispositif expérimental qui sera traitée plus en détails au chapitre 3.

Nous avons vu que la réponse (efficacité et résolution) du détecteur à protons de recul dépend de sa géométrie, mais également du type et de l'épaisseur du film utilisé.

2.8.2 Choix des films hydrogénés

Un radiateur de bonne qualité est tout d'abord un matériau qui doit être riche en hydrogène et dont le pouvoir d'arrêt est faible pour les protons. Sa composition chimique doit être également parfaitement connue. Ce matériau doit exister en films minces (quelques μm) pour que les protons de reculs puissent sortir du film en perdant le moins d'énergie possible. Les radiateurs rencontrés le plus souvent pour ce type de mesures sont des polymères plastiques (mylar $-(C_{10}H_8O_4)_n-$, polypropylène $-(C_3H_6)_n-$) et des huiles comme la tristéarine ($C_{57}H_{110}O_6$). Concernant la tristéarine, le problème majeur de ce matériau se pose à sa fabrication. Ces dépôts étant fabriqués par évaporation sous vide, il est difficile d'en contrôler l'épaisseur. En revanche, le polypropylène et le mylar existent directement sous forme de films minces. D'après les formules chimiques de ces deux matériaux, le polypropylène s'avère le matériau le plus intéressant compte tenu de son plus grand rapport H/C. Notre choix s'est donc porté sur des films minces en polypropylène.

Ce choix a été confirmé expérimentalement en bombardant de neutrons deux films : un de polypropylène de 10 μm d'épaisseur et un autre de mylar de 14 μm d'épaisseur. A partir de la distribution angulaire des protons de recul émis respectivement par ces deux films de 15 mm de diamètre, la figure (2.14) présente les spectres en énergie des protons de recul détectés dans les mêmes conditions expérimentales : les neutrons sont produits par la réaction $T(p, n)^3\text{He}$ et ont une énergie moyenne de 1960 keV, le radiateur est placé à 5,78 cm d'une jonction silicium de 300 μm d'épaisseur dont la face d'entrée est définie par un collimateur circulaire de 25 mm de diamètre.

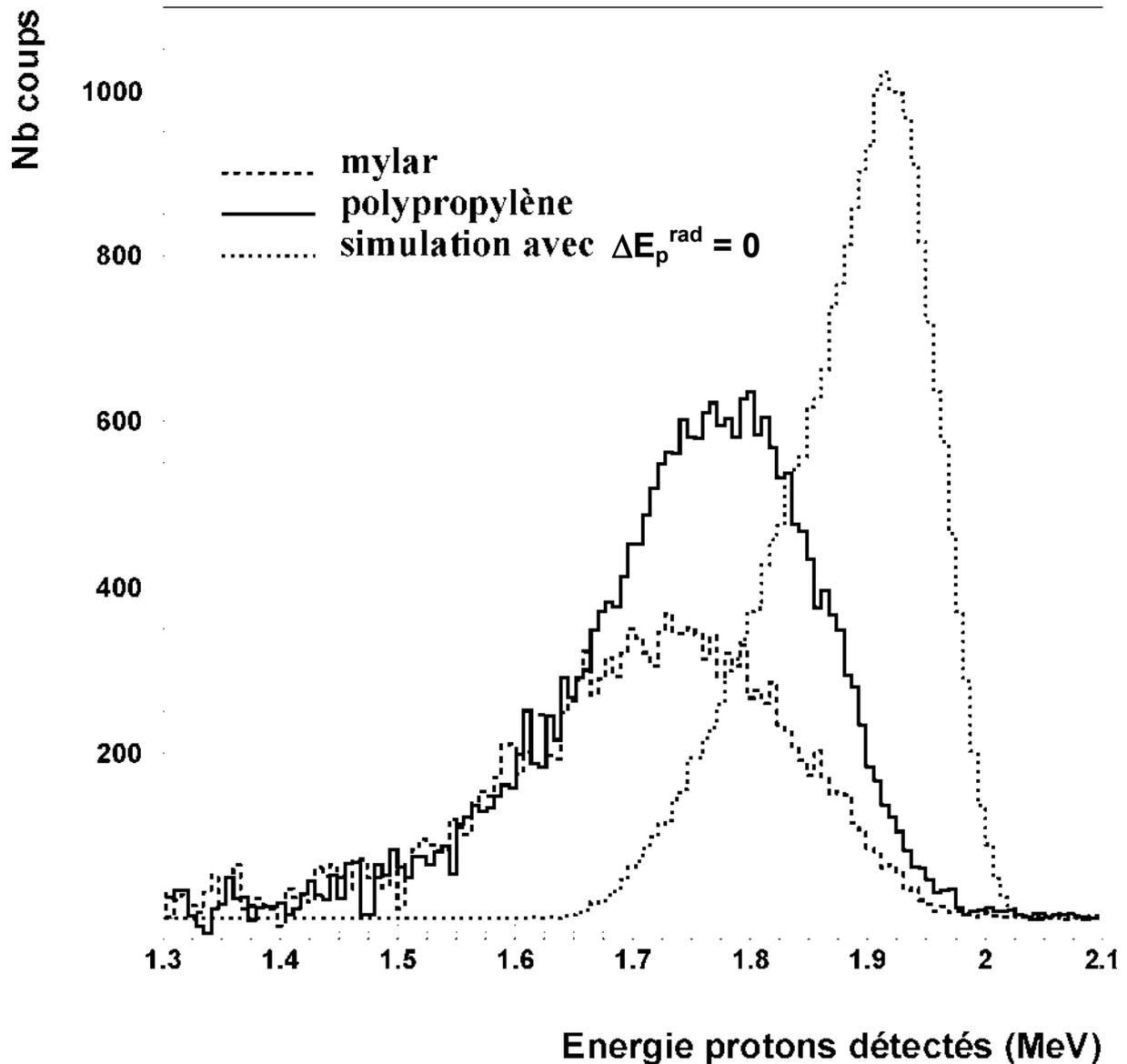


Figure 2.14 : Spectres des protons de recul détectés par notre dispositif pour des neutrons de 1,96 MeV et pour deux radiateurs de même diamètre (15 mm) : un en mylar ($C_{10}H_8O_4$) de 14 μm d'épaisseur et un autre en polypropylène (C_3H_6) de 10 μm d'épaisseur. Ils sont comparés au spectre calculé à partir d'une simulation Monte Carlo du dispositif de mesure dans le cas où l'épaisseur du radiateur est négligée ($\Delta E_p^{\text{rad}}=0$). Ce spectre est normalisé sur le nombre de protons détectés dans le cas du polypropylène.

Ces deux spectres mesurés sont comparés au spectre calculé (voir la simulation présentée dans le paragraphe précédent) en traits pointillés des protons de recul lorsque l'on néglige l'épaisseur du radiateur. Le spectre calculé illustre alors simplement les effets géométriques et l'ouverture angulaire de notre dispositif. On remarquera que l'épaisseur du radiateur se traduit par un décalage et un élargissement significatif de ces spectres.

La largeur moyenne des deux spectres mesurés est de 225 keV pour le polypropylène et de 280 keV pour le mylar. Elle est le résultat de plusieurs facteurs :

- L'acceptance angulaire du détecteur de protons (16°) correspond à une dispersion relative $(\frac{E_p(0^\circ) - E_p(\theta = 16^\circ)}{E_n} = 1 - \cos^2(\theta = 16^\circ))$ de 7,6 % par rapport à l'énergie des neutrons. Ce qui équivaut à une dispersion en énergie de 149 keV.
- La distribution de la perte d'énergie des protons dans le radiateur. Cette distribution peut être évaluée simplement à partir du parcours R des protons dans le mylar ou le polypropylène représenté par la relation suivante [Ry60] :

$$R = C \times E_p^{3/2} \quad (2.22)$$

Où C est caractéristique du matériau ralentisseur. En différenciant la relation ci-dessus, il vient :

$$\frac{\Delta R}{R} \approx \frac{3}{2} \frac{\Delta E_p}{E_p} \quad \text{ou encore :} \quad \frac{\Delta E_p}{E_p} \approx \frac{2}{3} \frac{\Delta R}{R} \quad (2.23)$$

Le parcours des protons de 1960 keV est de 77 μm dans le polypropylène et de 71 μm dans le mylar. Les dispersions relatives sont alors de 8,6 % (168 keV) pour le polypropylène et de 13 % pour le mylar (255 keV).

- La résolution en énergie du détecteur silicium correspondant à 50 keV.
- La distribution en énergie du faisceau incident de neutrons qui équivaut à 80 keV.

La somme quadratique des dispersions ci-dessus conduit à 250 keV pour le polypropylène et 310 keV pour le mylar. Ces dispersions sont en assez bon accord avec les largeurs expérimentales déduites de la figure (2.14). A cet élargissement, s'ajoute, dans le cas du mylar, une réduction de l'efficacité puisque le nombre de protons détectés est 1,5 fois plus faible que pour le polypropylène. Pour compenser cette perte d'efficacité, l'épaisseur du film de mylar doit être augmentée d'un facteur deux environ. Ceci conduit donc à une forte détérioration de la résolution globale du dispositif qui atteint alors 500 keV ou 25 % de l'énergie des neutrons incidents. Cette analyse justifie donc le choix du polypropylène comme source de protons de recul.

Le tableau (2.6) regroupe les différentes épaisseurs utilisées lors de nos mesures, la perte d'énergie (ΔE_p) des protons diffusés à 0° associée à la traversée de ces épaisseurs en fonction de l'énergie des neutrons arrivant sur le radiateur (E_n). Cette perte d'énergie est obtenue en utilisant les tables de pouvoir d'arrêt des ions dans la matière de Ziegler [Zi77].

E_n (MeV)	ΔE_p (MeV)			
	$\chi = 4 \mu\text{m}$	$\chi = 10 \mu\text{m}$	$\chi = 30 \mu\text{m}$	$\chi = 50 \mu\text{m}$
1	0,111	0,298	1	1
2	0,064	0,164	0,53	0,979
3	0,047	0,118	0,366	0,634
4	0,037	0,094	0,287	0,488
6	0,027	0,068	0,205	0,345
8	0,021	0,054	0,162	0,271
10	0,018	0,045	0,135	0,225

Tableau 2.6 : Perte d'énergie ΔE_p pour des protons diffusés émis à 0° en fonction de l'épaisseur du film de polypropylène traversée (χ) et de leur énergie initiale égale à celle des neutrons incidents ($E_p = E_n \times \cos^2(\theta_p = 0^\circ)$).

Comme le montre ce tableau, l'épaisseur du radiateur doit être adaptée à l'énergie des protons que l'on veut détecter. Le choix de cette épaisseur conditionne l'efficacité et la résolution en énergie du détecteur à protons de recul. Nous avons choisi de limiter la perte d'énergie des protons de recul dans le radiateur à moins de 10 % de l'énergie des neutrons incidents. En conséquence, les épaisseurs de 4 et 10 μm sont utilisées pour des neutrons d'énergie inférieure à 3 MeV et les épaisseurs de 30 et 50 μm pour des neutrons d'énergie supérieure.

2.8.3 Caractérisation des épaisseurs des films utilisés

L'épaisseur des films de polypropylène utilisés a été déterminée par microscopie interférométrique. Cette méthode permet un examen topographique précis de la surface de chaque échantillon. Le principe de fonctionnement du microscope est schématisé sur la figure (2.15). Il consiste à créer des franges d'interférences issues de la recombinaison de deux faisceaux lumineux identiques. Un des faisceaux est réfléchi sur la surface de l'échantillon tandis que l'autre est réfléchi sur un miroir de référence. L'interférogramme (ensemble de bandes noires et blanches) est enregistré à l'aide d'un détecteur CCD.

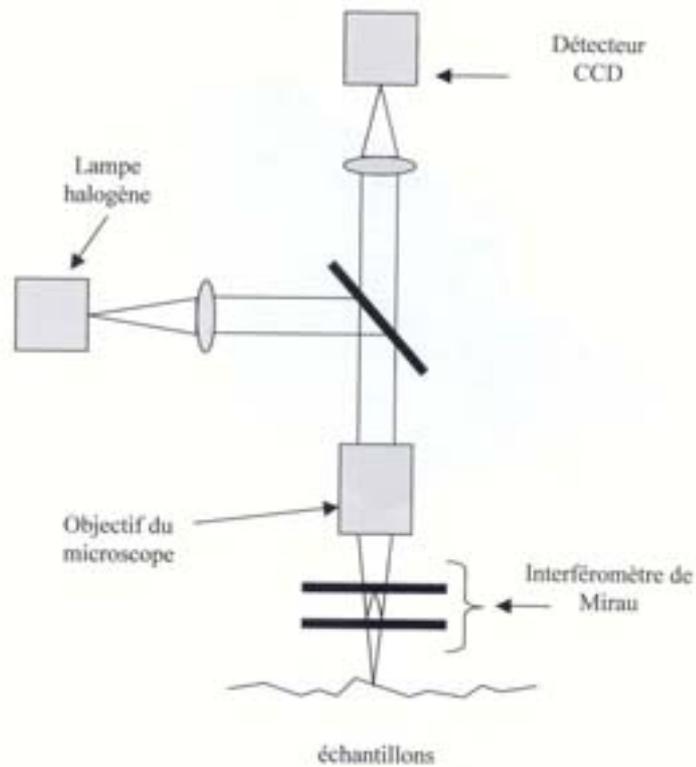


Figure 2.15 : principe de fonctionnement du microscope interférométrique.

Chaque film est déposé sur une lame de verre dont l'ensemble est placé sous vide pour obtenir un contact homogène. Cet ensemble est ensuite métallisé pour le rendre totalement réfléchissant. A partir d'un balayage vertical, la surface de l'ensemble {plaque+film} est reconstruite. La figure (2.16) montre le profil en trois dimensions de la surface de l'ensemble plaque de verre et film de 4 μm .

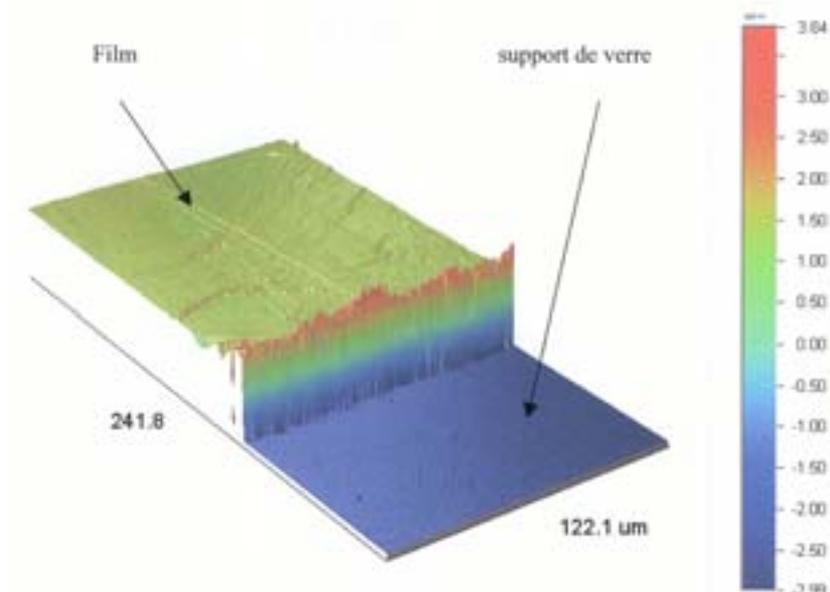


Figure 2.16 : Reconstruction en trois dimensions de la surface {plaque+film de 4 μm } balayée par le microscope.

L'épaisseur de chaque film est déterminée à partir d'un histogramme en amplitude de tous les points de la figure (2.16). La figure (2.17) présente l'histogramme pour le film de 4 μm .

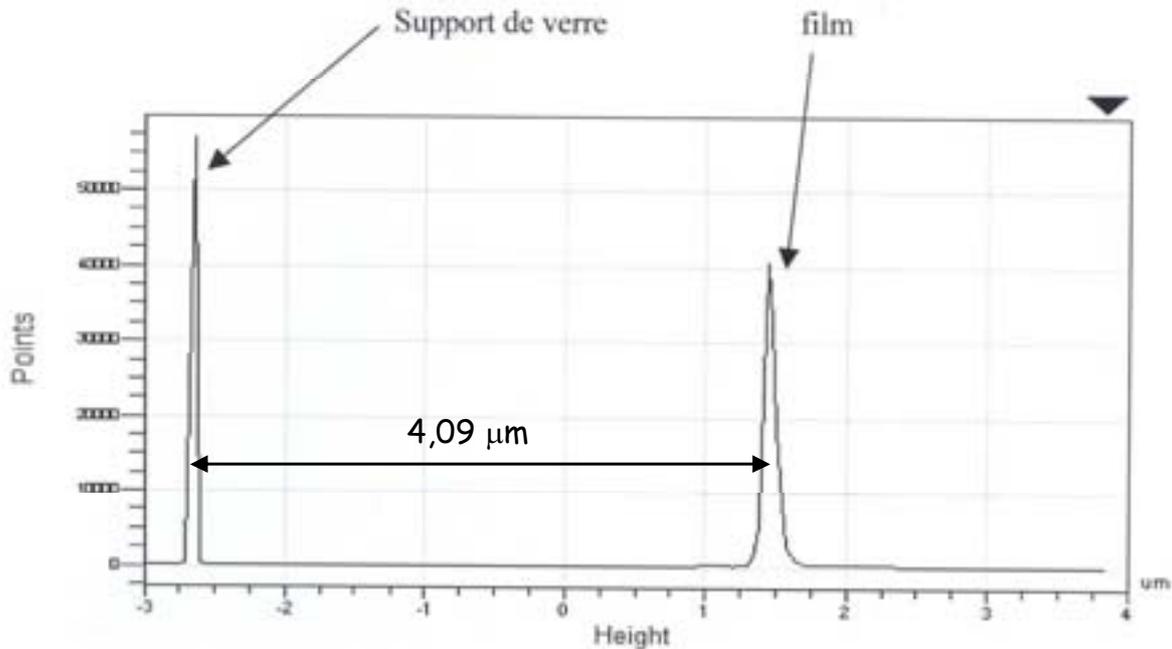


Figure 2.17 : histogramme de hauteur pour l'ensemble {plaque+film de 4 μm }.

Les résultats sont présentés dans le tableau (2.7) en comparaison avec ceux obtenus par micro pesée. L'incertitude des épaisseurs mesurées dépend de celle associée à l'épaisseur de l'échantillon en verre ($10,222 \pm 0,135 \mu\text{m}$) permettant l'étalonnage du microscope. L'erreur relative sur chaque épaisseur correspond donc à 1,3 %.

Épaisseur donnée par le constructeur (μm)	Épaisseur mesurée par interférométrie (μm)	Épaisseur déterminée par micro pesée (μm) ^(b)
4	$4,09 \pm 0,05$	$4,12 \pm 0,12$
10	$10,2 \pm 0,13$	$9,83 \pm 0,29$
30 ^(a)	$30,6 \pm 0,40$	$29,57 \pm 0,89$
50 ^(a)	$51 \pm 0,66$	$49,26 \pm 1,48$

Tableau 2.7 : Caractérisation de l'épaisseur des films de polypropylène utilisés.

(a) : ces épaisseurs sont obtenues par empilements successifs de feuilles de 10 μm .

(b) : l'incertitude relative associée à la micro pesée est de 3 %.

Les deux méthodes de mesures sont en bon accord. Les écarts ne dépassent pas 3,5 %. La méthode par interférométrie est, néanmoins la technique de caractérisation la plus précise.

2.8.4 Description du détecteur de protons de recul

Notre choix s'est porté sur des jonctions silicium pour leur efficacité, leur résolution en énergie ($\approx 1\%$) et leur souplesse d'utilisation. Néanmoins, elles peuvent être la source d'un bruit de fond non négligeable dû à l'interaction des neutrons avec le matériau de base (silicium) les constituant. Comme nous l'avons déjà précisé, nous avons cherché à minimiser la quantité de matière dans la réalisation de notre dispositif pour le rendre le plus transparent possible aux neutrons. Les réactions (n, p) et (n, α) susceptibles de nous gêner sont rassemblées dans le tableau (2.8). Elles ont pour origine les deux isotopes du silicium (^{28}Si et ^{29}Si), l'aluminium (constituant la chambre à réaction et les contacts des détecteurs silicium) et le tantale dont est constitué le support annulaire du radiateur et le collimateur de la face d'entrée de la jonction silicium. On notera que la plupart de ces réactions sont endoénergétiques et présentent des sections efficaces de réaction très faible dans le domaine d'énergie des neutrons que nous avons utilisés.

Matériau	(n, α) (Q et $\sigma_R(E_n)$)	(n, p) (Q et $\sigma_R(E_n)$)
^{27}Al	Q = -3,132 MeV $\sigma_R(4 \text{ MeV}) = 8,35 \cdot 10^{-13} \text{ b}$	Q = -1,828 MeV $\sigma_R(3 \text{ MeV}) = 1 \text{ mb}$
^{181}Ta	Q = 7,405 MeV $\sigma_R(2 \text{ MeV}) = 2,273 \cdot 10^{-9} \text{ b}$	Q = -0,240 MeV $\sigma_R(2 \text{ MeV}) = 5,35 \cdot 10^{-13} \text{ b}$
^{28}Si	Q = -2,653 MeV $\sigma_R(3 \text{ MeV}) = 8,28 \cdot 10^{-5} \text{ b}$	Q = -3,86 MeV $\sigma_R(4 \text{ MeV}) = 5,98 \cdot 10^{-5} \text{ b}$
^{29}Si	Q = -0,035 MeV $\sigma_R(2 \text{ MeV}) = 4,13 \cdot 10^{-5} \text{ b}$	Q = -2,898 MeV $\sigma_R(4 \text{ MeV}) = 1,43 \text{ mb}$

Tableau 2.8 : Chaleurs et sections efficaces pour une énergie donnée des réactions (n, α) , (n, p) , (n, d) avec les principaux matériaux composant le dispositif expérimental.

Les sections efficaces de ces réactions sont représentées sur les figures (2.18) et (2.19) en fonction de l'énergie des neutrons.

Les seules réactions ouvertes sur l'ensemble de la gamme en énergie de nos mesures sont $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$ (Q = -35 keV) et $^{181}\text{Ta}(n, \alpha)^{178}\text{Lu}$ (Q = 7,405 MeV). Cette dernière peut être immédiatement éliminée car la section efficace de cette réaction est négligeable dans notre domaine d'énergie. Il ne reste plus que la réaction $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$. Elle va jouer un rôle important dans la détection des protons de recul venant du film de polypropylène (PP). En effet, les particules α produites ont une énergie voisine de celle des protons de recul détectés. Elles génèrent un bruit de fond qui est proportionnel à la section efficace de la réaction et à l'épaisseur de la jonction utilisée. Afin de réduire ce bruit, il est nécessaire de minimiser l'épaisseur de la jonction silicium utilisée. Néanmoins, cette épaisseur doit être suffisante pour arrêter les protons de recul les plus énergétiques. Il faut donc adapter l'épaisseur des jonctions silicium en fonction de l'énergie des neutrons.

Quelque soit cette énergie, le bruit de fond de cette réaction accompagne la détection des protons de recul. Pour éliminer sa contribution, une mesure de bruit de fond des jonctions silicium utilisées est effectuée régulièrement. Cette mesure correspond à la configuration du dispositif en position (Bf) décrite précédemment.

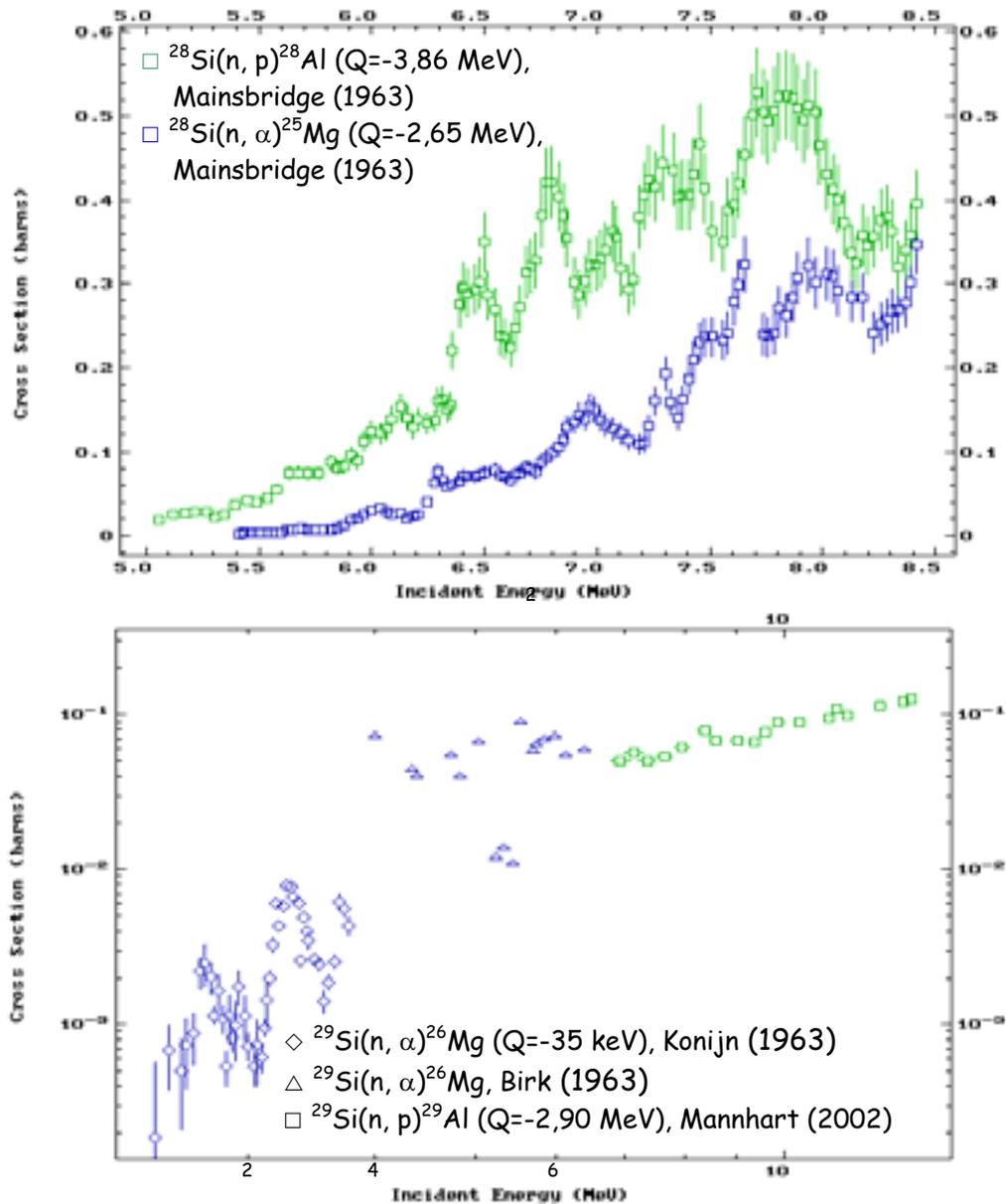


Figure 2.18 : Sections efficaces expérimentales des réactions (n, p) et (n, α) sur ^{28}Si [Ma63] et sur ^{29}Si ([Ko63], [Bi63] et [Ma02]) en fonction de l'énergie des neutrons.

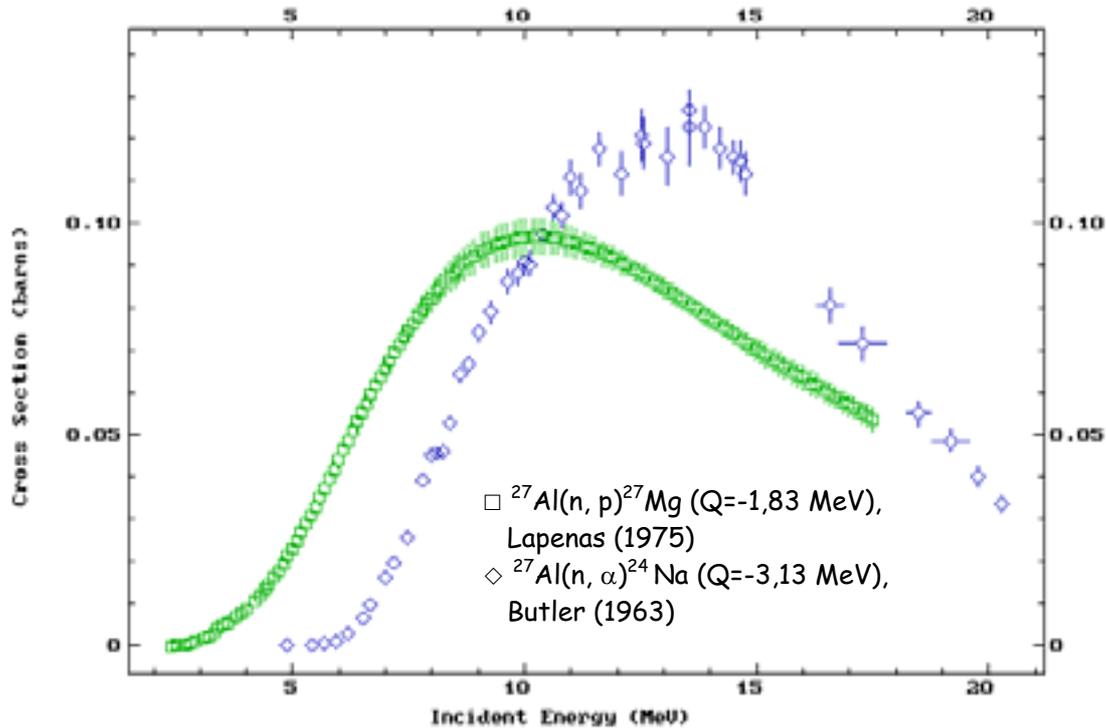


Figure 2.19 : Sections efficaces expérimentales des réactions $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ [La75] et $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ [Bu63] en fonction de l'énergie des neutrons.

En dessous de 2 MeV, la figure (2.18) montre que l'intensité de la réaction $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$ est faible. Une seule jonction silicium (50 μm) est utilisée pour la détection des protons de recul. En revanche, la section efficace de cette réaction augmente avec l'énergie des neutrons et atteint 100 milibarns à 4 MeV. A cette énergie, plusieurs réactions sont également ouvertes telles que $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$, $^{28, 29}\text{Si}(n, p)^{28, 29}\text{Al}$. Elles vont entraîner un bruit de fond important sur la jonction silicium. Pour réduire la contribution de ces réactions nous avons utilisé deux jonctions silicium fonctionnant en télescope ΔE -E. Ce montage, comme nous le verrons par la suite, nous a permis d'identifier ces réactions parasites.

Principe de fonctionnement d'un télescope ΔE -E :

Les particules qui traversent le premier détecteur silicium, déposent une certaine quantité d'énergie ΔE qui est proportionnelle au carré de leur charge z , à leur masse m et inversement proportionnelle à leur énergie E_i . Puis elles sont arrêtées dans le second détecteur silicium où elles déposent toute leur énergie résiduelle E . Il est possible de démontrer [Kn79] que le produit $E \times \Delta E$ est proportionnel à $m \cdot z^2$. La somme $(E + \Delta E)$ correspond à l'énergie incidente E_i de la particule identifiée. Si on représente graphiquement ΔE en fonction de E , on observe des hyperboles ordonnées selon les z croissants dont chacune correspond à un type de particules. Un télescope ΔE -E permet donc une identification des particules détectées.

Pour des neutrons d'énergie inférieure à 2 MeV, une jonction silicium de $50\ \mu\text{m}$ (ΔE) est montée sur un cadre rectangulaire en céramique de $32 \times 36\ \text{mm}^2$. Cette céramique est utilisée pour éviter d'introduire de nouvelles matières hydrogénées qui sont sources de bruit de fond. La surface de détection est définie par un collimateur en Ta de $0,3\ \text{mm}$ d'épaisseur et de $15\ \text{mm}$ de diamètre (r_2).

Pour des neutrons d'énergie supérieure à 4 MeV, on associe à la jonction Si précédente, une deuxième jonction Si plus épaisse (150 ou $600\ \mu\text{m}$) non collimatée. Ces jonctions sont montées sur des supports d'aluminium. Les deux jonctions fonctionnent en coïncidences et forment un télescope de type ΔE -E.

La figure (2.20) présente une photographie de notre détecteur de neutrons utilisé dans ce cas. Notre télescope est composé d'un film de polypropylène de 30 microns et des deux jonctions circulaires en silicium à barrière de surface décrites ci-dessus. La distance séparant le film et la jonction est de l'ordre de $75\ \text{mm}$ (d_j). Notre dispositif de détection vérifie bien l'approximation aux petits angles ($d_j \gg r_2$). Le nombre de protons de recul détectés sera donné par la relation (2.20). L'efficacité de détection des neutrons (efficacité absolue de notre dispositif) est déterminé à partir du rapport entre le nombre de protons détectés (N_p^{det}) et le nombre de neutrons ($\Phi_n^{\text{rad}} \times \Delta t \times \pi \cdot r_1^2$) arrivant sur le radiateur de rayon r_1 pendant une durée Δt . Pour cette configuration cette efficacité est de $10^{-3}\ \%$ environ.

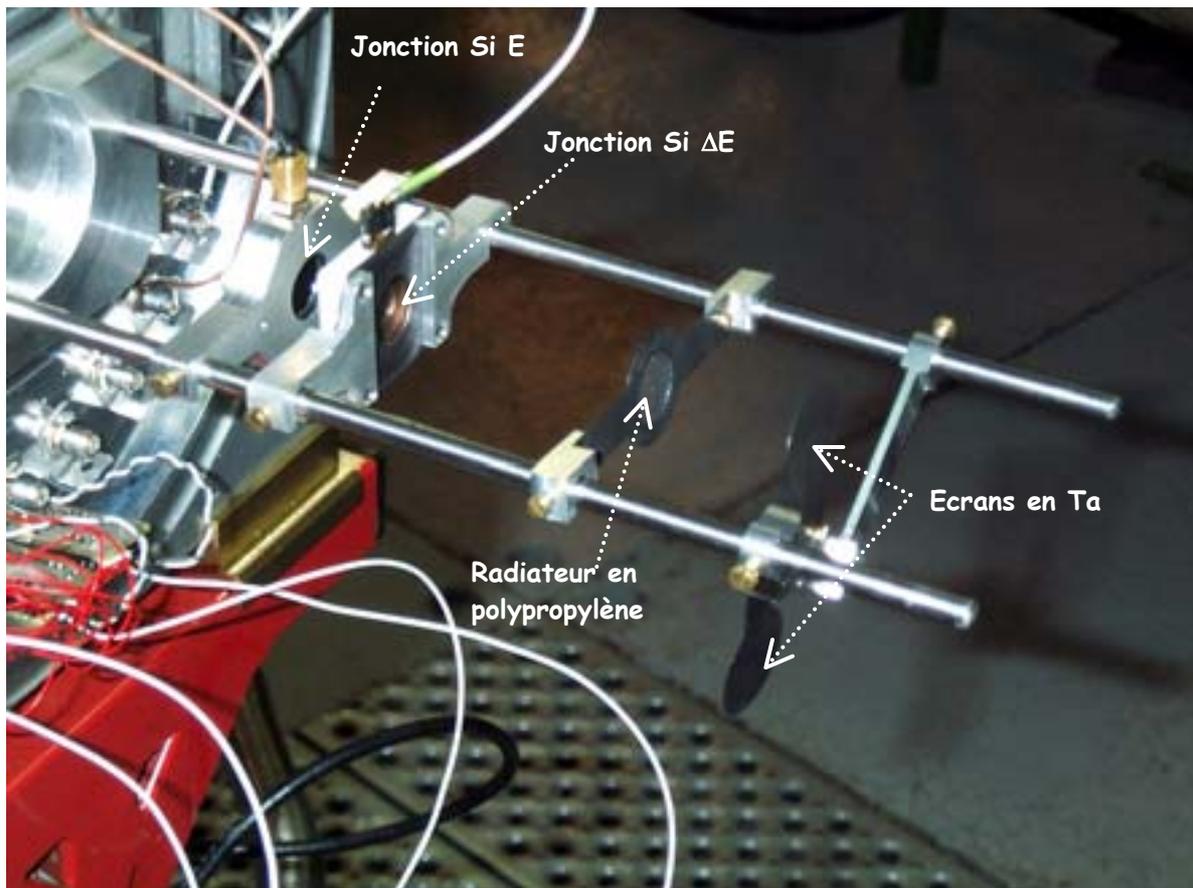


Figure 2.20 : Photographie du télescope de protons de recul

2.9 Electronique et acquisition

Les signaux issus des quatre cellules photovoltaïques et des jonctions silicium ΔE et E sont, tout d'abord, pré amplifiés puis sont traités par une électronique au standard NIM. Le signal de chaque cellule est envoyé dans un module amplificateur utilisé lors des expériences avec le détecteur SAPHIR. Ce module délivre un signal "énergie" et un signal "temps" pour chaque cellule. Au total, on a donc quatre voies énergies et quatre voies temps pour les cellules photovoltaïques. Les deux signaux provenant des deux jonctions silicium E et ΔE sont amplifiés linéairement et sont dupliqués pour obtenir deux voies énergie E et ΔE et deux voies temps. Les voies temps sont envoyées dans un discriminateur à fraction constante (C.F.D). Il permet de fixer le seuil de déclenchement de chaque cellule et de chaque jonction.

L'acquisition ne se déclenche que si l'on observe une coïncidence entre la jonction E et ΔE ou une impulsion sur une des cellules. Les voies énergies sont codées sur 4096 canaux (codeur 4 K de 16 voies de type Siléna).

Le système d'acquisition contrôle en continu :

- Le spectre en amplitude des fragments de fission détectés par chaque cellule photovoltaïque.
- Les spectres en amplitude des particules détectées en coïncidences par les jonctions ΔE et E .
- La cartographie ΔE - E .

Ces données sont stockées sur disque. La stabilité des détecteurs silicium et le temps mort du système d'acquisition sont contrôlés à partir d'un générateur d'impulsions physiques. Le temps mort de l'acquisition n'a jamais dépassé 5 %.

Le signal délivré par le moniteur neutron (compteur proportionnel à ^3He), ainsi que les 6 voies énergies sont récupérés sur une échelle de comptage.

La figure (2.21) résume schématiquement l'électronique et le système d'acquisition de données de notre dispositif expérimental pour des neutrons d'énergie supérieure à 4 MeV.

Dans le cas d'une seule jonction silicium, l'acquisition se déclenche lorsqu' au moins une des cellules ou la jonction ΔE est touchée. Le schéma électronique se résume à celui de la figure (2.21) en enlevant la partie concernant la jonction E .

Le spectre en amplitude des particules détectées par chaque jonction silicium est ensuite calibré en énergie.

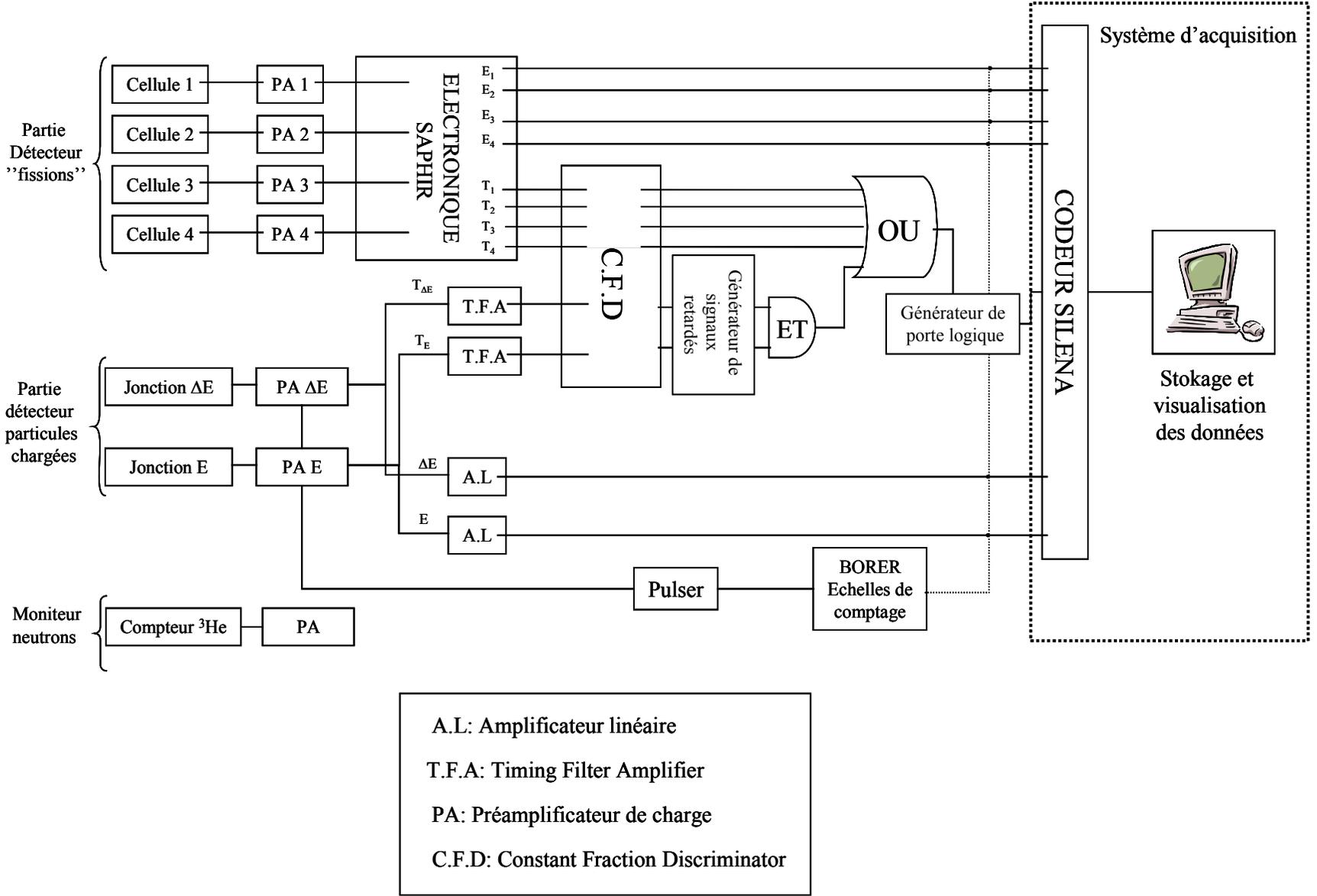


Figure 2.21 : Schéma global de l'électronique et de l'acquisition de notre dispositif expérimental

2.10 Etalonnage en énergie des jonctions silicium

Une bonne connaissance de l'énergie moyenne des neutrons arrivant sur le radiateur dépend de la détermination précise de l'énergie des protons de recul détectés. Il est donc important de bien calibrer en énergie les jonctions silicium utilisées. Cet étalonnage consiste à placer devant ces jonctions une source étalon émettrice de particules α en dehors des prises de données. Cette source étalon certifiée a été fabriquée en septembre 2001 par le laboratoire L.E.A (Laboratoire Etalons d'Activité) de Framatome. Elle est composée d'un disque circulaire d'acier inoxydable de 25 mm de diamètre et 0,5 mm d'épaisseur sur lequel est déposé un mélange de trois actifs de 8 mm de diamètre. Constitué d'un mélange de trois radionucléides émetteurs α (^{239}Pu , ^{241}Am et ^{244}Cm), le dépôt possède une activité nominale de 468 Bq. Le tableau (2.9) dresse les caractéristiques de la source étalon (proportion et durée de demi-vie des radionucléides la composant) et des particules α émises (énergie E_{α} , rapport d'embranchement I_{α}).

Radionucléides	Proportion (%)	Demi-vie $t_{1/2}$ (ans)	E_{α}^a (MeV)	I_{α}^b (%)	\bar{E}_{α}^c (MeV)
$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}^d$	35	$2,411 \cdot 10^4$	5,15659 5,1443 5,1058	73,3 15,1 11,5	$5,149 \pm 0,030$
$^{241}\text{Am} + ^{238}\text{Pu}^d$	34	432,2	5,5445 5,48556 5,4428	0,36 85,1 13,3	$5,480 \pm 0,020$
^{244}Cm	31	18,10	5,80477 5,76216	76,4 23,6	$5,795 \pm 0,055$

Tableau 2.9 : Caractéristiques de la source étalon α :

a : énergie des α donnée par A. Rytz [Ry91].

b : rapport d'embranchement moyenné sur les valeurs répertoriées dans la littérature (Table of isotopes vol II, R.B. Firestone).

$$c : \bar{E}_{\alpha} = \frac{\sum_i I_{\alpha_i} \cdot E_{\alpha_i}}{\sum_i I_{\alpha_i}}$$

d : présence de ^{240}Pu et ^{238}Pu en faible quantité, non quantifiable.

Un exemple de spectre d'étalonnage en énergie est représenté sur la figure (2.22). On identifie le numéro de canal du centroïde de chaque pic. Connaissant les énergies des α émis par chaque noyau, on détermine par régression linéaire une droite d'étalonnage d'équation du type:

$$E \text{ (keV)} = a \text{ (keV/Canal)} \times \text{Canal} + b \text{ (keV)} \quad (2.24)$$

Etalonnage en énergie d'une jonction silicium

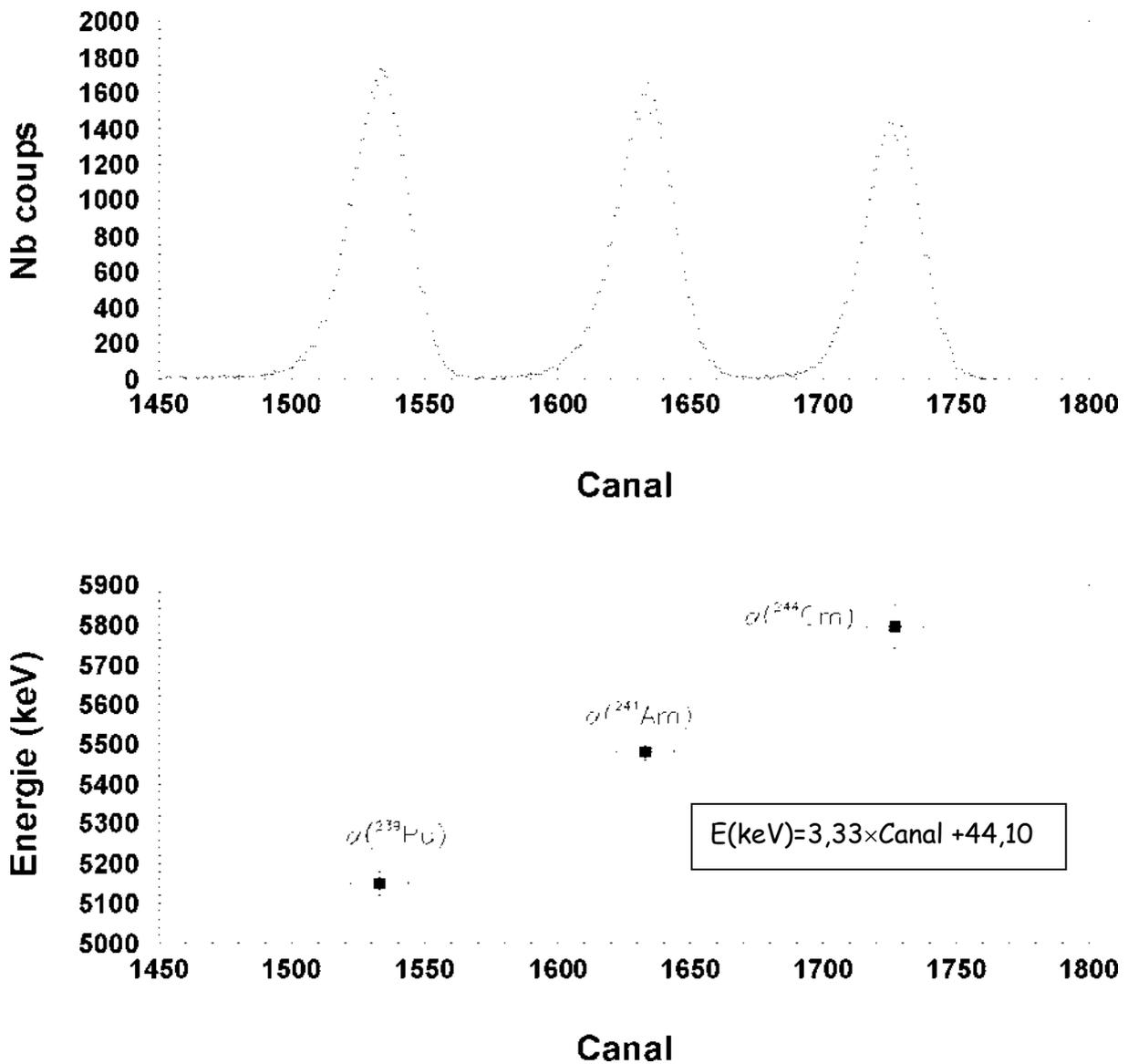


Figure 2.22 : Exemple d'un spectre de particules α de la source étalon détectées par la jonction silicium ΔE et droite d'étalonnage en énergie correspondante.

Les jonctions se dégradent au cours des mesures dues aux interactions des neutrons avec le silicium. Il est donc nécessaire d'effectuer régulièrement de nouveaux étalonnages en énergie des jonctions. A chaque énergie de neutron, on effectue généralement deux étalonnages, un en début et un à la fin des mesures.

Chapitre 3 Présentation et analyse des données

3.1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, la section efficace de fission induite par neutrons d'un noyau cible X est fonction du nombre de fragments de fission N_f émis par la cible, du nombre d'atomes $N_{\text{at}}^{\text{cible}}$ contenus dans la cible et du flux de neutrons arrivant sur celle-ci (équation 2.1). Les fragments sont détectés par un montage composé de deux cellules photovoltaïques de grande efficacité ε_f ($\approx 0,65$). Le flux de neutrons est déterminé grâce à la détection des protons de recul issus de la diffusion (n, p) dans un film de polypropylène. Ces protons sont détectés avec une faible efficacité ε_p ($\approx 0,01$). Les données enregistrées sont les suivantes :

- Les spectres en amplitude des fragments de fission détectés par chaque cellule photovoltaïque.
- Les spectres en énergie des particules chargées détectées par les deux jonctions silicium ($\Delta E, E$) (E dans le cas où les neutrons ont une énergie inférieure à 4 MeV).

3.2 Détection des fragments de fission

3.2.1 Spectres en amplitude des fragments de fission détectés

La figure (3.1) montre un exemple des spectres en amplitude des fragments de fission détectés par les cellules photovoltaïques pour les quatre noyaux ($^{233/235/238}\text{U}$ et ^{232}Th).

Ces spectres à « deux bosses » sont caractéristiques de la fission asymétrique de ces noyaux (la « bosse » la plus étroite et à plus haute énergie correspond au fragment détecté le plus léger). L'intégration de ces spectres permet d'obtenir le nombre de fragments de fission détectés N_f^{det} dans l'angle solide Ω_f . Connaissant l'efficacité ε_f de notre système de détection, il est possible finalement de déterminer le nombre total de fissions émis dans tout l'espace. L'incertitude sur cette valeur va dépendre du nombre de fragments détectés (N_f^{det}) et de l'incertitude associée à la détermination de l'efficacité ε_f .

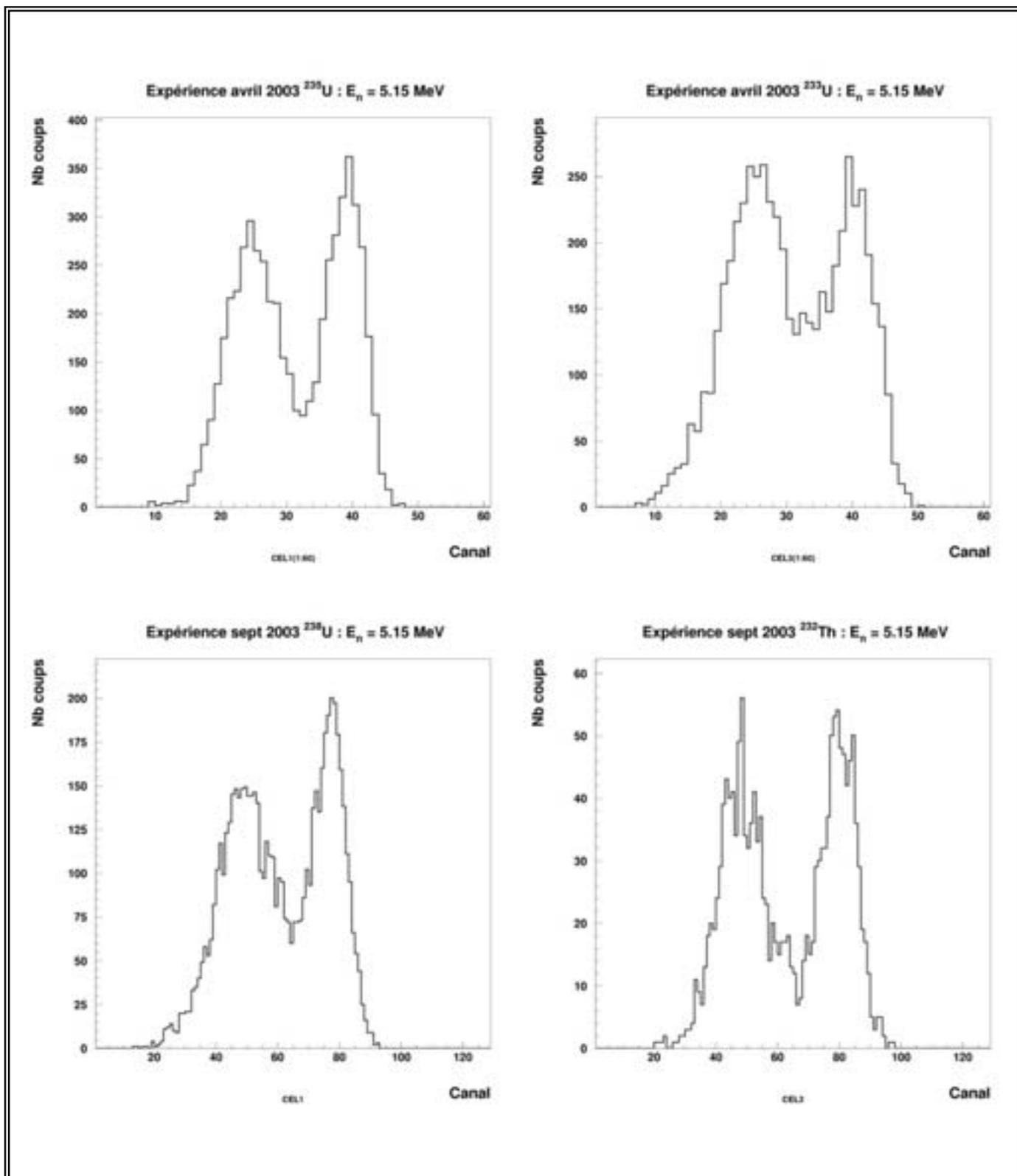


Figure 3.1 : Spectres en amplitude des fragments détectés par chaque cellule photovoltaïque issus de la fission des noyaux $^{233/235/238}\text{U}$ et ^{232}Th induite par des neutrons d'énergie moyenne de 5,15 MeV.

3.2.2 Efficacité de détection ε_f

Notre système, composé de deux cellules photovoltaïques, ne détecte qu'un seul des deux fragments émis lors du processus de fission. Son efficacité de détection ε_f a pour expression:

$$\varepsilon_f = \frac{\Omega_f \cdot \varepsilon_i}{2\pi} \cdot f_a \quad (3.1)$$

→ Ω_f est l'angle solide géométrique formé par la cible de thorium ou d'uranium et le montage composé des deux cellules photovoltaïques.

→ ε_i est l'efficacité intrinsèque des cellules. Elle est légèrement inférieure à 1 car la présence d'une grille métallique à la surface de chaque cellule constitue une zone morte (les fragments touchant la grille ne sont pas détectés). La mesure de ε_i sera exposée à la fin du paragraphe.

→ f_a est un facteur correctif qui tient compte des effets cinématiques et de la distribution angulaires des fragments de fission dont l'émission n'est pas nécessairement isotrope.

L'efficacité globale (ε_f) a été déterminée à partir d'une simulation de type Monte Carlo qui tient compte de la configuration géométrique de notre montage. Une première simulation Monte Carlo basée sur une émission isotrope des fragments nous a permis de déterminer l'angle solide de détection associé aux dimensions finies de la cible et des cellules photovoltaïques. L'hypothèse d'une émission isotrope est complètement justifiée pour la fission induite par neutrons thermiques. Elle ne l'est pas pour les énergies de neutron considérées dans ce travail. De nombreux résultats expérimentaux ont permis de montrer que dans le système du centre de masse, les fragments de fission sont émis préférentiellement à 0 ° et 180 ° de la direction de recul du noyau fissionnant (axe de fission). Cette propriété est souvent exprimée en fonction du rapport des sections efficaces différentielle à 0 ° et 90 ° de l'axe de fission, noté $W(0^\circ)/W(90^\circ)$ et appelé rapport d'anisotropie. Cette quantité est représentée sur la figure (3.2) pour les quatre noyaux étudiés : $^{233/235/238}\text{U}$ et ^{232}Th . Les valeurs présentées pour les noyaux $^{233/235/238}\text{U}$ proviennent d'ajustements effectués sur une compilation de données expérimentales publiés par R. L. Henkel et al [He56]. Pour le ^{232}Th , les données sont extraites des résultats expérimentaux de J. E. Simmons et al [Si60] à Los Alamos. Il s'agit de travaux très anciens (1950-1960) qui ont été complétés par des mesures plus récentes [Ba77].

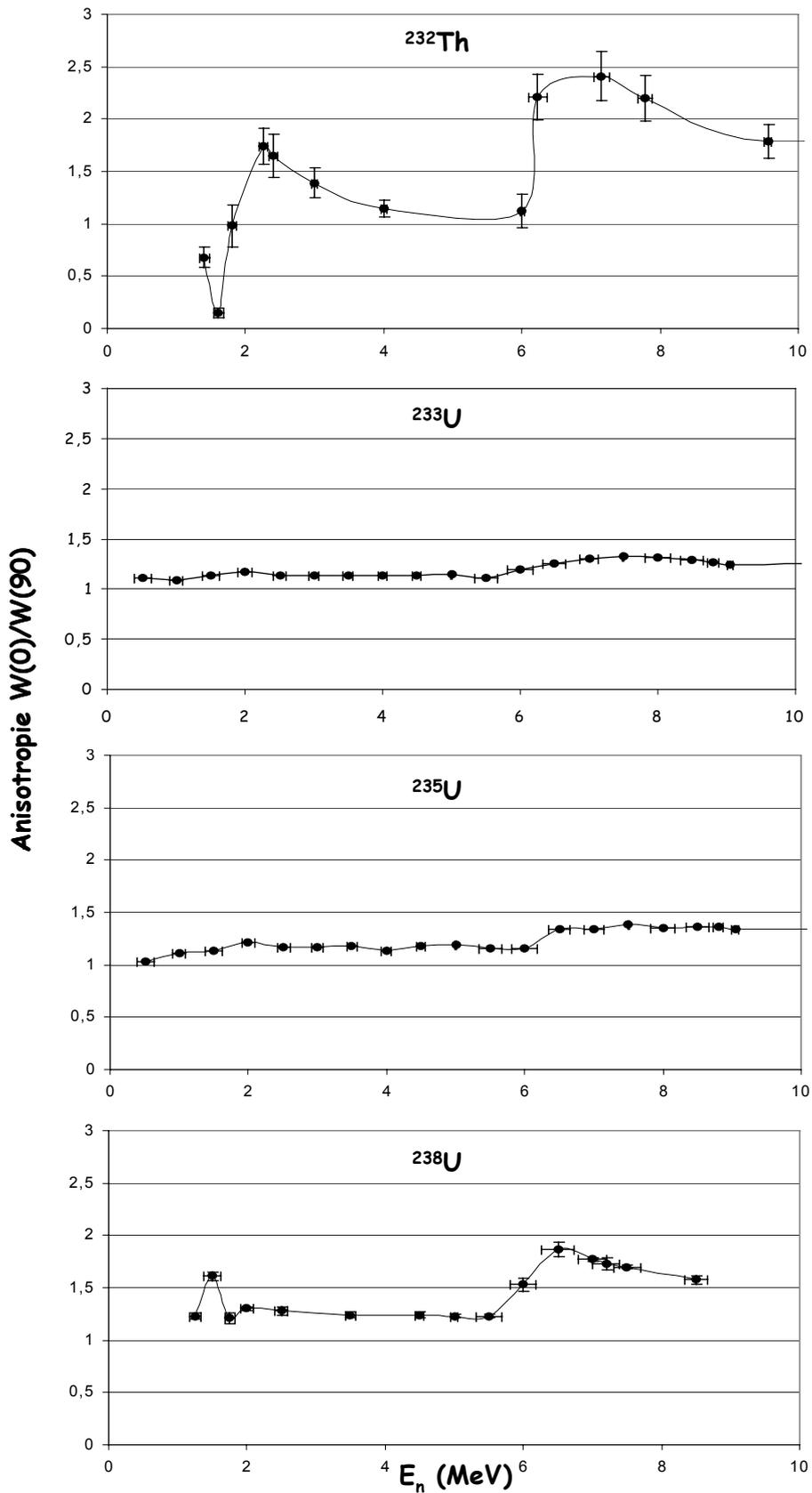


Figure 3.2 : $W(0)/W(90)$ en fonction de l'énergie neutron pour les noyaux d' $^{233}, ^{235}, ^{238} \text{U}$ et $^{232} \text{Th}$. Pour les noyaux d'uranium, les incertitudes correspondent aux déviations standard provenant des ajustements de polynômes de Legendre. Pour le $^{232} \text{Th}$, Elles sont associées aux erreurs expérimentales.

Ces distributions montrent des effets d'anisotropie pour ces noyaux plus ou moins prononcés selon l'énergie du neutron induisant la fission. Pour les 3 isotopes de l'uranium, cette anisotropie reste inférieure à 2 entre 1 et 10 MeV. En revanche un comportement différent est observé pour le ^{232}Th puisque pour des neutrons d'énergie inférieure à 2 MeV, les fragments sont émis préférentiellement à 90° de l'axe de fission. Au sommet de la résonance à 1,6 MeV, le rapport d'anisotropie est de l'ordre de 0,2. Au-delà de 2 MeV, l'émission des fragments est de nouveau favorisée à 0° . L'ouverture de la fission de seconde chance ($E_n \approx 6$ MeV) se traduit par une augmentation du rapport $W(0)/W(90)$ dont le maximum est atteint au voisinage de 7 MeV. Ces résultats ont été utilisés pour constituer une base de données de distribution angulaire.

Le facteur d'anisotropie f_a intervenant dans l'efficacité de notre montage photovoltaïque (ε_f) est calculé de la manière suivante :

La distribution angulaire des fragments intervenant dans la simulation est définie comme une somme de polynômes de Legendre ($\sum A_{2n} P_{2n}(\cos\theta)$) dont les coefficients A_{2n} sont ajustés sur les données de la base construite ci-dessus. Les masses moyennes et les énergies cinétiques moyennes des fragments lourds et légers sont extraites de la littérature [Va73]. Dans le laboratoire, les énergies cinétiques des fragments sont définies par la relation simple suivante [Mi64] :

$$E_i^{\text{LAB}} = \bar{E}_i^{\text{CM}} \cdot \left(1 + \bar{K}_i^2 + 2 \cdot \bar{K}_i \cdot \cos \bar{\theta}_i \right) \quad (3.2)$$

$$\text{où } \bar{K}_i = \frac{V}{v_i} = \sqrt{\frac{m_i}{M_f} \cdot \frac{E_{nc}}{\bar{E}_i^{\text{CM}}}} \quad (3.3) \quad \text{et } E_{nc} = \frac{m_n}{(m_n + M_f)} \cdot E_n \quad (3.4)$$

$\bar{\theta}_i$ représente l'angle d'émission dans le centre de masse du fragment i (lourd ou léger) de masse m_i par rapport à la direction du noyau fissionnant de masse M_f . E_{nc} et E_n sont les énergies du noyau composé et du neutron incident.

Dans le centre de masse les fragments sont émis à 180° : $\bar{\theta}_L + \bar{\theta}_l = 180^\circ$. E_n et E_{nc} sont respectivement les énergies cinétiques du neutron et du noyau composé.

La cinématique des fragments est alors fixée. A partir de la direction d'émission d'un neutron et de son point d'impact sur la cible, l'angle d'émission des fragments ($\bar{\theta}_L$ ou $\bar{\theta}_l$) est déterminé à partir de la distribution angulaire définie précédemment. 10^6 événements de fission ont été considérés pour déterminer le nombre de fragments de fission détectés par notre dispositif. Ce nombre est ensuite comparé au nombre de fragments détectés dans le cas d'une émission isotrope. Leur rapport permet de déterminer le facteur d'anisotropie f_a . Ces effets de distribution angulaire ont été étudiés sur l'ensemble des noyaux lourds considérés dans ce travail et à toutes les énergies de neutrons mesurées.

Nous présenterons, ici, le calcul du facteur d'anisotropie (f_a) pour la fission du ^{232}Th dont l'anisotropie d'émission des fragments est la plus marquée quelque soit l'énergie de neutron.

Trois cas ont été considérés :

- une émission vers l'avant des fragments : $W(0)/W(90)= 2,5$ pour $E_n=7,1$ MeV.
- une émission légèrement vers l'avant des fragments : $W(0)/W(90)= 1,2$ pour $E_n=4$ MeV.
- une émission dirigée vers 90 : $W(0)/W(90)=0,2$ pour $E_n =1,6$ MeV.

La figure (3.3) montre l'évolution du facteur d'anisotropie (f_a) en fonction de la distance cible- détecteur pour les trois cas ci- dessus.

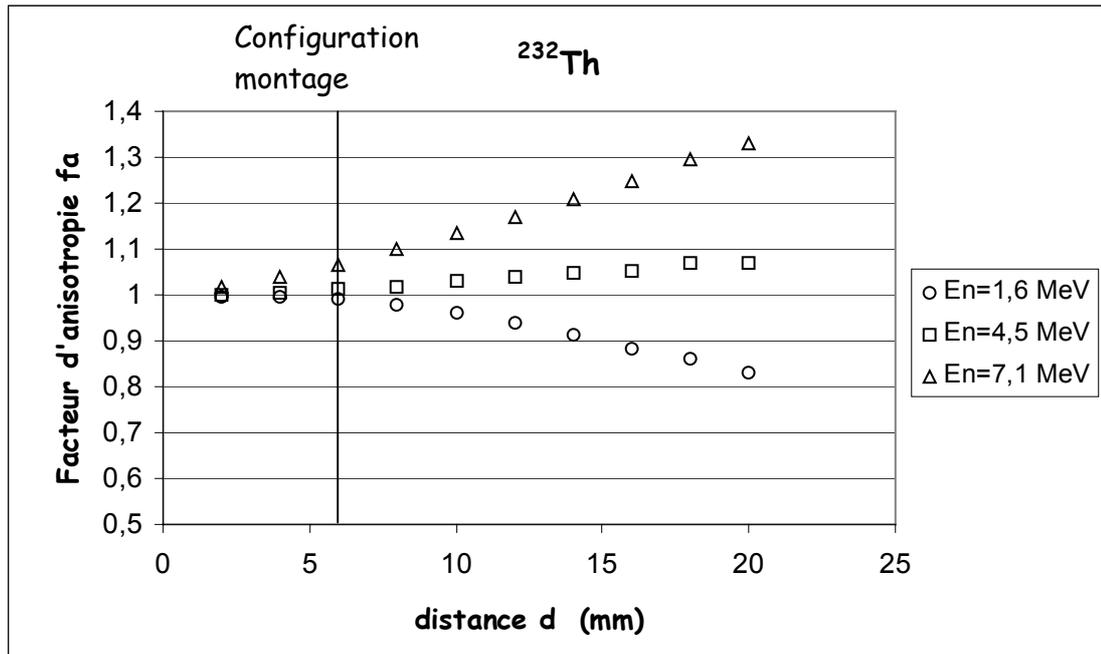


figure 3.3 : facteur d'anisotropie en fonction de la distance séparant la cible et les cellules photovoltaïques dans le cas de la fission du ^{232}Th pour des neutrons de 1,6 MeV, 4 MeV et 7,1 MeV.

On notera que les effets de distribution angulaire deviennent significatifs au delà de 10 mm dans le cas d'une distribution angulaire des fragments favorisée vers 90° par rapport à l'axe de fission ($E_n=1,6$ MeV). Par exemple, pour une distance cible-détecteur fission de 20 mm, l'émission des fragments entraîne une perte d'efficacité de détection de 20% par rapport à une émission isotrope. A 6 mm, distance choisie pour notre montage de détection de fission, les effets de distribution angulaire sont tout à fait négligeables. Pour des neutrons de 4 MeV, la distribution angulaire des fragments est légèrement favorisée vers 0° ($W(0)/W(90)=1,2$). Néanmoins, Les variations du facteur d'anisotropie f_a en fonction de la distance d conduisent aux mêmes conclusions faites à 1,6 MeV. En revanche, pour des neutrons de 7,1 MeV où les fragments sont émis vers l'avant avec une grande probabilité ($W(0)/W(90)=2,5$), l'efficacité de détection de notre montage présente des écarts de l'ordre de 6 % par rapport à celle associée à une distribution angulaire isotrope.

Cette étude a été réalisée pour les autres noyaux (^{233}U , ^{235}U , et ^{238}U) et conduisent aux mêmes résultats que le ^{232}Th . A savoir que, dans notre gamme d'énergie (0,95 à 6,5 MeV), les effets de distribution angulaire des fragments dans le calcul de l'efficacité de détection de notre montage sont significatifs qu'au-delà d'une énergie de neutron de 6 MeV. Le tableau suivant rassemble les différentes valeurs du facteur d'anisotropie f_a pour les quatre noyaux $^{233,235,238}\text{U}$, ^{232}Th étudiés pour une énergie de neutron de 6,5 MeV.

Type de Noyau	Facteur d'anisotropie f_a
^{233}U	1,031
^{235}U	1,031
^{238}U	1,054
^{232}Th	1,065

Tableau 3.1 : Facteur d'anisotropie f_a à une énergie de neutron de 6,5 MeV pour les quatre noyaux ($^{233,235,238}\text{U}$ et ^{232}Th) étudiés.

Pour des énergies inférieures, l'efficacité de notre dispositif se résume à la relation suivante :

$$\varepsilon_f = \frac{\Omega_f \cdot \varepsilon_i}{2\pi} \quad (3.5)$$

Pour déterminer complètement ε_f , il nous reste à mesurer l'efficacité intrinsèque ε_i de nos deux montages photovoltaïques.

Les cellules photovoltaïques possèdent sur leur surface une grille métallique très fine. Les fragments touchant cette grille ne sont pas détectés. Due à la perte de ces fragments, chaque montage possède une efficacité intrinsèque (ε_i). Une méthode expérimentale similaire à celle utilisée pour la détermination de l'activité de la source étalon α (voir annexe A) permet de quantifier cette efficacité. La source α est alors remplacée par une source de californium ^{252}Cf dont les noyaux fissionnent spontanément avec une probabilité de 3,09 %.

L'activité de cette cible dans 2π stéradians est mesurée en plaçant à une distance d vers l'avant une jonction silicium collimatée ($\phi_c=15$ mm) de $150 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La jonction est ensuite remplacée par chaque montage photovoltaïque. L'activité en fission spontanée de la source est définie de la manière suivante :

$$a_{^{252}\text{Cf}} = \frac{2\pi \cdot N_f^\Omega}{\Omega \cdot \Delta t} \quad (3.6)$$

Les spectres des fragments de fission obtenus sont représentés sur la figure (3.4).

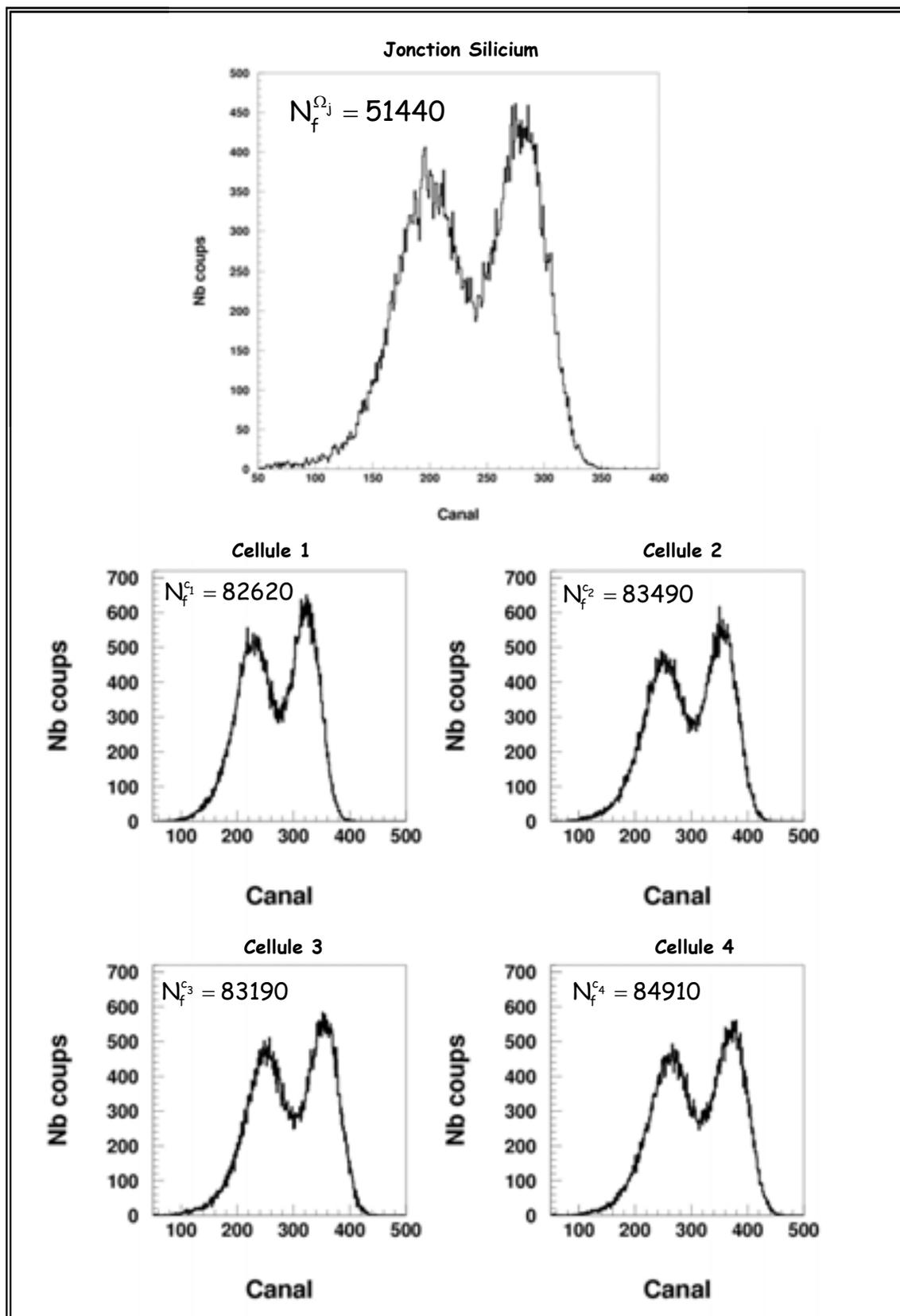


Figure 3.4 : Spectres en amplitudes des fragments détectés par la jonction silicium et par chaque montage photovoltaïque utilisé lors de nos mesures.

Les données expérimentales sont répertoriées dans le tableau ci-dessous :

Type de Détecteur	Jonction Silicium	Détecteur fission n°1 (Cellules 1 et 2)		Détecteur fission n°2 (Cellules 3 et 4)	
N_f^Ω	51440	82620	83490	83190	84910
Δt (s)	12325,10	6220,01		6280,79	
d (mm)	186±0.5	173±0.5		173±0.5	
Ω (msr)	5,10	34,64		34,64	
$\frac{\Delta\Omega}{\Omega}$ (%)	0,54	0,57		0,57	

Tableau 3.2 : données expérimentales des mesures de l'activité de la cible ^{252}Cf

On obtient les activités suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} a_{252\text{Cf}}^{\text{jonc}} = \frac{2\pi \cdot N_f^{\Omega_j}}{\Omega_j \cdot \Delta t} = 5173 \pm 52 \text{ f} \cdot \text{s}^{-1} \\ a_{252\text{Cf}}^{1\text{ ou }2} = \frac{2\pi \cdot (N_f^{c_1 \text{ ou } c_3} + N_f^{c_2 \text{ ou } c_4})}{\Omega_{\text{cel}} \cdot \Delta t} = 4893 \pm 28 \text{ f} \cdot \text{s}^{-1} \end{array} \right. \quad (3.7)$$

L'efficacité ε_i de chaque détecteur de fragments de fission est déterminée à partir du rapport entre l'activité de la source de ^{252}Cf mesurée par chaque montage photovoltaïque et celle mesurée par la jonction silicium :

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_i = \frac{a_{252\text{Cf}}^{1\text{ ou }2}}{a_{252\text{Cf}}^{\text{jonc}}} = 0,95 \pm 0.01 \\ \frac{\Delta\varepsilon_i}{\varepsilon_i} = \sqrt{\frac{1}{N_f^{\Omega_j}} + \frac{1}{(N_f^{c_1 \text{ ou } c_3} + N_f^{c_2 \text{ ou } c_4})} + \left(\frac{\Delta\Omega_j}{\Omega_j}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\Omega_{\text{cel}}}{\Omega_{\text{cel}}}\right)^2} \end{array} \right. \quad (3.8)$$

3.3 Détection des protons de recul

3.3.1 Principe des mesures

Selon l'énergie des neutrons, deux systèmes de détection des protons de recul ont été utilisés :

- Pour des neutrons d'énergie inférieure à 2,5 MeV produits par les réactions endoénergétiques ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ et $\text{T}(p, n){}^3\text{He}$, une seule jonction silicium est utilisée dont l'épaisseur est suffisante pour arrêter les protons de recul les plus énergétiques sortant du radiateur.
- Pour des neutrons d'énergie supérieure à 4 MeV produits par la réaction exoénergétique $\text{D}(d, n){}^3\text{He}$, un montage télescope ΔE -E (deux jonctions silicium) a été utilisé.

Le spectre en énergie des protons de recul détectés est alors obtenu en deux étapes :

- La première est d'enregistrer le spectre en énergie des particules chargées arrivant sur la ou les jonctions silicium pendant un temps Δt . Nous parlerons par la suite de mesure « **PP** » (polypropylène).
- La deuxième est d'enregistrer le spectre caractérisant le bruit de fond arrivant sur la ou les jonctions silicium pendant le même temps Δt . Dans ce cas, les protons de recul issus du film sont arrêtés grâce à un écran en tantale placé juste derrière le radiateur. Ceci permet de mesurer la contribution des autres particules chargées détectées issues de réactions parasites entre les neutrons incidents et l'environnement expérimental (chambre à réaction, détecteurs). Nous parlerons par la suite de mesure « **Bf** » (Bruit de fond).

Le nombre de protons de recul détectés par notre système de détection (N_p^{det}) est alors obtenu en soustrayant au nombre de particules chargées détectées ($N_{\text{pp}}^{\text{det}}$) lors d'une mesure (PP), le nombre de particules détectées ($N_{\text{bf}}^{\text{det}}$) lors d'une mesure (Bf). On obtient :

$$N_p^{\text{det}} = N_{\text{pp}}^{\text{det}} - N_{\text{bf}}^{\text{det}} \cdot f_n \quad (3.9)$$

Le terme f_n est un facteur de normalisation. Les spectres de fond sont collectés dans une période de temps équivalent à celle des spectres des mesures (PP). Ces durées de mesure varient entre une et plusieurs heures. Le temps ne constitue pas évidemment une référence correcte compte tenu de l'usure des cibles et des instabilités du faisceau de protons ou de deutons fournit par l'accélérateur.

C'est pour cette raison que nous avons utilisé le nombre de neutrons détectés par un moniteur ^3He placé dans l'axe du faisceau à quelques mètres de la source et le nombre total de particules chargées arrivant sur la cible de production de neutrons.

3.3.2 Spectres des protons de recul détectés par une jonction silicium

La figure (3.5) montre les spectres obtenus lors d'une mesure (PP) et une mesure (Bf) pour une énergie de neutron de 1,2 et 1,96 MeV. Les neutrons sont produits par la réaction $T(p, n)^3\text{He}$. L'épaisseur du film de polypropylène utilisée est de 10 microns pour la mesure à 1,96 MeV et de 4 microns pour celle à 1,2 MeV.

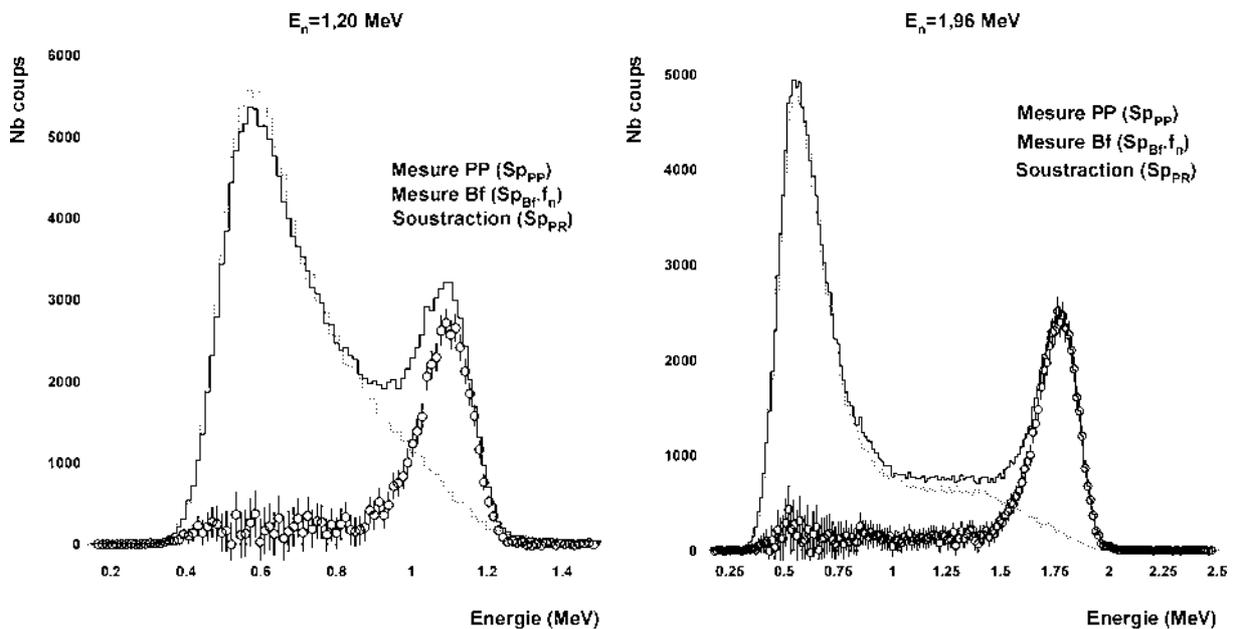


Figure 3.5 : Spectres en énergie des particules détectées par la jonction pour des neutrons de 1,2 MeV et de 1,96 MeV produits par la réaction $^3T(p,n)^3\text{He}$ lors d'une mesure (PP) et d'une mesure bruit de fond (Bf). Les spectres résultant de la soustraction du bruit de fond γ sont également présentés.

Pour chaque énergie de neutron, les spectres ($S_{p_{PP}}$) présentent un pic dont l'énergie varie avec celle des neutrons incidents. Ce pic de protons de recul disparaît lorsque le radiateur est masqué par l'écran en tantale. Les spectres de bruit de fond ($S_{p_{Bf}}$) présentent un spectre continu. L'essentiel de ce bruit de fond est contenu à basse énergie. Il provient ici du rayonnement γ intense généré par les protons du faisceau dans le support de cuivre de la cible produisant les neutrons.

Après normalisation, chacun des spectres ($S_{p_{Bf}}$) est soustrait à ceux obtenus en mesure directe ($S_{p_{PP}}$). Ces spectres soustraits ($S_{p_{PR}}$) représentent les spectres des protons de recul émis par le radiateur et détectés par la jonction silicium. Ils présentent une allure gaussienne avec une légère asymétrie pour les protons de plus basse énergie.

On notera que le spectre de bruit de fond présente une composante de plus haute énergie qui suit pratiquement l'énergie des protons de recul. Il s'agit là de la contribution de la réaction parasite $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$ (voir tableau 2.8). En effet, la chaleur de cette réaction étant de -35 keV, elle produit des particules α dont l'énergie est voisine de celle des protons de recul détectés par la jonction. La signature de cette réaction apparaît plus clairement à 4 MeV d'énergie de neutron incidente comme le montre la figure (3.6). Elle présente le spectre de protons de recul et le spectre de bruit fond associé pour un radiateur et une jonction silicium de 30 et 150 μm d'épaisseur respective.

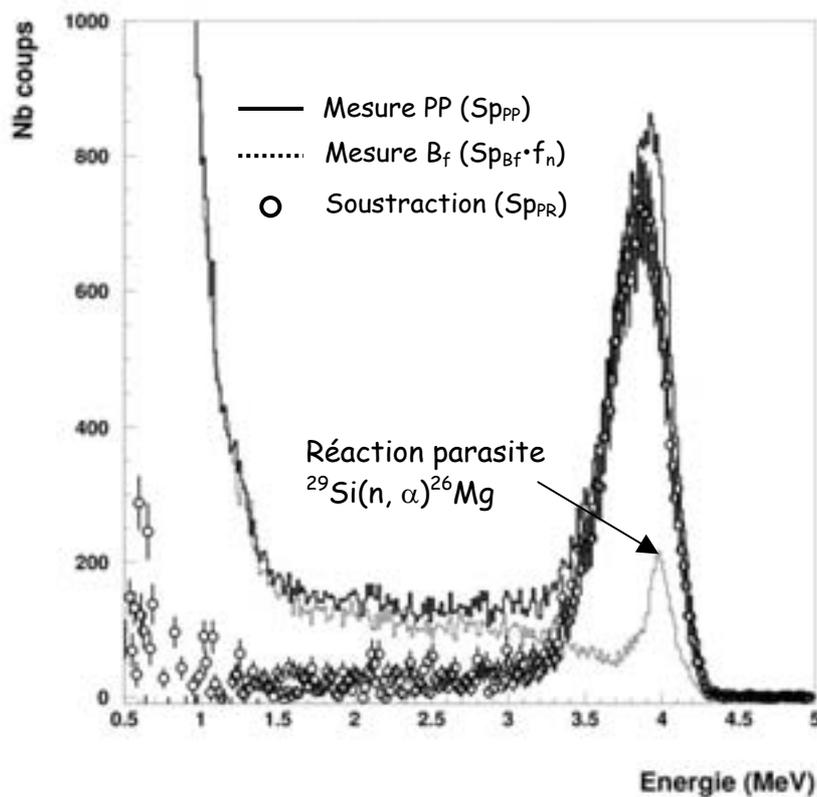


Figure 3.6 : Spectres en énergie des particules détectées (S_{PP} , S_{Bf} et S_{PR}) par une jonction silicium de 150 μm pour des neutrons de 4,2 MeV. L'épaisseur du film de PP choisie est de 30 μm .

A basse énergie ces deux spectres présentent la même allure. Néanmoins, au voisinage de l'énergie des neutrons, le spectre de bruit de fond présente nettement un pic dont l'énergie moyenne est compatible avec la cinématique de la réaction $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$. En effet la section efficace de cette réaction atteint une centaine de milibarn à 4 MeV alors qu'elle ne vaut que quelques milibarns pour une énergie de neutron de 2 MeV (voir figure 2.18).

La soustraction de ce fond entraîne donc des erreurs plus importantes sur la détermination du nombre de protons de recul détectés (N_p^{det}). L'incertitude associée au flux de neutrons en est sérieusement affectée. Au delà de cette énergie le bruit de fond détecté par la jonction silicium va continuer d'augmenter puisque la jonction fonctionne à la fois comme une cible épaisse et un détecteur "4 π " vis à vis des neutrons incidents. A partir de 5 MeV, le taux de réactions devient si important dans la jonction que la mesure n'est plus possible. Le moyen de résoudre ces problèmes est d'utiliser deux jonctions silicium fonctionnant en coïncidences. Cet ensemble constitue un télescope ΔE - E.

3.3.3 Spectres des protons de recul détectés par un télescope ΔE - E

L'utilisation du télescope permet de réduire le bruit de fond enregistré sur les jonctions. En effet, le système d'acquisition n'enregistre les données que si les particules détectées traversent la première jonction en laissant une quantité d'énergie ΔE et sont arrêtées dans la seconde en laissant toute leur énergie résiduelle E. Il permet également une identification des particules chargées détectées. La figure (3.7) présente deux matrices ΔE - E d'identification des particules chargées détectées lors d'une mesure (PP) et lors d'une mesure (Bf) pour des neutrons d'énergie moyenne de 5,95 MeV.

Chaque matrice est composée d'une branche d'hyperbole et de segments de droite. L'hyperbole représente les protons détectés par le télescope. La matrice (A) montre un maximum de coups pour une énergie résiduelle E autour de 5 MeV. Ce qui correspond aux protons de recul détectés sortant du radiateur. Les protons de plus basse énergie ($E \leq 4$ MeV), proviennent des interactions des neutrons avec les matériaux composant la chambre à réaction. Le dispositif étant composé principalement d'aluminium, ces protons sont produits par la réaction $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$. Pour des neutrons de 5,95 MeV, la figure (2.18) montre que la section efficace de cette réaction atteint les 45 milibarns.

Chaque segment de droite est présent dans les deux matrices. Ces segments représentent la détection de particules chargées dont l'énergie totale ($E+\Delta E$) est constante. Un calcul simple nous a permis d'identifier les réactions mises en jeu (droites en pointillés). Elles sont reportées sur la figure (3.7). On retrouve la voie $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$ dont il a été question plus haut. Néanmoins, la réaction la plus abondante est la voie $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$. Elle se situe sous la trace d'identification des protons. Les événements parasites correspondent à une énergie totale déposée dans le télescope de 2,09 MeV. Pour ces événements, la jonction ΔE et E constituent à la fois un détecteur "4 π " et une cible épaisse. La détection en coïncidences de ces événements dépend du lieu d'interaction des neutrons dans la jonction E ou ΔE . Pour un événement détecté en coïncidence, l'énergie totale va se répartir entre le proton et le noyau de recul (^{28}Al). Le parcours de ce dernier étant très faible dans le silicium, il est arrêté pratiquement à l'endroit où a interagit le neutron.

Le proton, quant à lui, traverse une partie de l'épaisseur de la jonction ΔE (ou E) en déposant une certaine quantité d'énergie et est arrêté dans la jonction E (ou ΔE) en déposant toute son énergie résiduelle. L'énergie totale récupérée ($E+\Delta E$) correspond à celle des neutrons incidents moins l'énergie seuil de la réaction.

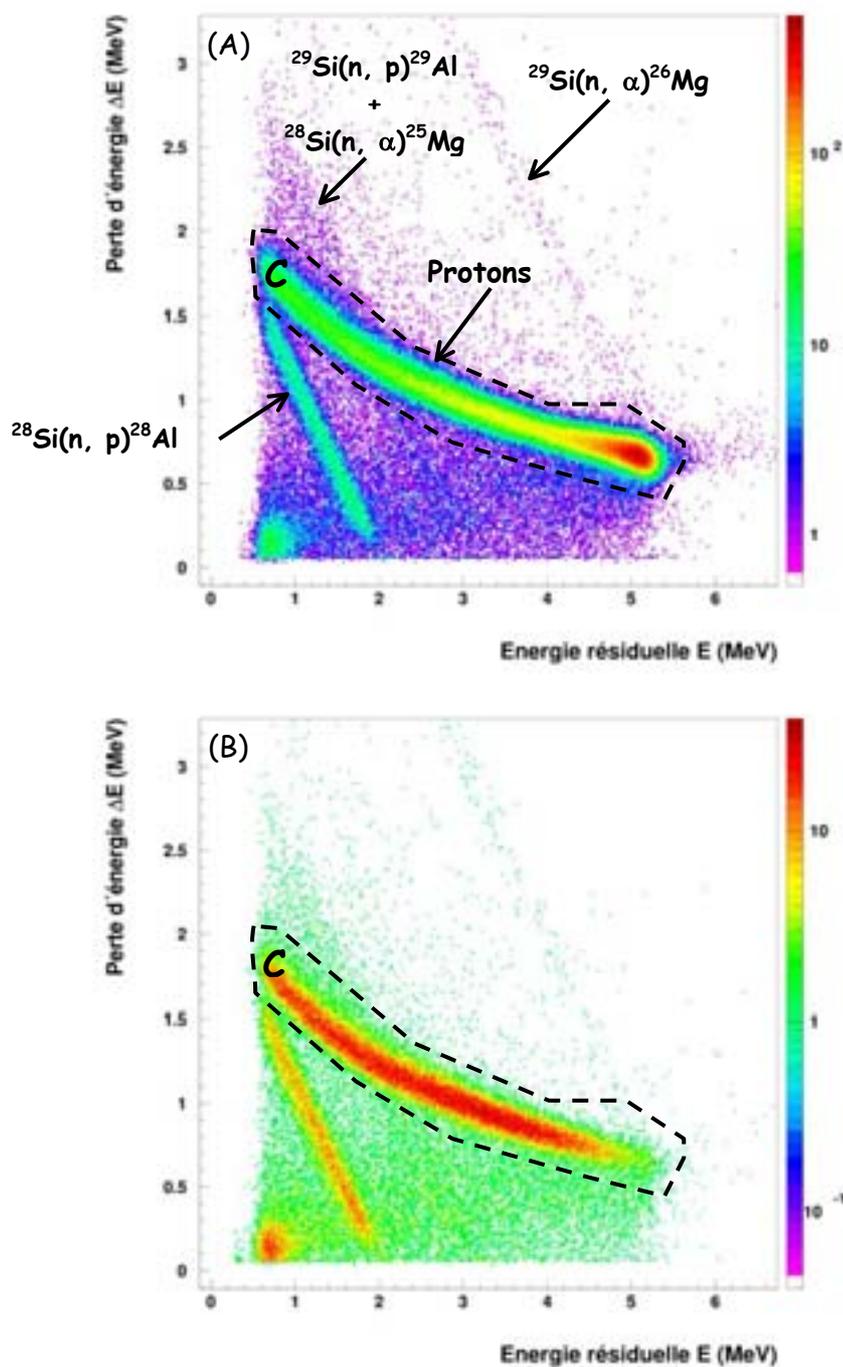


Figure 3.7 : Histogrammes à deux dimensions représentant la perte d'énergie ΔE en fonction de l'énergie résiduelle E des particules détectées par le télescope lors d'une mesure (PP) (A) et d'une mesure (Bf) (B) pour des neutrons d'énergie moyenne égale à 5.95 MeV et pour un film de polypropylène de 30 μm d'épaisseur.

L'utilisation d'un télescope a donc permis d'identifier tous les évènements (vrais ou parasites).

Après identification des protons de recul, la soustraction du bruit de fond est effectuée de la même manière que lors de l'utilisation d'une seule jonction. Le nombre de protons de recul détectés est déterminé à partir d'un contour C (en pointillés) ne sélectionnant que les protons détectés par le télescope lors d'une mesure (PP) (matrice A) et une mesure (Bf) (matrice B). Pour chaque évènement, nous déterminons l'énergie totale ($E+\Delta E$) du proton détecté. Nous construisons ensuite les spectres (ou histogrammes) en énergie totale des protons détectés par le télescope dans les deux cas de mesure. Les spectres sont notés respectivement Sp_{PP}^C et Sp_{Bf}^C . Le nombre de protons de recul détectés (N_p^{det}) par le télescope sera déterminé à partir du spectre soustrait Sp_{PR}^C .

Pour illustrer cette analyse, nous allons revenir sur la mesure effectuée à 4,2 MeV. Un exemple de cette analyse est illustré sur la figure (3.8). Elle présente les deux matrices (A) et (B) obtenues lors des mesures PP et Bf, ainsi que les spectres Sp_{PP}^C , Sp_{Bf}^C et le spectre soustrait Sp_{PR}^C . En comparant aux spectres de la figure (3.6), l'effet du montage télescope apparaît clairement. Ces résultats ont été obtenus à la même énergie neutron (4,2 MeV) et dans les mêmes conditions géométriques. La jonction ΔE , d'épaisseur 50 μm , est placée au même endroit que celle utilisée précédemment et possède la même collimation ($\phi_c=15$ mm). Une jonction de 150 μm est utilisée sans collimation comme jonction E. L'épaisseur du radiateur est toujours de 30 μm .

La figure (3.8) montre le rôle du télescope dans la réduction du bruit de fond détecté. En effet, par rapport à la figure (3.6), la contribution des particules α de la voie $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$ au bruit de fond détecté a été réduit d'un facteur 7. La soustraction du fond aboutit dans ce cas à un spectre en énergie des protons de recul détectés (Sp_{PR}^C) de meilleure qualité.

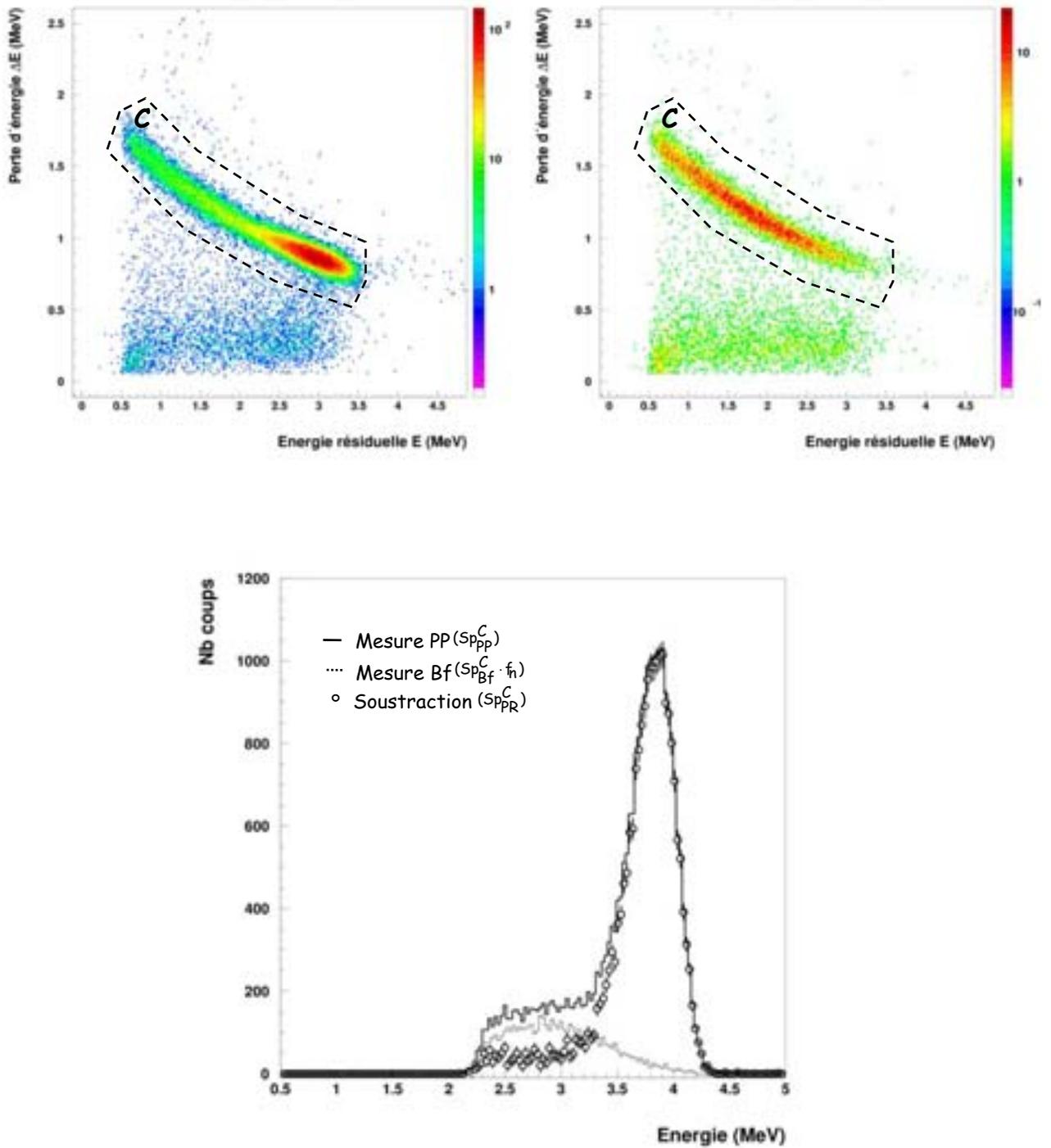


Figure 3.8 : Matrices E - ΔE et spectres en énergie des particules détectées par le télescope ΔE ($50 \mu\text{m}$)- E ($150 \mu\text{m}$) pour des neutrons de $4,2 \text{ MeV}$ lors d'une mesure (PP) et une mesure (Bf). L'épaisseur du radiateur est de $30 \mu\text{m}$.

3.3.4 Réponse du détecteur de neutrons

La figure (3.9) montre le spectre en énergie des protons de recul détectés par le télescope ΔE - E pour différentes énergies de neutrons comprises entre 4 et 7 MeV. Ces mesures ont été réalisées avec un radiateur de 50 μm .

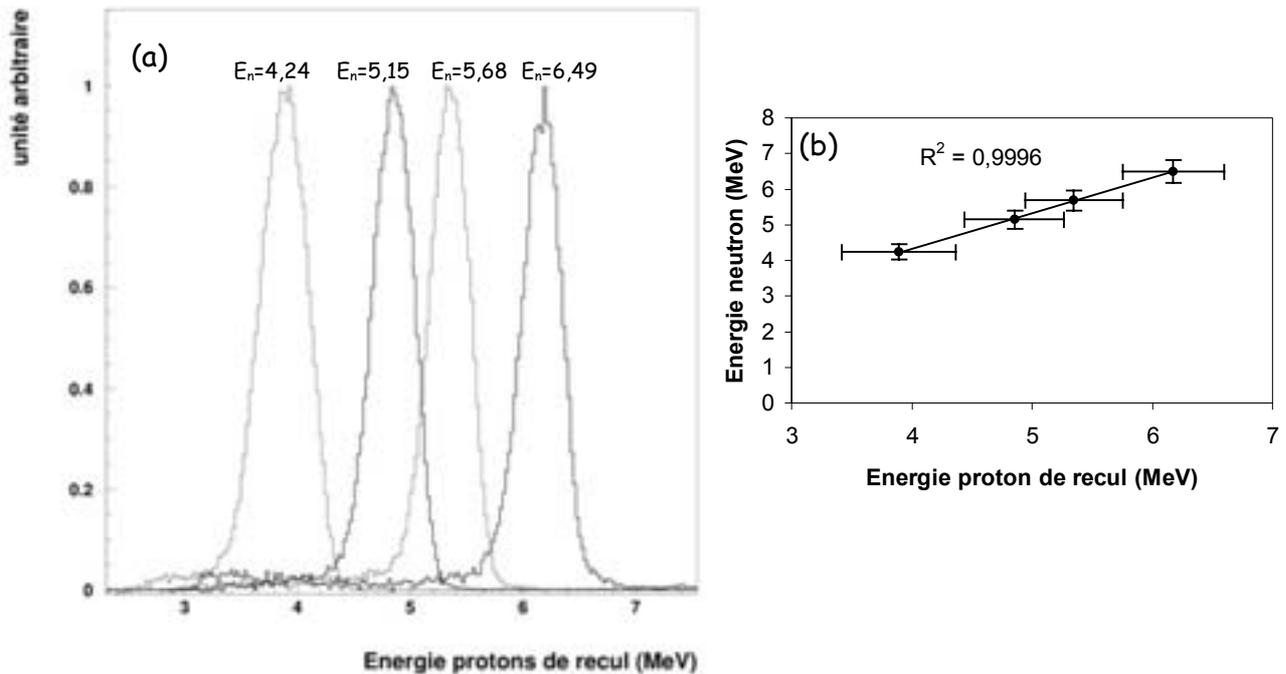


Figure 3.9: Spectres en énergie totale des protons de recul détectés par le télescope ΔE - E , pour des neutrons d'énergie moyenne allant de 4,2 à 6,5 MeV et une épaisseur de polypropylène de 50 μm .

La résolution en énergie des spectres est de l'ordre de 12 % à 4,2 MeV et atteint 7 % à 6,49 MeV. Les protons de recul détectés dans ce travail sont associés aux protons les plus énergétiques émis par le radiateur après diffusion élastique. Comme le montre la figure (3.9 b), l'énergie moyenne de ces protons est directement proportionnelle à l'énergie des neutrons incidents.

A basse énergie, la réponse du détecteur a été étudiée à partir de la réaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ pour une énergie de proton de 3,3 MeV. A cette énergie, deux groupes de neutrons sont produits. Le premier, associé à l'état fondamental du ${}^7\text{Be}$, correspond à des neutrons de 1,6 MeV. Le second, de plus faible énergie est associé au noyau ${}^7\text{Be}$ dans son premier état excité (0,431 keV). L'énergie de ce groupe est donc plus faible de 0,431 MeV par rapport au premier. La figure (3.10) montre le spectre en énergie des protons de recul détectés par la jonction silicium ΔE (50 μm), ainsi que le spectre obtenu par simulation Monte Carlo. Cette simulation sera détaillée dans le prochain paragraphe. Le radiateur utilisé est un film de polypropylène de 10 μm .

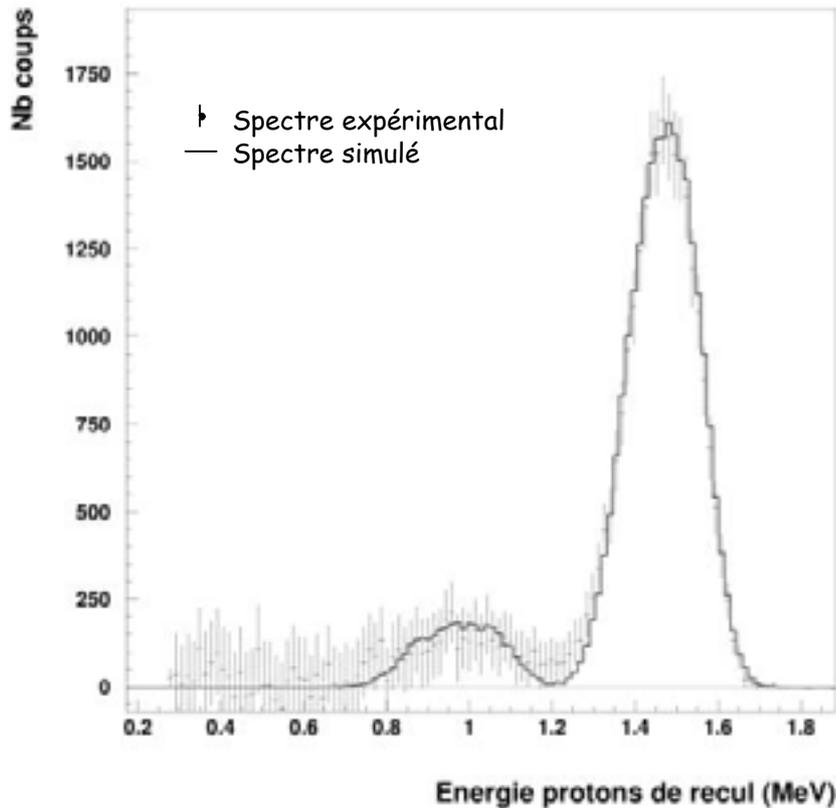


Figure 3.10 : Spectres en énergie des protons de recul détectés par la jonction silicium de 50 μm d'épaisseur obtenus expérimentalement et par simulation numérique de type Monte Carlo pour des neutrons de 1,6 MeV produits par la réaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$. L'épaisseur du film PP utilisé est de 10 μm .

La figure (3.10) montre l'existence de deux groupes de protons de recul dont l'écart en énergie est de 500 keV environ. Cet écart est en bon accord avec la cinématique de la réaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ à cette énergie. La résolution en énergie de notre détecteur permet donc de séparer distinctement les deux groupes de neutrons produits. De plus, on notera que le rapport des aires des deux pics observés est de l'ordre d'un facteur 10. Ce résultat confirme le rapport des intensités des deux groupes de neutrons donné par H. Liskien [Li75]. Ceci montre que l'efficacité de détection du dispositif est bien maîtrisée.

3.4 Détermination du flux de neutrons expérimental

3.4.1 Description du programme de simulation Monte Carlo

Il a été vu précédemment que le flux de neutrons arrivant sur le radiateur est déterminé à partir du nombre de protons détectés (N_p^{det}) tel que :

$$\Phi'_n(E_n) = \frac{N_p^{\text{det}}}{\sigma_{np}(E_n) \cdot N_H \cdot \varepsilon_p \cdot \Delta t} \quad (3.11)$$

- N_p^{det} est le nombre de coups contenus dans le spectre en énergie des protons de recul détectés (Sp_{PR} ou Sp_{PR}^c).
- N_H est le nombre d'atomes d'hydrogène composant le radiateur en polypropylène.
- $\sigma_{np}(E_n)$ est la section efficace totale de la diffusion élastique (n, p) pour une énergie de neutron E_n donnée par la formule de Gammel (équation 2.4).
- ε_p représente l'efficacité de détection des protons de recul.

Compte tenu des dimensions finies du radiateur (film de polypropylène C_3H_6) et des jonctions silicium, il est difficile de déterminer d'une manière analytique l'expression de l'efficacité du dispositif de détection des protons de recul ε_p . Il a donc été plus simple de réaliser une simulation Monte Carlo de notre montage. Nous verrons par la suite qu'elle nous a permis également d'optimiser ce dispositif.

Le principe de la simulation est de suivre toute l'histoire d'un neutron depuis sa création jusqu'à sa collision avec un proton du radiateur. Le programme peut être divisé en trois parties :

- La production des neutrons : en supposant une probabilité d'interaction uniforme des particules chargées tout le long de la cible de production, la direction d'émission et l'énergie des neutrons sont calculées à partir de la cinématique et des valeurs publiées de distributions angulaires de la réaction de production de ces neutrons ([Li73], [Li75], [Li78]).
- L'interaction des neutrons avec le radiateur en polypropylène : l'épaisseur du radiateur utilisé est largement inférieure au libre parcours moyen du neutron dans le polypropylène. Ceci nous permet de négliger les cas rarissimes de deux ou plusieurs interactions du neutron dans le film. On supposera alors que tous les neutrons interagissent une fois avec le milieu et ceci d'une manière uniforme durant toute leur traversée dans le radiateur. Ces neutrons interagissent soit avec les atomes de carbone ou soit avec les atomes d'hydrogène composant le film.

A partir des sections efficaces microscopiques de diffusion élastique et de capture de ces éléments ($\sigma_c^C, \sigma_c^H, \sigma_e^C$ et σ_e^H) à l'énergie du neutron incident, on détermine les sections efficaces macroscopiques correspondantes :

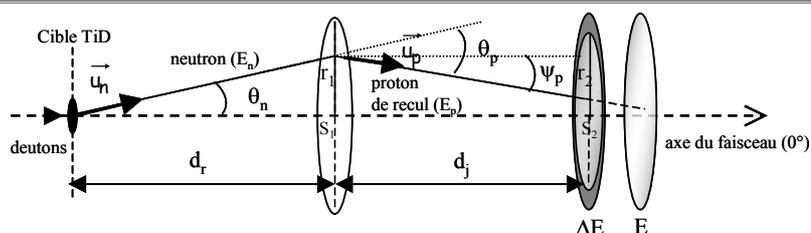
$$\begin{cases} \sum_{\text{capture}} = n_C \cdot \sigma_c^C + n_H \cdot \sigma_c^H \\ \sum_{\text{élastique}} = n_C \cdot \sigma_e^C + n_H \cdot \sigma_e^H \end{cases} \quad (3.12)$$

n_C et n_H correspondent aux nombre d'atomes de carbone et d'hydrogène par unité de volume contenus dans le radiateur. Ces données vont nous permettre de déterminer la nature de la collision et la nature de l'atome (C ou H) intervenant dans celle-ci. Une interaction sur un atome de carbone ou une capture sur un atome d'hydrogène arrête la simulation. Dans le cas d'une diffusion sur un atome d'hydrogène, on calcule la direction d'émission et l'énergie du proton diffusé. La collision est étudiée dans le système du centre de masse et la cinématique de la réaction (n, p) nous permet d'exprimer ces quantités dans le système du laboratoire. En outre, ces protons de recul perdent une fraction de leur énergie initiale dans le film de polypropylène. Cette perte d'énergie est calculée à partir des tables de pouvoir d'arrêt des ions dans la matière de J.F. Ziegler [Zi77].

- La détection des protons de recul : tous les protons arrivant sur la face d'entrée du détecteur sont enregistrés. Dans le cas d'un montage télescope, la perte d'énergie (ΔE) des protons de recul est calculée là encore à partir des tables de Ziegler. La réponse du télescope (ΔE et E) est convoluée par une fonction de résolution de type gaussien. La largeur à mi hauteur de cette fonction est déterminée en utilisant l'étalonnage en énergie des jonctions silicium.

L'organigramme de notre code de simulation est reporté sur la figure (3.11). Ce code est lancé sur un grand nombre d'évènements. Il est arrêté lorsque 10^5 protons ont été détectés. On dispose alors du spectre en énergie des protons détectés et de leur nombre ($N_{PR}^{sim} = 10^5$), ainsi que du nombre total de protons diffusés (N_p^{sim}) dans tout l'espace et du flux de neutron associé. L'efficacité de détection ε_p dans 2π stéradians est alors déterminée à partir du rapport :

$$\varepsilon_p = \frac{N_{PR}^{sim}}{N_p^{sim}} \quad (3.13)$$



PRODUCTION DES NEUTRONS: réaction $D(d, n)^3\text{He}$ ($Q=+3.269$ MeV)

- Calcul des pertes d'énergie du faisceau de deutons dans la cible $\rightarrow E_i \pm \Delta E_i$.
- Tirage aléatoire de l'angle d'émission du neutron $\bar{\theta}_n$ sur la distribution angulaire $\frac{d\bar{\sigma}}{d\Omega}(E_i, \bar{\theta}_n)$ de la réaction dans le système du centre de masse.
- Détermination de l'angle d'émission θ_n dans le système du laboratoire tel que : $\tan \theta_n = \frac{\sin \bar{\theta}_n}{\cos \bar{\theta}_n + K}$ avec $K = \frac{V_{\text{cdm}}}{v_n}$
- Prise en compte des effets cinématiques de la réaction $\rightarrow E_n(\pm \Delta E_n)$ est solution de l'équation suivante:

$$\left(1 + \frac{m_n}{m_{^3\text{He}}}\right)E_n - \frac{2\sqrt{m_d \cdot m_n \cdot E_i} \cos \theta_n \cdot \sqrt{E_n}}{m_{^3\text{He}}} - \left[\left(1 - \frac{m_d}{m_{^3\text{He}}}\right) \cdot E_i + Q\right] = 0$$

- Calcul des composantes du vecteur directeur du neutron $\vec{u}_n = \begin{cases} u_x = \sin(\theta_n) \cdot \cos(\varphi_n) \\ u_y = \sin(\theta_n) \cdot \sin(\varphi_n) \\ u_z = \cos(\theta_n) \end{cases}$
- \rightarrow coordonnées (x_n, y_n, z_n) du neutron dans le repère fixe.

RADIATEUR

- Test si le neutron arrive sur le radiateur : $\sqrt{x_n^2 + y_n^2} \leq r_1 \rightarrow \text{test}=1$
- Tirage aléatoire ($0 \leq x \leq 1$) pour savoir si le neutron est diffusé par un atome d'hydrogène :
 - ① $x \leq \frac{\Sigma_{\text{capture}}}{\Sigma_{\text{totale}} (= \Sigma_{\text{diffusion}} + \Sigma_{\text{capture}})}$ \rightarrow le neutron est capturé $\rightarrow \text{Test} = 0$
 - ② $x \leq \frac{\Sigma_{\text{diffusion}}}{\Sigma_{\text{totale}}} \rightarrow \begin{cases} x \leq \frac{\Sigma_{\text{élastique}}^{\text{C}}}{\Sigma_{\text{diffusion}}} \rightarrow \text{le neutron est diffusé par un atome de carbone} \rightarrow \text{Test} = 0 \\ x \leq \frac{\Sigma_{\text{np}}}{\Sigma_{\text{diffusion}}} \rightarrow \text{le neutron est diffusé par un atome d'hydrogène} \rightarrow \text{Test} = 1 \end{cases}$ $\rightarrow N_p^{\text{sim}} = N_p^{\text{sim}} + 1$
- Test=1 \rightarrow tirage aléatoire sur la distribution angulaire du neutron diffusé $\frac{d\bar{\sigma}}{d\Omega}(E_i, \bar{\theta}_n)$
- \rightarrow détermination de l'angle θ_p et de l'énergie E_p du proton de recul
- \rightarrow détermination de l'angle d'émission ψ_p du proton de recul par rapport au repère fixe
- \rightarrow prise en compte de la perte d'énergie ΔE_D du proton dans le film $\rightarrow E_{\text{PR}} = E_D - \Delta E_D$

Télescope $\Delta E-E$

- Test si le proton de recul est détecté par le télescope : $\sqrt{x_p^2 + y_p^2} \leq r_2 \rightarrow \text{Test}=1 \rightarrow N_{\text{PR}}^{\text{sim}} = N_{\text{PR}}^{\text{sim}} + 1$
- Calcul de la perte d'énergie ΔE et de l'énergie résiduelle E du proton de recul détecté par le télescope. Construction du spectre en énergie totale $E_{\text{ptot}} = E + \Delta E$

Figure 3.11 : Organigramme du programme de simulation du flux neutrons mesuré par la diffusion (n, p)

3.4.2 Optimisation de la géométrie du détecteur à protons de recul

A partir du nombre de protons de recul détectés (N_p^{det}), il est possible de remonter au flux de neutrons arrivant sur le radiateur. La détermination précise de ce flux dépend des incertitudes associées au nombre de protons détectés (N_p^{det}), à l'efficacité de détection de ces protons (ε_p) au nombre d'atomes d'hydrogène (N_H) contenus dans le film et à la section efficace totale ($\sigma_{np}(E_n)$) de la diffusion élastique (n, p) à l'énergie de neutron E_n . Si l'on veut minimiser l'incertitude associée à ce flux, il est dans notre intérêt d'optimiser le rapport signal sur bruit. On a vu que le choix des épaisseurs du radiateur et de la jonction silicium en est un élément essentiel. Pour réduire ce bruit de fond, l'épaisseur de la jonction doit être adaptée de manière, à minimiser les réactions (n, p) et (n, α) dans le silicium tout en arrêtant les protons de recul les plus énergétiques. Pour maximiser le taux de protons de recul (signal), le radiateur doit être suffisamment épais. Mais il doit être également suffisamment fin pour conserver une bonne résolution du détecteur de neutrons.

Pour obtenir ces conditions, il a été nécessaire d'optimiser la géométrie du dispositif de détection. Une étude systématique a été effectuée avec le programme de simulation décrit précédemment. Un exemple de cette étude est présenté sur la figure (3.12) pour un flux de neutrons de 5,15 MeV arrivant sur un film de polypropylène de 30 μm . La distance entre la source de neutrons et le radiateur a été fixée à 10 cm. L'efficacité et la résolution du dispositif de détection sont présentées en fonction de la distance radiateur- télescope (d) et ceci pour différents diamètres du radiateur et du détecteur de protons.

Comme le montre la figure (3.12), la résolution du dispositif ne s'améliore plus significativement au delà de 7 cm. A cette distance, le choix de la configuration dépend d'un compromis entre la résolution en énergie, l'efficacité de détection et la minimisation des incertitudes géométriques. Les dimensions finies de la jonctions ΔE (diamètre $\phi_{\text{jonc}} = 18,5$ mm) nous ont conduit à choisir une configuration symétrique $\phi_{\text{rad}} = \phi_{\text{jonc}} = 15$ mm. Par ailleurs, la configuration ($\phi_{\text{rad}} = 15$ mm ; $\phi_{\text{jonc}} = 10$ mm ; $d = 6$ cm) représentée par les points circulaires et la configuration ($\phi_{\text{rad}} = 20$ mm ; $\phi_{\text{jonc}} = 10$ mm ; $d = 8$ cm) représentée par les points triangulaires conduisent à une résolution du dispositif équivalente à celle choisie ($\approx 8,5$ %) à 7 cm. En revanche, Elles conduisent à une efficacité plus faible. Notre choix s'est donc porté sur la configuration symétrique pour une distance d comprise entre 6 et 8 cm. Elle correspond à une résolution du télescope satisfaisante (< 10 %) et une efficacité de détection des protons de recul suffisante (1 %).

Pour confirmer ce choix, trois configurations géométriques différentes du dispositif de détection ont été testées expérimentalement :

- ❶ distance entre la source de neutrons et le radiateur : $d_r = 87,5$ mm
distance entre le radiateur et le collimateur de la jonction silicium E : $d_j = 39,4$ mm.
- ❷ $d_r = 87,5$ mm ; $d_j = 74,4$ mm.
- ❸ $d_r = 129,5$ mm ; $d_j = 74,4$ mm.

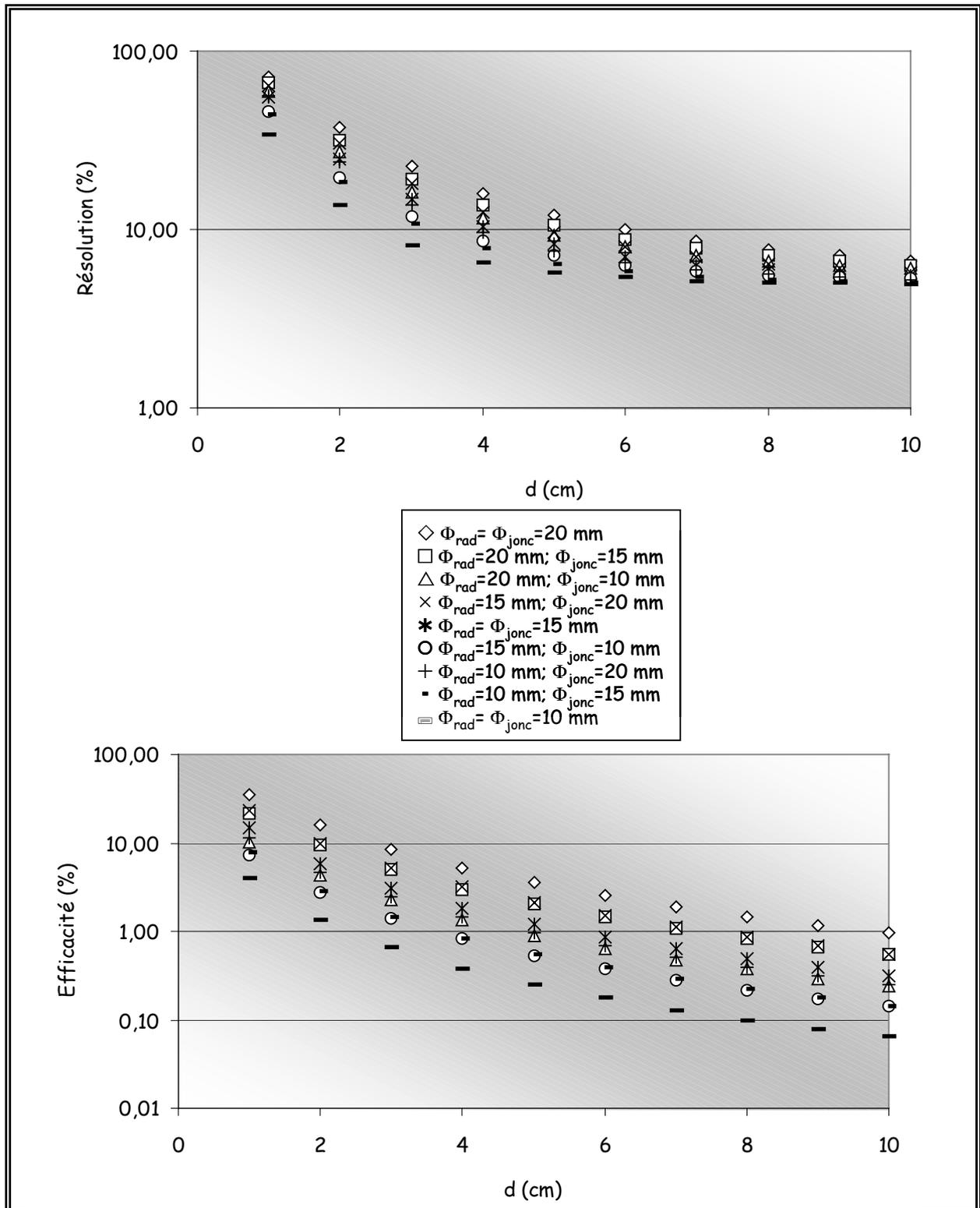


Figure 3.12 : Simulation de l'efficacité et de la résolution du télescope à protons de recul en fonction de la distance d entre le radiateur et la jonction silicium et pour plusieurs diamètres du radiateur et du collimateur de la jonction silicium.

La figure (3.13) montre les spectres en énergie des protons de recul détectés et simulés obtenus pour les trois configurations précédentes. Dans chaque configuration, les neutrons produits ont une énergie moyenne égale à 6,5 MeV. Le film de polypropylène a une épaisseur de 50 μm . Son rayon ($r_1=7,5$ mm) est égal à celui du collimateur en Ta ($r_2=7,5$ mm) équipant la face d'entrée du télescope.

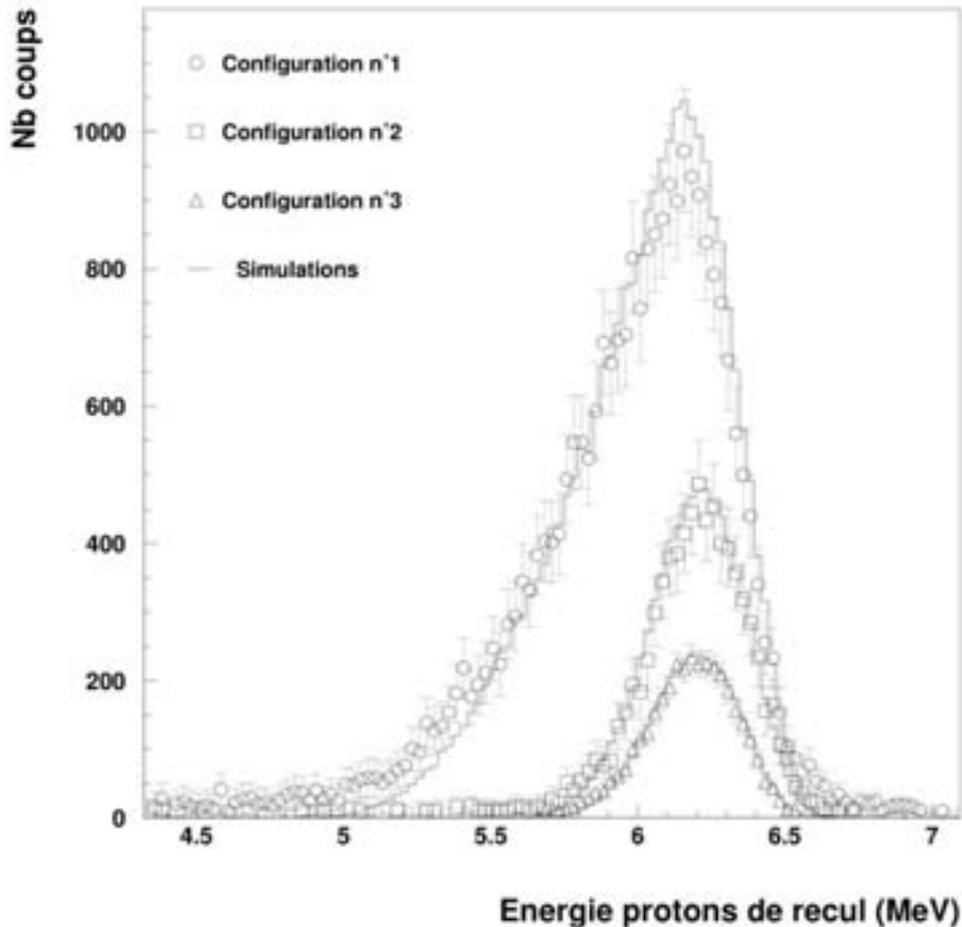


Figure 3.13 : Spectres en énergie des protons de recul détectés pour trois géométries différentes. Les neutrons ont une énergie de 6,5 MeV et l'épaisseur du film de polypropylène est de 50 μm dans chaque cas. En traits pleins, est représenté le résultat de la simulation pour chaque configuration.

La figure (3.13) montre un bon accord entre l'expérience et la simulation. La simulation confirme la grande sensibilité du montage à sa géométrie. Une faible distance radiateur- télescope (configuration n°1) augmente l'efficacité de détection des protons de recul mais ceci aux dépens de la qualité de la réponse en énergie du détecteur.

La résolution en énergie se détériore (largeur à mi hauteur $\approx 0,63$ MeV) tandis que le spectre présente une asymétrie importante. Ces deux effets résultent de la perte d'énergie des protons dans le radiateur. Pour limiter ces effets, le télescope est éloigné du radiateur. Ce qui correspond à la configuration n°2. Dans ce cas, on perd en efficacité (≈ 70 %) tout en améliorant considérablement la résolution en énergie du détecteur (largeur à mi hauteur $\approx 0,38$ MeV). Dans cette géométrie, une erreur de 0,5 mm sur la distance d_j entraîne une incertitude relative de 1,3 % sur l'angle solide, alors que pour la configuration n°1, elle est de 2,5 %. L'erreur sur l'angle solide est donc divisée par 2 si l'on passe de la configuration n°1 à la configuration n°2. Cette incertitude va se répercuter sur le calcul du flux de neutrons et sur la détermination de la section efficace de fission mesurée.

La configuration n°3, quant à elle, reprend la configuration n°2 en augmentant la distance entre la source de neutrons et le radiateur. L'efficacité de détection des protons de recul est conservée alors que l'efficacité globale du montage est diminuée (flux de neutrons arrivant sur le radiateur réduit). On remarquera qu'aucun gain significatif n'est obtenu concernant la réponse du détecteur. Vérifiant les conditions fixées par l'étude systématique précédente, la configuration n°2 est donc la mieux adaptée pour nos mesures.

3.4.3 Présentation des spectres de protons de recul détectés

Le domaine d'énergie des neutrons couvert dans ce travail est compris entre 0,95 et 6,5 MeV. Trois réactions ont été utilisées pour la production des neutrons : $T(p, n)^3\text{He}$, $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ et $D(d, n)^3\text{He}$. Le tableau (3.3) regroupe les caractéristiques (énergie moyenne et résolution) des neutrons produits et des protons associés. Comme le montre la colonne 4, l'épaisseur du radiateur a été adaptée à l'énergie des protons de recul détectés. La dernière colonne présente l'efficacité du détecteur de protons de recul déterminée à l'aide de la simulation.

Date de l'expérience	E_n (MeV)	ΔE_n (MeV)	Epaisseur PP (μm)	$E_{\text{ptot}}^{(a)}$ (MeV)	ΔE_{ptot} (MeV)	Résolution $\frac{\Delta E_{\text{ptot}}}{E_{\text{ptot}}}$ (%)	Efficacité $\varepsilon_p \left(\frac{\Omega_p}{2\pi} \right)$ (%)
Dec 2001	0,95	0,05	4	0,815	0,165	20,2	4,31±0,07
Dec 2001	1,20	0,05		1,090	0,165	15,1	4,31±0,07
Dec 2001	1,71	0,04	10	1,516	0,228	15,0	4,32±0,07
Dec 2001	1,96	0,04		1,775	0,225	12,7	4,32±0,07
Dec 2001	2,21	0,04		2,050	0,230	11,2	4,32±0,07
Dec 2002	1,40	0,01		1,223	0,185	15,1	1,50±0,02
Avril 2003	1,63	0,05		1,535	0,173	11,3	0,94±0,01
Avril 2003	4,60	0,11		30	4,381	0,340	7,76
Juin 2003	1,58	0,02	10	1,474	0,183	12,4	0,97±0,01
Juin 2003	5,42	0,08	50	4,932	0,375	7,60	0,98±0,01
Sept 2003	4,24	0,13		3,892	0,473	12,15	0,97±0,01
Sept 2003	5,15	0,09		4,852	0,414	8,53	0,98±0,01
Sept 2003	5,68	0,08		5,349	0,406	7,59	0,98±0,01
Sept 2003	5,94	0,07		5,610	0,401	7,15	0,98±0,01
Sept 2003	6,20	0,07		5,876	0,409	6,96	0,98±0,01
Sept 2003	6,49	0,06		6,175	0,422	6,83	0,98±0,01

Tableau 3.3 : Caractéristiques (résolution et efficacité) du télescope à protons de recul en fonction de l'énergie des neutrons. (a) : E_{ptot} est l'énergie la plus probable des protons de recul détectés.

Les premières séries de mesures (2001- 2002) ont été consacrées à l'optimisation du dispositif. Elles imposent ici une faible épaisseur de film de polypropylène (4, 10 μm) pour réduire la perte d'énergie des protons de recul dans le film. La perte d'efficacité qui en résulte doit être compensée par une diminution de la distance radiateur- détecteur de protons (maximiser le rapport signal sur bruit). La mesure à 0,95 MeV représente la limite inférieure en énergie où la méthode est applicable. Quant aux mesures 2003, elles montrent un détecteur de neutrons bien optimisé. L'efficacité de détection des protons de recul est proche du pourcent et sa résolution n'excède pas 12,2 %.

La figure (3.14) présente les spectres en énergie des protons de recul détectés et ceux obtenus par simulation Monte Carlo pour les énergies de neutron 1,2 ; 2,21 ; 4,24 et 6,2 MeV. Les spectres simulés sont normalisés sur le nombre de protons correspondant à l'énergie la plus probable du spectre expérimental (E_{ptot}).

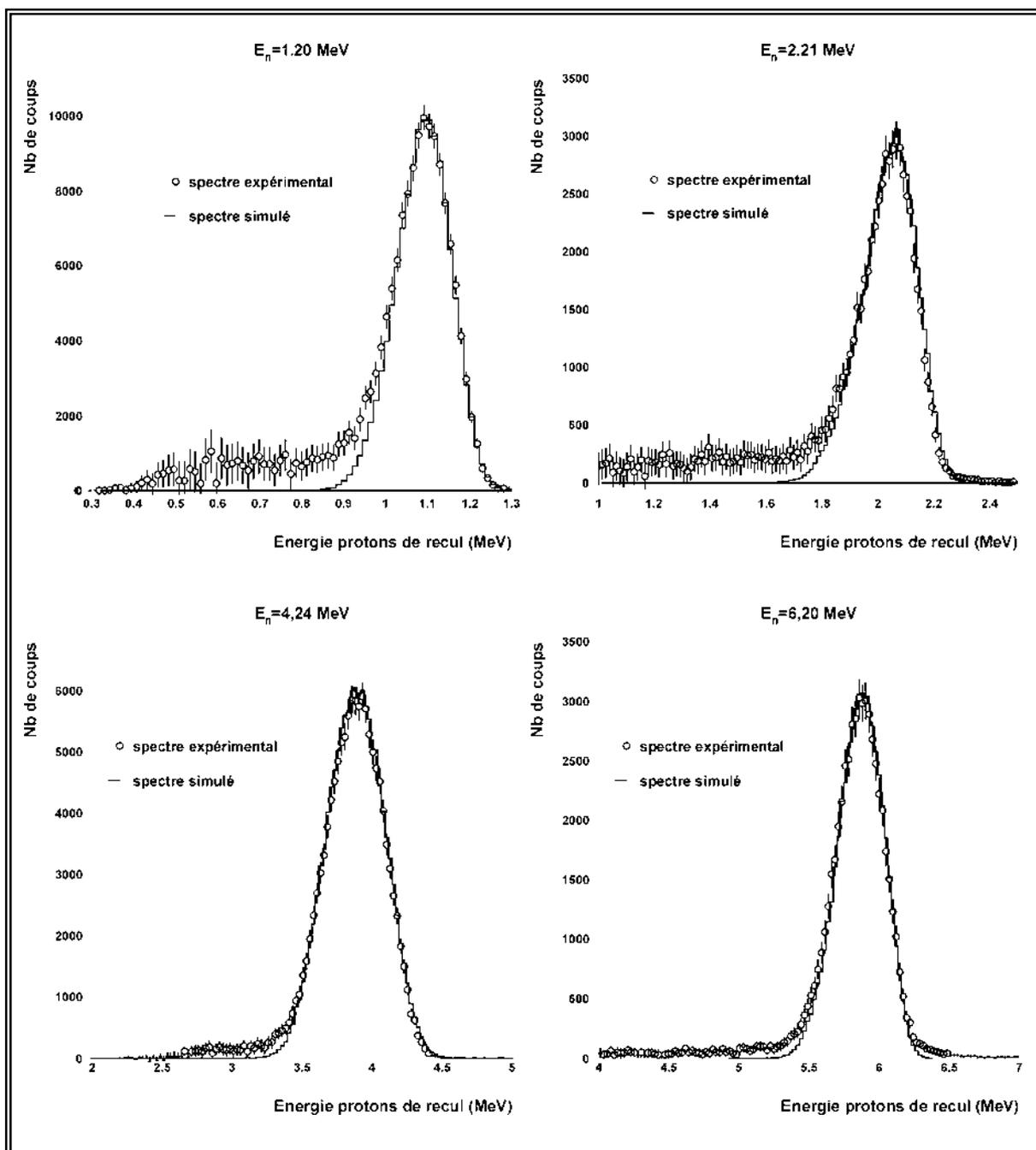


Figure 3.14 : Spectres en énergie des protons de recul détectés et simulés pour des neutrons de 1,2 ; 2,21 ; 4,24 et 6,2 MeV. Les deux premiers spectres sont obtenus avec une seule jonction silicium et les deux derniers avec un télescope $\Delta E - E$. Les épaisseurs des films de polypropylène utilisées ainsi que les caractéristiques (efficacité et résolution) du dispositif de détection sont données dans le tableau (3.3).

L'accord entre les spectres expérimentaux et simulés est globalement satisfaisant. Néanmoins, tous les spectres présentent une asymétrie plus ou moins prononcé à basse énergie. Les fluctuations de perte d'énergie des protons de recul dans le radiateur sont insuffisantes pour expliquer une telle asymétrie.

Il est vraisemblable que la distribution en énergie des neutrons incidents présentent elle même cette asymétrie. Toutes les cibles (TiT, TiD) que nous avons utilisées comportent une couche de titane ($\approx 1 \text{ mg/cm}^2$) déposée sur un support de cuivre dans lequel est arrêté le faisceau de particules chargées. On admet généralement que le tritium ou le deutérium sont répartis uniformément dans la couche de titane. C'est peut être le cas pour des cibles récemment fabriquées, ce n'est plus le cas pour des cibles sous irradiation : l'échauffement du support de titane peut conduire par diffusion à une redistribution des atomes de tritium (ou deutérium) et modifier la répartition uniforme initiale. Ce phénomène se traduit par une perte de tritium vers l'accélérateur et une migration de celui-ci dans le support de cuivre. Cette migration conduit à une épaisseur de cible apparente supérieure à celle donnée par le constructeur. Les données de la littérature concernant ce phénomène sont malheureusement peu nombreuses. La seule étude complète concerne celle de E. Fort et collaborateurs concernant la distribution des atomes de tritium absorbés dans un support de titane de $200 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$ déposé sur une feuille d'aluminium de $200 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$. Cette distribution est obtenue à partir d'une analyse en spectre de vitesse des particules ^3He , émises dans la réaction $\text{T}(p, n)^3\text{He}$. Le résultat de cette mesure (effectuée sous irradiation) est présenté sur la figure (3.15).

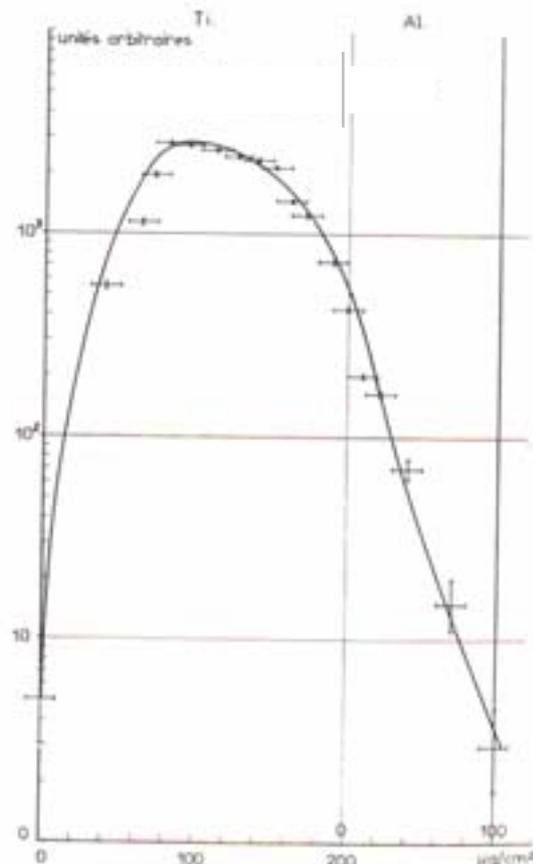


Figure 3.15 : Distribution de tritium dans la cible en fonction de sa profondeur : épaisseur Ti = $200 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$; épaisseur Al = $200 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$ [Fo70].

La figure (3.15) montre clairement que la distribution des atomes de tritium n'est pas uniforme dans la couche de titane. De plus, une fraction non négligeable de ces atomes a migré dans le support d'aluminium. Ce qui signifie que la production de neutrons est possible dans le support d'aluminium de la cible. En revanche ces neutrons auront une énergie en moyenne plus faible que ceux produit dans le titane. En effet, les protons du faisceau traversent d'abord toute l'épaisseur de titane puis une partie de l'épaisseur d'aluminium. Il est vraisemblable que le même phénomène intervient dans nos mesures.

Un second problème est apparu lors de l'utilisation de la réaction $D(d, n)^3\text{He}$. En effet, durant ces mesures, les deutons incidents sont arrêtés dans le support de cuivre (1 mm d'épaisseur). Leur accumulation conduit à la formation d'une cible secondaire dont l'épaisseur apparente et l'implantation varient avec l'énergie et l'intensité du faisceau incident. Le parcours d'un deuton de 2 MeV est de 13 μm environ dans le cuivre (après avoir traversé 1 mg/cm^2 de titane). Un faisceau de 5 μAe conduit à l'implantation de quelques 10^{19} deutons/ cm^2 au bout de 24h d'irradiation. Cette densité devient alors comparable à celle de la cible principale ($\text{TiD}_{1,5} \approx 1,8 \cdot 10^{19}$ deutons/ cm^2). Là encore cette implantation est à l'origine d'une émission (parasite) supplémentaire de neutrons de plus faible énergie puisque les deutons incidents ont déjà traversé la couche de Ti et la couche de cuivre précédant la zone d'implantation. Cet effet est illustré par la figure (3.16). La figure (3.16 a) présente le spectre des protons de recul émis par un radiateur de 30 μm d'épaisseur. Les neutrons incidents ($\bar{E}_n = 5,4 \text{ MeV}$) proviennent d'une cible de titane deutéré ayant déjà subi une irradiation continue de deutons durant 8 h. Le spectre présenté correspond à une mesure de deux heures.

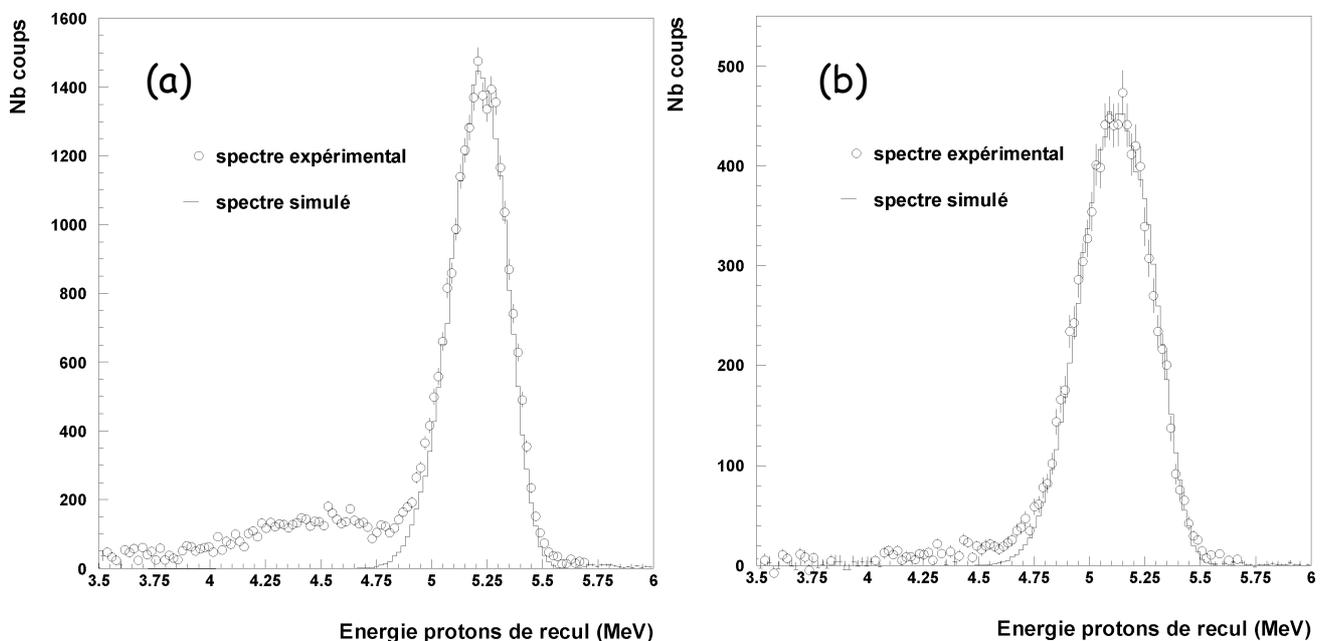


Figure 3.16 : Spectres en énergie des protons de recul détectés et simulés pour des neutrons de 5,4 MeV (Energie des deutons= 2,25 MeV) et pour un radiateur de polypropylène de 30 (a) et 50 (b) μm d'épaisseur. Le spectre de la figure (b) est obtenu après avoir tourné la cible TiD.

La densité de deutons résultant de l'implantation atteint alors 27 % de celle de la cible principale. Cette valeur est en bon accord avec le flux de neutrons associé aux protons de recul détectés entre 3,75 et 4,9 MeV. Pour vérifier cette implantation, la cible ci-dessus a été placée sur un support mécanique excentré dont la rotation permet au faisceau de deutons d'interagir avec une zone non irradiée de la cible. Le spectre mesuré des protons de recul émis par un radiateur de 50 μm d'épaisseur est présenté sur la figure (3.16 b). La durée de la mesure est de une heure. On notera que la contribution des neutrons parasites dans la gamme d'énergie (3,5 à 4,9 MeV) ne représente plus que 6 % du nombre total de protons détectés. Pour limiter ce phénomène, les irradiations par faisceau de deutons ont été effectuées en bombardant les cibles sur leur périphérie, par rotation successive afin d'irradier une zone non implantée.

Les deux derniers spectres présentés sur la figure (3.14) sont obtenus de cette manière. Il reste, néanmoins, comme pour les deux premiers spectres, une contribution à basse énergie due à la distribution de tritium ou de deutérium à l'intérieur du support de cuivre des cibles. Il faudra en tenir compte dans le calcul du flux de neutrons intervenant dans la détermination de la section efficace de fission des noyaux étudiés. Nous verrons dans le prochain chapitre de quelle manière nous avons pris en compte ces effets pour les soustraire à nos résultats.

3.4.4 Détermination du flux de neutrons arrivant sur les cibles étudiées

L'équation (2.2) permet de déterminer le flux de neutrons arrivant sur le radiateur. Qu'en est-il du flux de neutrons arrivant sur les cibles d'uranium ou de thorium.

La figure (3.17) montre la distribution angulaire des neutrons produits par la réaction $D(d, n)^3\text{He}$ dans le système du laboratoire pour des angles compris entre 0 et 30° pour plusieurs énergies de deuton. Ces distributions sont extraites des données publiées par H. Liskien et al. Chaque distribution angulaire est pratiquement constante entre 0 et 5° pour des deutons d'énergie de 1 à 3,5 MeV (écart par rapport à la distribution angulaire à 0° < 2 %). Compte tenu de la faible ouverture angulaire de notre dispositif expérimental (< 8°), la distribution angulaire des neutrons arrivant sur chaque cible à étudier peut être assimilée à une distribution constante.

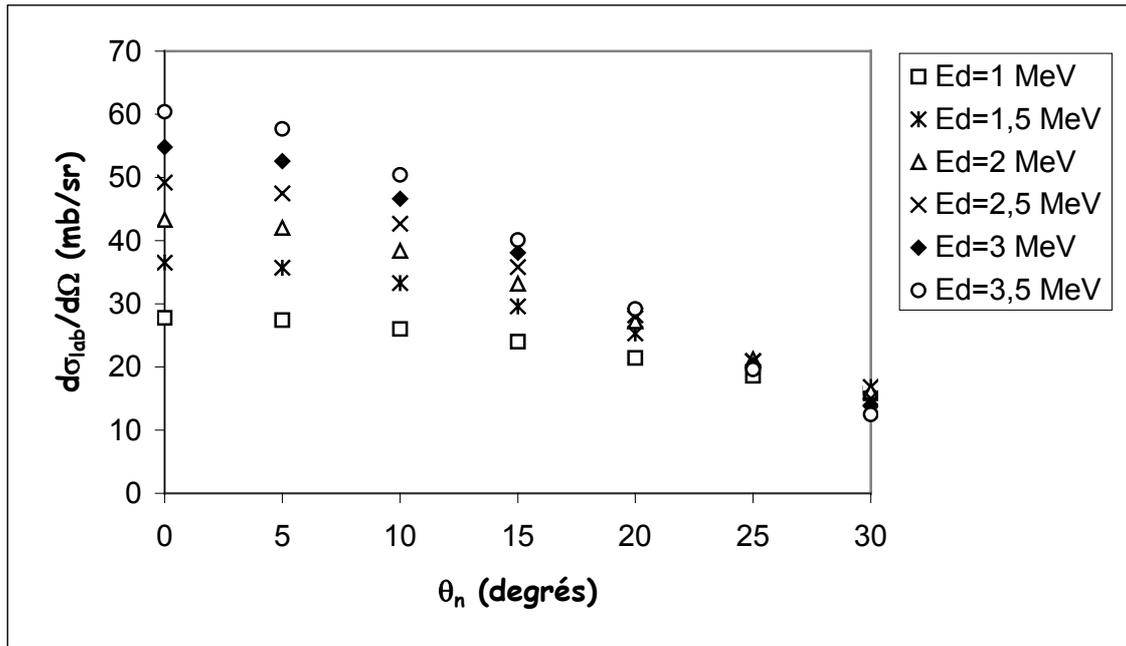


Figure 3.17 : distribution angulaire dans le système du laboratoire des neutrons produits par la réaction $D(d, n)^3\text{He}$ en fonction de leur angle d'émission compris entre 0 et 30° à plusieurs énergies de deuteron. Ces données, publiées par H. Liskien et A. Paulsen [Lis73] sont des ajustements sur les données expérimentales les plus fiables.

Le flux de neutrons à l'énergie moyenne E_n arrivant sur chaque cible étudiée s'écrit de la manière suivante :

$$\Phi_n(E_n) = \frac{\Omega_{\text{cible}}}{\Omega_{\text{rad}}} \cdot \Phi'_n(E_n) = \frac{\Omega_{\text{cible}}}{\Omega_{\text{rad}}} \cdot \frac{N_p^{\text{det}}}{\sigma_{np}(E_n) \cdot N_H \cdot \varepsilon_p \cdot \Delta t} \quad (3.14)$$

avec $\left\{ \begin{array}{l} \Omega_{\text{cible}} : \text{angle solide géométrique formé par la source de neutrons et} \\ \text{la cible à étudier.} \\ \Omega_{\text{rad}} : \text{angle solide géométrique formé par la source de neutrons et} \\ \text{le radiateur.} \end{array} \right.$

Ω_{cible} et Ω_{rad} sont déterminés par simulation. Les résultats sont équivalents à ceux obtenus pour une source ponctuelle placée à une distance d d'un disque de rayon r :

$$\Omega_{\text{sp}} = 2\pi(1 - \cos \theta), \text{ avec } \theta = \arctan\left(\frac{r}{d}\right) \quad (3.15)$$

L'approximation d'un flux de neutrons isotrope aux petits angles est également applicable pour les réactions $T(p, n)^3\text{He}$ [Lis73] et ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ [Lis75] car les distributions angulaires des neutrons produits dans le centre de masse ont un degré d'anisotropie plus faible que celui de la réaction $D(d, n)^3\text{He}$.

3.4.5 Validation expérimentale de notre méthode

Le bon fonctionnement du dispositif de détection et la détermination du flux de neutrons arrivant sur le film de polypropylène et sur les cibles d'actinides étudiées ont été vérifiés à partir d'une technique totalement différente de celle utilisée dans ce travail. Il s'agit d'une mesure du flux de neutrons par la méthode d'activation. Dans la gamme d'énergie de neutrons comprise entre 4 et 7 MeV, la réaction souvent employée est la diffusion inélastique $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ [Sm75]. L'état isomérique $^{115\text{m}}\text{In}$ présente une durée de demi vie de 4,486 heures. Il se désintègre dans 45,9 % des cas par émission de photons γ d'énergie égale à 336 keV. Connaissant la section efficace de formation de l'état isomérique $^{115\text{m}}\text{In}$, le taux de production de ce γ de 336 keV permet de remonter au flux de neutrons arrivant sur l'échantillon d'indium.

Deux échantillons circulaires d'indium naturel (95,72% ^{115}In et 4,28 % ^{113}In) de 1 mm d'épaisseur ont été placés dans l'axe du flux de neutrons incident produit par la réaction $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ à deux endroits différents. Le premier, de 10 mm de diamètre, est placé dos à dos à la cible à étudier alors que le second, de 25 mm de diamètre, est dos à dos au film de polypropylène. Ils ont été irradiés pendant environ quatre heures. Pour un flux de neutrons Φ_n ($\text{n}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$) arrivant sur les échantillons, la variation du nombre de noyaux d' $^{115\text{m}}\text{In}$ ($N^m(t)$) à l'instant t de l'irradiation s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{dN^m(t)}{dt} = \sigma \cdot \Phi_n \cdot N(t) - \lambda \cdot N^m(t) \quad (3.16)$$

avec :

$N(t)$: nombre de noyaux d' ^{115}In à l'instant t .

σ : section efficace de la réaction $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ pour des neutrons d'énergie E_n .

λ : constante radioactive de l'état isomérique $^{115\text{m}}\text{In}$ ($\lambda = 4,292 \text{ s}^{-1}$).

La résolution de l'équation différentielle (3.16) permet de déterminer l'activité $A^m(t_i)$ acquise par chaque échantillon au bout de t_i secondes :

$$A^m(t_i) = \lambda \cdot N_0 \cdot \frac{\sigma \cdot \Phi_n}{(\sigma \cdot \Phi_n - \lambda)} \cdot \left(1 - e^{-(\sigma \cdot \Phi_n - \lambda)t_i}\right) \cdot e^{-\lambda t_i} \quad (3.17)$$

où N_0 est le nombre de noyaux d' ^{115}In contenus initialement dans l'échantillon.

Après irradiation, deux chaînes de comptages γ (détecteurs germanium) ont été utilisées pour déterminer l'activité γ de chaque échantillon d'indium. Le nombre de γ détectés est donné par la relation suivante :

$$N_{\gamma}^{\text{det}} = 0,459 \times \varepsilon \times \frac{A^m(t_i)}{\lambda} \times e^{-\lambda \Delta t_0} (1 - e^{-\lambda \Delta t}) \quad (3.18)$$

0,459 : rapport d'embranchement de la décroissance isomérique.

t_i : temps d'irradiation (≈ 4 h).

ε : efficacité du détecteur germanium ($\varepsilon = 2$ %).

$A^m(t_i)$: activité de l'échantillon d'indium en fin d'irradiation.

Δt_0 : temps écoulé entre la fin d'irradiation (t_i) et le début du comptage de chaque échantillon.

Δt : durée du comptage de chaque échantillon d'indium.

La figure (3.18) représente les données de la base américaine ENDF/B-VI concernant la section efficace de la réaction $^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$, comparées à quelques données expérimentales en fonction de l'énergie des neutrons incidents.

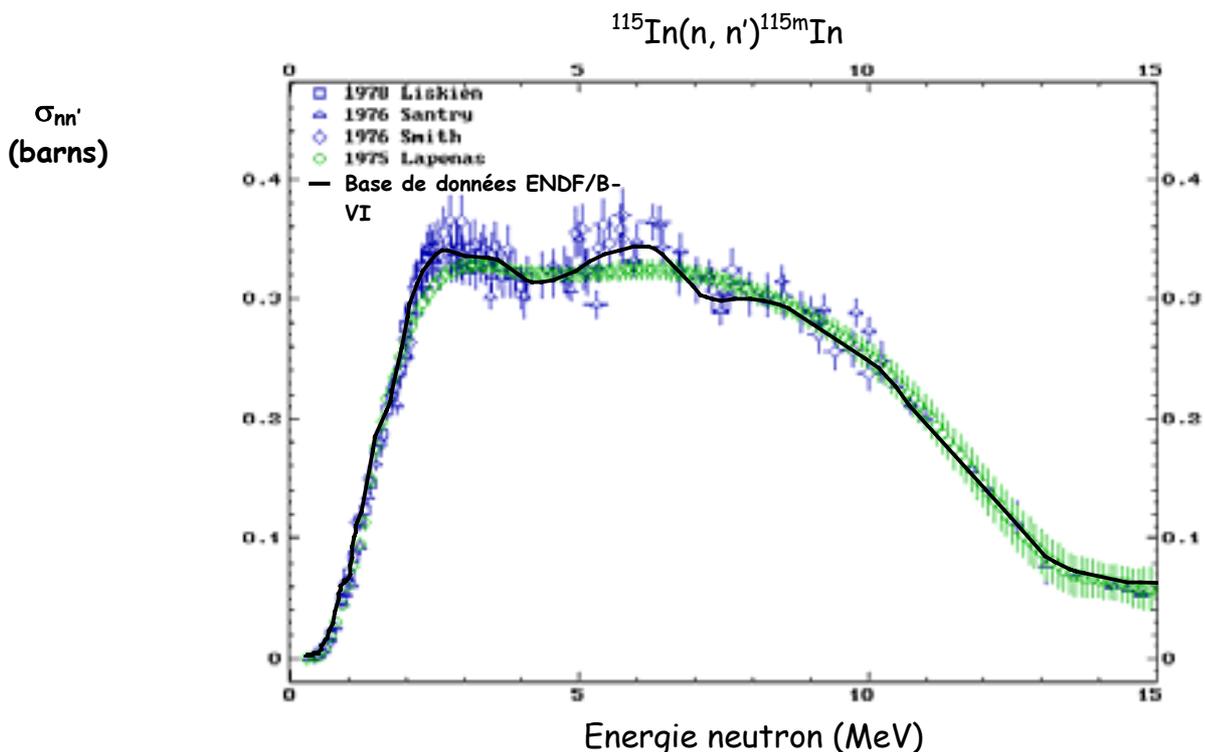


Figure 3.18 : Section efficace de la réaction $^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$ en fonction de l'énergie des neutrons incidents extraite de données expérimentales et de la base américaine ENDF/B- VI.

Le flux de neutrons produits lors de nos mesures est typiquement de l'ordre de 10^6 n/s/cm². Le produit $\sigma \times \Phi_n$ pour des neutrons rapides n'excède pas 10^{-18} s⁻¹. En introduisant dans l'équation (3.18) l'approximation $\sigma \cdot \Phi_n \ll \lambda$, nous obtenons pour l'activité de l'échantillon en fin d'irradiation l'expression suivante :

$$A^m(t_i) = N_0 \cdot \sigma \cdot \Phi_n \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (3.19)$$

Connaissant σ , nous en déduisons le flux de neutrons à l'énergie E_n :

$$\Phi_n(E_n) = \frac{\lambda \times N_\gamma^{\text{det}} \times e^{\lambda \Delta t_0}}{0,459 \times \varepsilon \times N_0 \times \sigma(E_n) \times (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot (1 - e^{-\lambda \Delta t})} \quad (3.20)$$

Nous avons utilisé la section efficace de la réaction $^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$ proposée par la base de données ENDF/B-VI. La précision de ces données est de 7% environ sur la gamme en énergie de nos mesures. Sur la figure (3.19), sont reportés les résultats des flux de neutrons arrivant sur le radiateur et la cible d'²³³U mesurés simultanément par méthode d'activation et par la réaction de diffusion (n, p). Ces flux ont été déterminés respectivement par les équations (3.14) et (3.20) à différentes énergies de neutrons. Dans les deux cas, l'accord entre les deux techniques est meilleur que 3%. Cet accord valide notre méthode de détermination du flux de neutrons à partir de la diffusion (n, p).

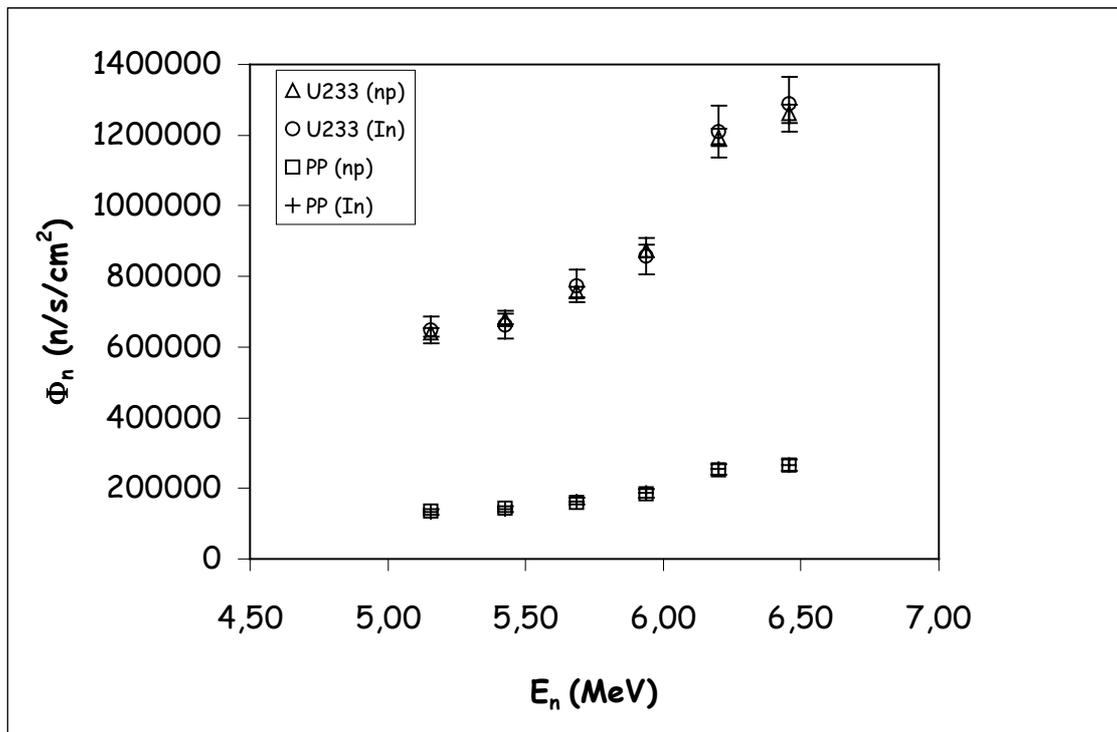


Figure 3.19: Comparaison du flux de neutrons arrivant sur la cible d'²³³U et le film de polypropylène mesuré par diffusion (n, p) et celui déterminé après l'activation d'échantillons d'indium pour des neutrons de 5 à 6,5 MeV. Cette méthode utilise comme standard de référence, la diffusion inélastique $^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$.

Chapitre 4 Présentation et analyse des sections efficaces de fission mesurées

Les chapitres 2 et 3 nous ont permis de définir notre dispositif de mesure, ses caractéristiques et ses performances. En particulier, le choix du radiateur de protons de recul et la géométrie de détection de ces protons ont été discutés. Les spectres en énergie des protons de recul mesurés au cours de ces expériences ont été également présentés et analysés. Nous allons maintenant présenter la méthode utilisée pour déterminer les sections efficaces de fission induites par neutrons du ^{232}Th et de ^{233}U qui constituent l'objectif de ce travail.

4.1 Méthode d'analyse et application à la réaction $^{238}\text{U}(n, f)$

Nous rappelons que les sections efficaces de fission que nous devons déterminer sont déduites de la relation suivante :

$$\sigma_f(E_n) = \frac{\Omega_{\text{rad}}}{\Omega_{^{238}\text{U}}} \cdot \frac{N_f^{\text{det}}}{N_p^{\text{det}}} \cdot \frac{N_H}{N_{\text{at}}^{^{238}\text{U}}} \cdot \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_f} \cdot \sigma_{\text{np}}(E_n) \quad (4.1)$$

Cette relation est uniquement valable pour un flux de neutrons monoénergétiques. Or il a été vu à la fin du chapitre 3 que le flux de neutrons mesuré à partir de la détection des protons de recul ne remplit pas exactement cette condition (voir figure 3.14). Le flux principal de neutrons est accompagné d'un flux secondaire de plus faible énergie et dont l'intensité ne peut être négligée. En effet, ces neutrons secondaires vont eux-mêmes générer des fissions supplémentaires venant s'ajouter aux fissions induites par le flux de neutrons principal. La méthode d'élimination de ces fissions parasites a été validée à partir de la section efficace de fission de ^{238}U dont la mesure a été réalisée simultanément avec celle du ^{232}Th . Ce choix est justifié par le fait que la section efficace de fission de ^{238}U est bien connue dans la gamme d'énergie de neutrons rapides étudiée (entre 4 et 7 MeV). D'après la figure (1.6), l'écart entre les différentes bibliothèques de données nucléaires ne dépasse pas 3 %.

Tous les spectres de protons de recul que nous avons mesurés, présentent une distribution continue asymétrique dont les énergies les plus basses se situent à 1 voire 2 MeV de l'énergie la plus probable des protons de recul détectés. Cette distribution représente le spectre en énergie des neutrons arrivant sur le radiateur. La contribution des protons parasites (et des neutrons correspondants) est estimée de la manière suivante : Le spectre principal des protons de recul obtenu par simulation est soustrait du spectre total. La figure (4.1) illustre la procédure. Le spectre résiduel après soustraction représente le flux parasite de neutrons arrivant sur le radiateur. Il s'agit d'un spectre continu qui est ensuite découpé en tranches de largeur égale. Cette largeur est fixée par la résolution globale du télescope à protons de recul.

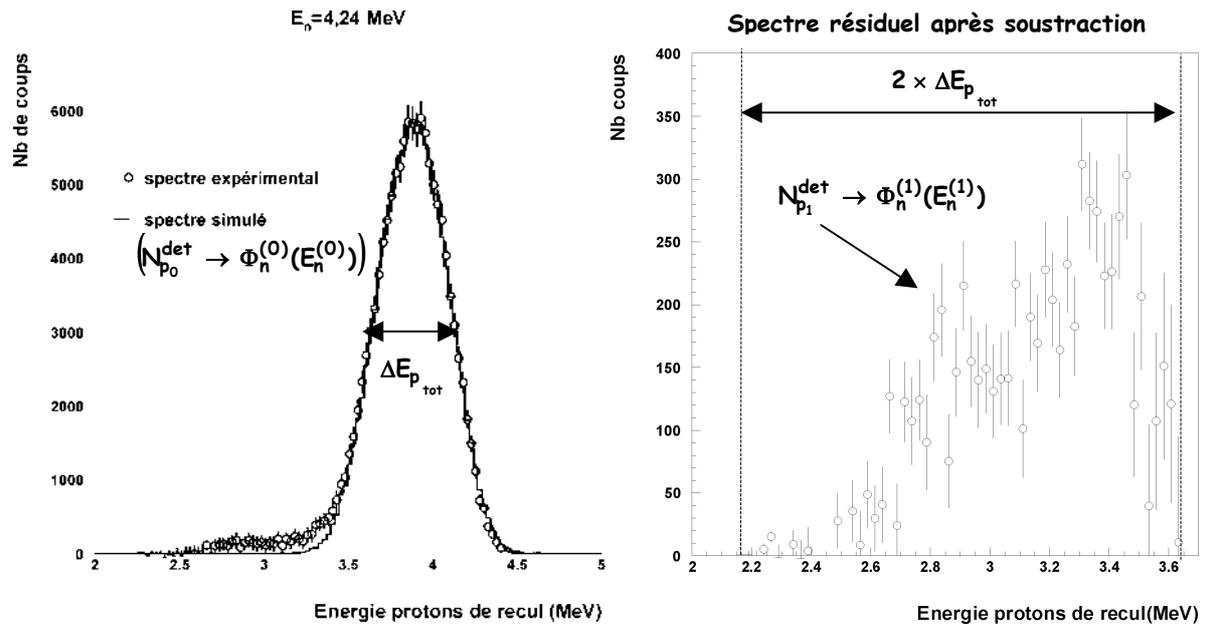


Figure 4.1 : Spectres en énergie des protons de recul détectés par le télescope et simulés pour des neutrons de 4,2 MeV et un film de polypropylène de 50 μm . Application de la méthode de découpage permettant de définir deux tranches. La première tranche correspond au nombre de protons ($N_{p_0}^{\text{det}}$) contenus dans le spectre simulé. Il est associé au flux de neutrons principal ($\Phi_n^{(0)}$). La seconde contient le nombre de protons ($N_{p_1}^{\text{det}}$) associé au flux de neutrons ($\Phi_n^{(1)}$) de plus basse énergie dû à l'implantation des deutons dans la cible TiD. Ce nombre correspond ici au nombre de coups contenus dans le spectre expérimental après soustraction du spectre simulé entre 2,2 MeV et 3,6 MeV.

La somme des protons de recul dans chaque tranche ($N_{p_{\text{det}}}^{(i)}$) permet de calculer l'intensité des différents groupes de neutrons ($\Phi_n^{(i)}$ et $\Phi_{n_{\text{rad}}}^{(i)}$) arrivant sur le radiateur et les cibles étudiées. Pour chacune des tranches l'énergie moyenne des protons de recul ($E_{p_{\text{tot}}}^{(i)}$) est utilisée pour calculer l'énergie moyenne ($E_n^{(i)}$) du groupe de neutrons (i) arrivant sur le radiateur. L'indice $i = 0$ est associé au groupe principal et $i > 0$ désigne les groupes de neutrons parasites. Le nombre de fissions détectées (N_f^{det}) lors d'une irradiation de durée Δt s'écrit de la manière suivante :

$$N_f^{\text{det}} = \alpha_{\text{cible}} \cdot \sum_i \Phi_n^{(i)}(E_n^{(i)}) \cdot \sigma_f^{(i)}(E_n^{(i)}) \quad (4.2)$$

$$\text{avec} \begin{cases} \Phi_n^{(i)}(E_n^{(i)}) = \frac{\Omega_{\text{cible}}}{\Omega_{\text{rad}}} \times \Phi_{n_{\text{rad}}}^{(i)}(E_n^{(i)}) = \frac{\Omega_{\text{cible}}}{\Omega_{\text{rad}}} \times \frac{N_{p_{\text{det}}}^{(i)}(E_{p_{\text{tot}}}^{(i)})}{N_H \cdot \varepsilon_p \cdot \sigma_{\text{np}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \cdot \Delta t} \\ \alpha_{\text{cible}} = N_{\text{at}}^{\text{cible}} \times \varepsilon_f \times \Delta t \end{cases} \quad (4.3)$$

Le terme α_{cible} regroupe les données relatives au système de détection des fragments de fission (nombre d'atomes de l'actinide étudié présent dans la cible $N_{\text{at}}^{\text{cible}}$, efficacité de détection ε_f).

Les quantités $\sigma_{np}^{(i)}$ et $\sigma_f^{(i)}$ sont associées respectivement aux sections efficaces de diffusion élastique (n, p) et de fission pour une énergie moyenne de neutron $E_n^{(i)}$. Le terme $\sigma_{np}^{(i)}$ est déterminé par la formule de Gammel (équation 2.4) et le terme $\sigma_f^{(i)}$ est obtenu en effectuant la moyenne des sections efficaces de fission à l'énergie $E_n^{(i)}$ données par les différentes bibliothèques (ENDF/B-VI, JENDL-3.3, BROND-2 et JEFF-3.0).

La section efficace de fission que nous cherchons à déterminer correspond au terme $\sigma_f^{(0)}$ associé à l'énergie de neutron la plus probable, c'est à dire à l'énergie moyenne $E_n^{(0)}$ du flux de neutrons principal. Le nombre de fragments de fission détectés étant obtenu à partir de l'intégration des spectres en amplitude enregistrés pour chaque mesure, il est possible d'extraire de l'équation (4.3), l'expression de la section efficace de fission de l'actinide étudié à l'énergie $E_n^{(0)}$:

$$\sigma_f^{(0)}(E_n^{(0)}) = \frac{N_f^{\text{det}}}{\alpha_{\text{cible}} \times \Phi_n^{(0)}} - \sum_{i>0} \frac{\Phi_n^{(i)}}{\Phi_n^{(0)}} \cdot \sigma_f^{(i)}(E_n^{(i)}) \quad (4.4)$$

- Le premier terme, que l'on notera σ_{fp} , représente la section efficace de fission apparente associée au flux de neutrons principal $\Phi_n^{(0)}$ d'énergie moyenne $E_n^{(0)}$.
- Le second, noté $\sigma_{f_{\text{corr}}}$, est un terme correctif associé aux différents flux de neutrons parasites $\Phi_n^{(i)}$ d'énergie $E_n^{(i)}$.

A partir de la relation précédente et de l'expression du flux de neutrons ($\Phi_n^{(i)}$) de chacune des tranches d'énergie moyenne $E_n^{(i)}$ établie en (4.3), on aboutit à l'expression suivante :

$$\sigma_f^{(0)}(E_n^{(0)}) = \sigma_{fp}(E_n^{(0)}) - \sigma_{f_{\text{corr}}}(E_n^{(i)} < E_n^{(0)}) \quad \text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{fp}(E_n^{(0)}) = \frac{N_f^{\text{det}}}{\alpha_{\text{cible}} \times \Phi_n^{(0)}(E_n^{(0)})} \\ \sigma_{f_{\text{corr}}} = \sum_{i>0} \frac{N_{p_{\text{det}}}^{(i)}}{N_{p_{\text{det}}}^{(0)}} \cdot \frac{\sigma_{np}^{(0)}}{\sigma_{np}^{(i)}} \cdot \sigma_f^{(i)}(E_n^{(i)}) \end{array} \right. \quad (4.5)$$

Prenons, comme exemple d'application, le spectre en énergie des protons de recul détectés de la figure (4.1). Le découpage du spectre en deux tranches est suffisant. Le tableau (4.1) rassemble les différentes valeurs des paramètres intervenant dans l'équation (4.5) pour deux tranches en énergie.

^{238}U									
tranche (i)	$E_n^{(i)}$ MeV	$\Omega_{^{238}\text{U}}$ msr	Ω_{rad} msr	N_f^{det}	$\sigma_f^{(i)}$ barns	ε_f %	$N_{\text{Pdet}}^{(i)}(E_{\text{Ptot}}^{(i)})$	$\varepsilon_n^{(a)}$ 10^{-3} %	$\Phi_n^{(i)}(E_n^{(i)})$ $10^5 \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$
0	4,24	44,7±0,4	23,0±0,3	15034	à déterminer	68,2±1,1	121922±382	0,69±0,01	8,56±0,26
1	3,36				0,535±0,005		8005±430		0,80±0,01

Tableau 4.1 : Liste des différents paramètres intervenant dans la mesure de la section efficace de fission de ^{238}U induite par des neutrons de 4,24 MeV.

(a) : efficacité de détection des neutrons $\varepsilon_n^{(i)} = \frac{N_H \times \sigma_{np}^{(i)} \times \varepsilon_p}{S_{\text{rad}}}$. Le terme S_{rad} représente la surface du radiateur.

D'après le tableau (4.1), on notera que le flux de neutrons parasites correspond à une contribution de l'ordre de 6 % du flux de neutrons principal.

La figure (4.2) présente les résultats de notre analyse et son application à la détermination de la section efficace de fission de ^{238}U induite par neutrons rapides. L'énergie de ces neutrons s'étend entre 4 et 7 MeV. Nos mesures concernent donc la fission de première chance et l'ouverture de la fission de seconde chance (de 6 à 7 MeV) de ce noyau. Ces résultats sont comparés aux données des bases ENDF/B-VI, JENDL-3.3. Nous avons choisis de présenter les mesures de J.W. Behrens et G.W. Carlson dont l'évaluation figure dans les bases de données neutroniques ci-dessus. Elles sont complétées par des mesures plus récentes effectuées par O.A. Shcherbakov et collaborateurs.

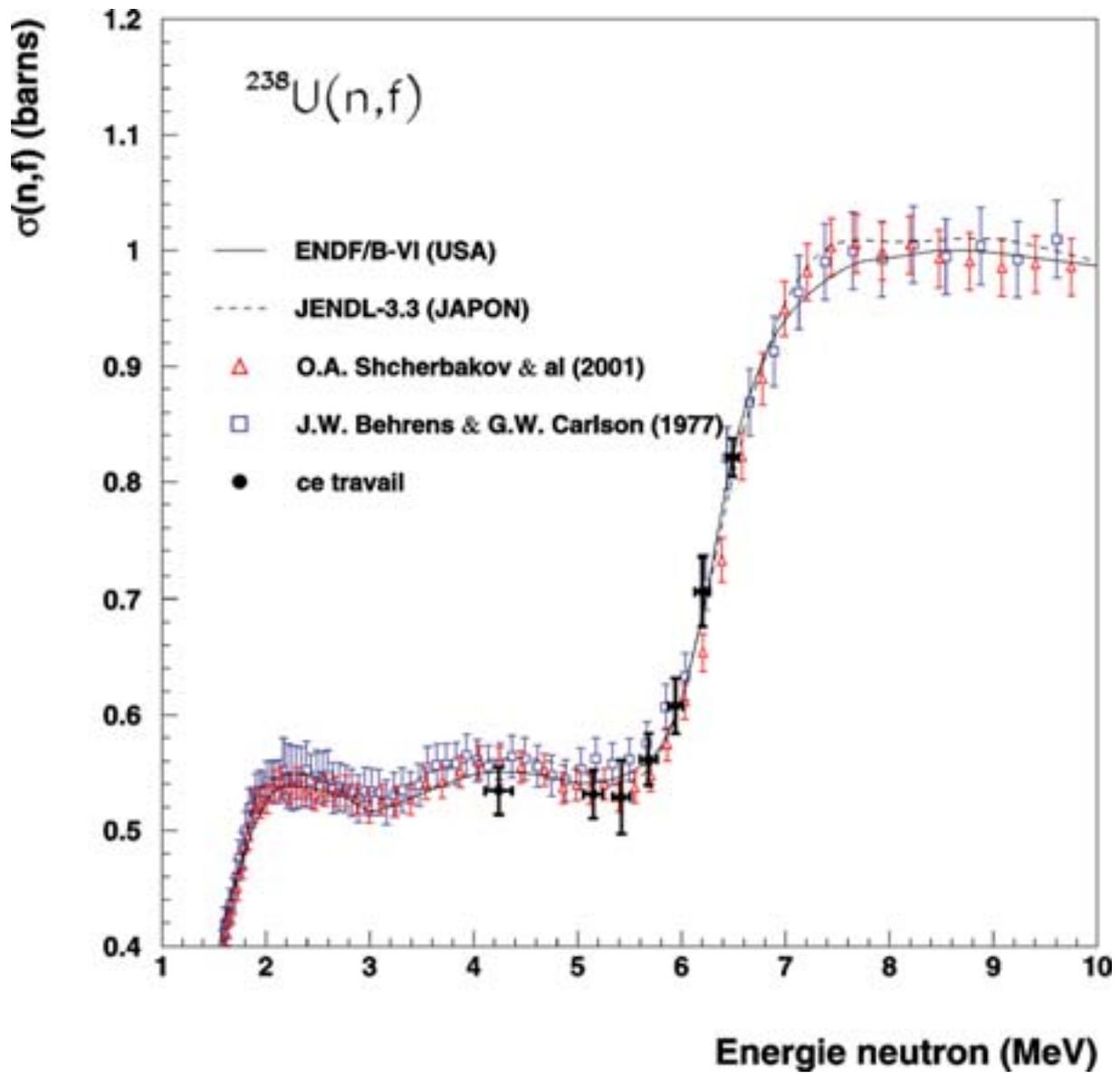


Figure 4.2 : Section efficace de fission de l' ^{238}U mesurée au C.E.N.B.G. en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Les résultats sont comparés aux données des bases ENDF/B-VI, JENDL-3.3 et aux mesures de J.W Behrens [Beh77] et de O.A. Shcherbakov [Sh01].

Globalement, nos mesures sont en bon accord avec l'ensemble des données présentées (évaluées et mesurées). L'incertitude associée à chaque mesure est de l'ordre de 4 % en moyenne. Ces résultats valident donc la méthode expérimentale utilisée. On adoptera, par la suite, la même technique pour déterminer les sections efficaces de fission du ^{232}Th et de ^{233}U qui sont les objectifs de ce travail.

4.2 Détermination de la section efficace de fission du ^{232}Th induite par neutrons rapides

La section efficace de ce noyau non fissile présente les mêmes caractéristiques que celles de ^{238}U . Deux caractéristiques importantes, néanmoins, le différencient de ce dernier : son seuil de fission se situe au voisinage du MeV (1,6 MeV pour ^{238}U) et présente alors plusieurs résonances larges dont la première est centrée à $E_n = 1,58$ MeV. En outre, sa section efficace de fission induite par des neutrons d'énergie inférieure à 10 MeV est environ 3 fois plus faible que celle de ^{238}U . La section efficace de fission de première chance est inférieure à 150 mb.

Comme nous l'avons précisé, les sections efficaces de fission du ^{232}Th et de ^{238}U ont été mesurées simultanément pour une gamme en énergie de neutron comprise entre 4 et 7 MeV. Les neutrons incidents sont alors produits par la réaction $\text{D}(d, n)^3\text{He}$. Cette étude a été complétée par une mesure au sommet de la résonance à 1,58 MeV. A cette énergie, la mesure a été réalisée à partir de la réaction $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ et $\text{T}(p, n)^3\text{He}$. Deux énergies adjacentes ($E_n = 1,59$ et $1,63$ MeV) de neutron ont été utilisées pour repérer le sommet de la résonance. Une première série de mesures a été effectuée à l'aide de la réaction $^7\text{Li}(p, n)^3\text{He}$ à une énergie de proton de 3,3 MeV. Dans ces conditions le faisceau de neutrons produit est composé de deux groupes. Le groupe principal est associé à l'état fondamental du ^7Be et le second lorsque le ^7Be est dans son premier état excité (0,431 MeV). Ce groupe parasite pour nos mesures correspond à des neutrons de plus faible énergie et de plus faible intensité que le groupe principal. Comme nous l'avons montré au chapitre 3, notre télescope à protons de recul nous a permis d'identifier le groupe de neutrons principal ($E_n \approx 1,58$ MeV). La faible intensité du groupe de neutrons secondaire et la faible valeur de la section efficace de fission du ^{232}Th à l'énergie correspondante permettent de penser que la contribution de ce second groupe est tout à fait négligeable. Pour vérification, une expérience complémentaire a été effectuée à une énergie de neutron voisine. Ces neutrons ont été produits, cette fois, à partir de la réaction $\text{T}(p, n)^3\text{He}$. Les sections efficaces de fission du ^{232}Th obtenus dans ces deux cas sont en excellent accord.

Nos mesures sont présentées sur la figure (4.3). Une présentation identique à celle de ^{238}U a été choisie. Elles sont en bon accord avec les résultats publiés récemment par O.A. Shcherbakov et B.I. Fursov. L'ensemble de ces mesures suggère également que la section efficace de fission du ^{232}Th est légèrement sous estimée par les bibliothèques de données (en particulier ENDF/B-VI) entre 3 et 6 MeV.

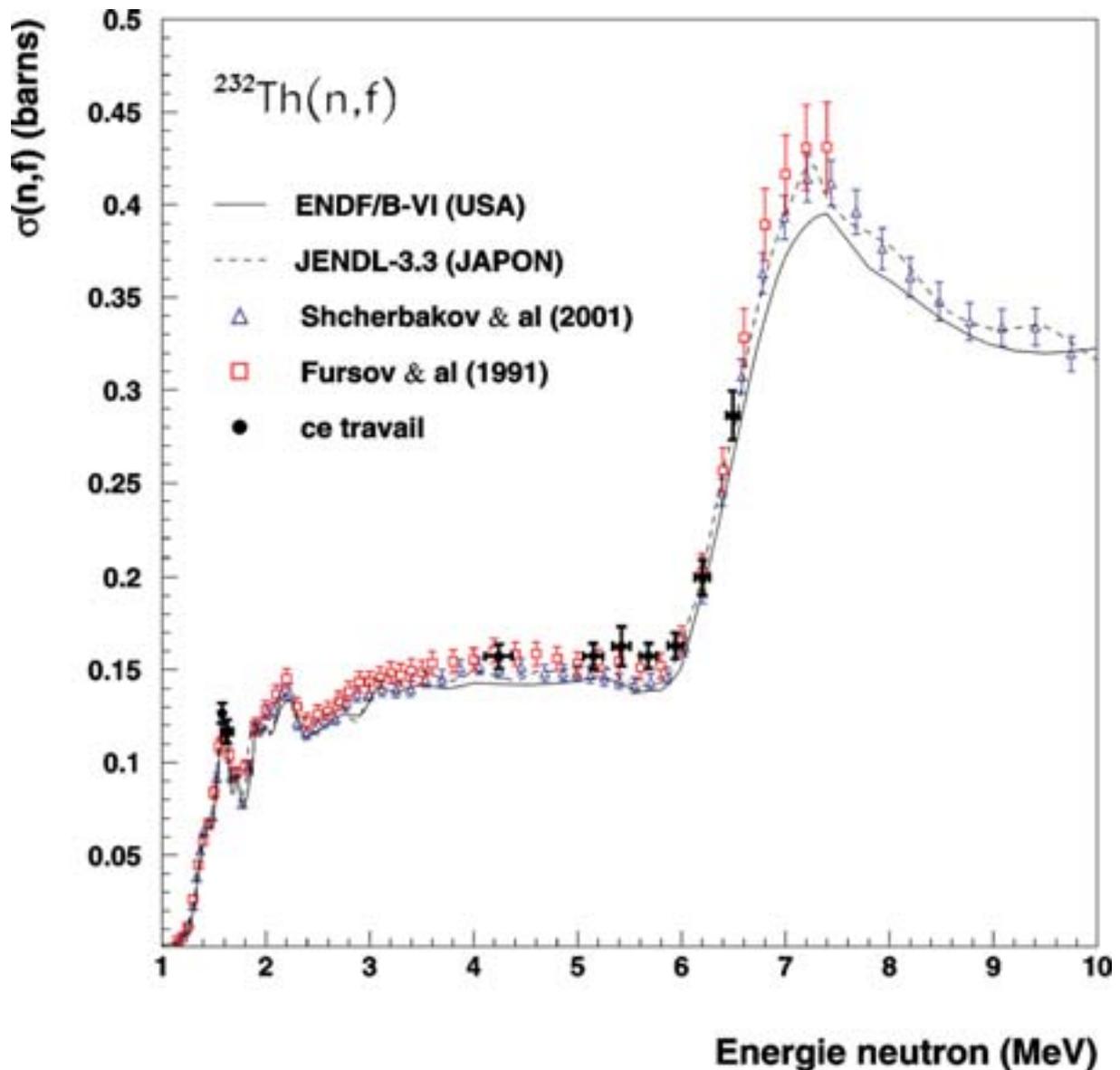


Figure 4.3 : section efficace de fission du ^{232}Th pour des neutrons de 1 à 10 MeV mesurée au CENBG. Ces mesures sont comparées avec les données des bases ENDF/B-VI, JENDL-3.3 et avec les données expérimentales de O.A. Shcherbakov [Sh01] et de B.I. Fursov [Fu91] qui ont été mesurées par rapport à la section efficace de fission de l' ^{235}U .

La précision de nos mesures (~4,5 %) répond à la demande actuelle et justifie le choix de la diffusion élastique comme standard de référence pour les mesures de sections efficaces neutroniques dans cette gamme d'énergie.

4.3 Détermination de la section efficace de fission de l'²³³U induite par neutrons rapides

4.3.1 Présentation des mesures

Les sections efficaces de fission mesurées de deux noyaux non fissiles (²³²Th et ²³⁸U) ont été présentées. L'analyse des mesures pour la réaction ²³⁸U(n, f) nous a permis d'exposer et de valider notre méthode concernant le traitement des spectres des protons de recul et leur correction dont est extrait le flux de neutrons arrivant sur ces cibles. Nous avons pu montrer que ces flux de neutrons ne sont pas strictement monoénergétiques (à la résolution près), mais présentent une composante de plus basse énergie dont la contribution a été soustraite.

Les mêmes techniques ont été utilisées lors de l'analyse des données relatives à la réaction ²³³U(n, f). Ces données ont été mesurées à 12 énergies de neutron comprises entre 0,95 et 6,5 MeV. Nos résultats sont présentés sur la figure (4.4) et comparés aux données évaluées extraites des bibliothèques. Pour une énergie de neutron inférieure à 6 MeV, nos mesures sont globalement en bon accord avec les données évaluées. L'incertitude associée à ces mesures est de l'ordre de 4,5 % en moyenne. En revanche, à 6 MeV et au delà, on observe un désaccord important avec ces bibliothèques. Les trois mesures associées font partie de la série de mesures effectuée entre 4 et 6,5 MeV à partir de la réaction D(d, n)³He.

Plusieurs séries de mesures effectuées auprès du V.D.G. du C.E.N.B.G. et auprès du V.D.G. du centre de Bruyères le Châtel ont toutes conduit aux mêmes résultats et la même anomalie concernant l'ouverture de la fission de seconde chance de l'²³³U. Nous venons de voir que ce phénomène n'apparaît pas dans les mesures des noyaux ²³²Th et ²³⁸U effectuées dans des conditions expérimentales identiques. Contrairement aux noyaux ²³²Th et ²³⁸U, l'²³³U est un noyau fissile. La section efficace moyenne de fission de ce noyau augmente donc lorsque l'énergie des neutrons incidents diminue. Nous avons très rapidement incriminé un groupe de neutrons parasites de plus faible énergie pouvant générer des fissions supplémentaires mais indétectables par protons de recul (le seuil du montage télescope est voisin de 2 MeV). L'hypothèse des neutrons thermiques a été très vite éliminée. En effet, plusieurs mesures effectuées à partir d'un blindage complet de l'²³³U à l'aide de feuilles de cadmium, ont permis de montrer que la contribution de neutrons thermiques était tout à fait négligeable.

Deux noyaux légers ¹²C et ¹⁶O sont susceptibles de produire ces neutrons parasites. La réaction ¹²C(d, n)¹³N est endoénergétique (Q=-0,281 MeV). La présence de ¹²C sur la cible de titane deutérée ne peut être exclue et provient des systèmes de pompage et/ou des nombreux joints équipant l'accélérateur. Notre ligne de mesure est équipée d'un piège à azote liquide dont le rôle est de limiter la formation d'un dépôt de carbone sur nos cibles. Deux séries de mesures ont été réalisées impliquant dans la première une cible de cuivre et dans la seconde un film de carbone de 50 µg/cm² déposé sur un support de cuivre. Dans ces deux cas, l'intensité des flux de neutrons générés est nettement insuffisante pour expliquer l'anomalie observée à partir de 6 MeV.

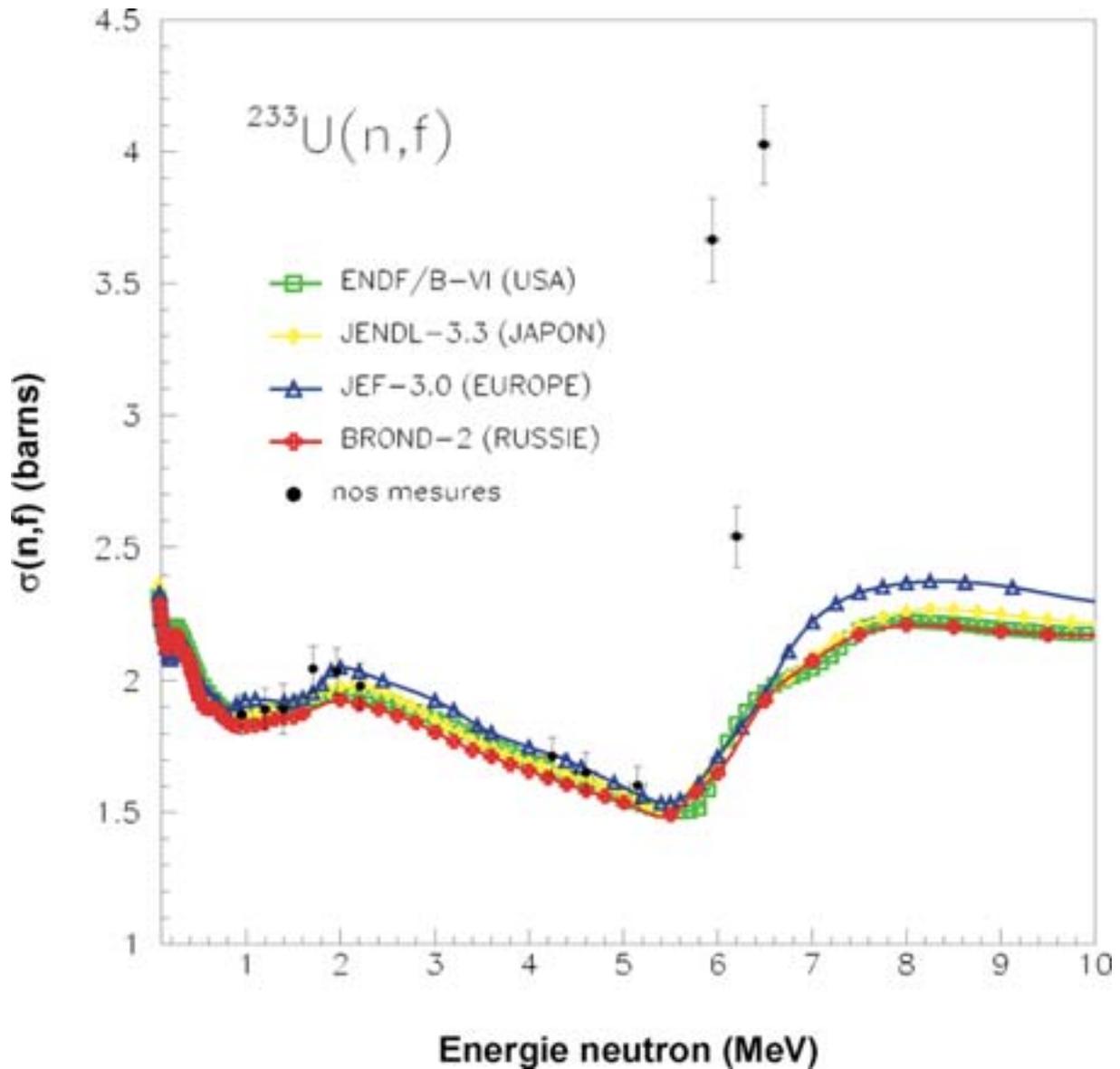


Figure 4.4 : Section efficace de fission de l' ^{233}U mesurée en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Les résultats sont comparés avec les quatre principales bases de données.

C'est finalement vers la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}$ que nous nous sommes orientés puisqu'au moment de ces mesures, des physiciens du centre de Geel [Ob03] ont mis en évidence la présence d' ^{16}O dans leur cible TiD. Nos cibles, comme les leurs, sont fabriquées par la même société (la SODERN). Cette société explique ce phénomène par une phase d'oxydation du support de titane au moment de son imprégnation en tritium. La présence d'oxygène provient du gaz résiduel présent dans l'enceinte à vide où a lieu cette imprégnation.

4.3.2 Rôle de la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}$ pour $E_n \geq 6$ MeV

Cette réaction a fait l'objet de plusieurs travaux ([Yar61], [Lo70]) dont le plus récent remonte à 1980. C'est une réaction endothermique ($Q=-1,624$ MeV). La figure (4.5) présente la section efficace totale de cette réaction. On remarquera que pour des énergies de deuton comprise entre 2 et 4 MeV, la production de neutrons est largement plus importante que celle provenant de la réaction $\text{D}(d, n)^3\text{He}$. A partir de $E_d=2,5$ MeV, la production des neutrons provient des voies de réactions associées à l'état fondamental du ^{17}F et à son premier état excité (0,495 MeV).

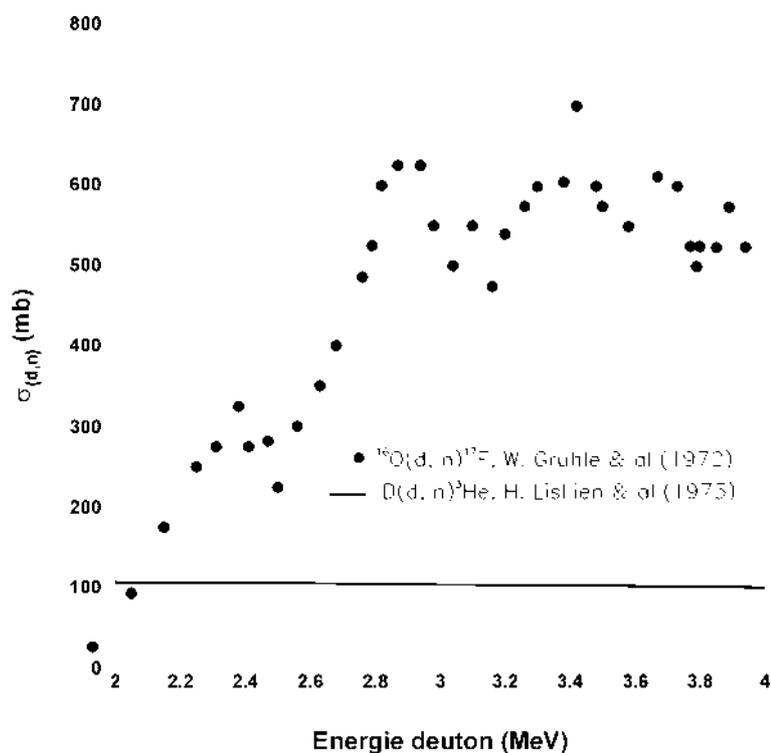


Figure 4.5 : Section efficace de la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}$ pour des deutons d'énergie comprise entre 2 et 4 MeV extraite des données expérimentales de W. Gruhle [Gru72].

Les études citées plus haut ont permis de montrer que les distributions angulaires des neutrons émis dans ces deux voies de réaction présentaient des profils différents. La figure (4.6) présente les sections efficaces différentielles d'émission de neutrons mesurées respectivement à 0° et à 30° du faisceau incident de deutons. On remarquera que la voie $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ est fortement favorisée à 0° par rapport à celle conduisant à la formation du ^{17}F dans son état fondamental. Cette réaction parasite est elle aussi endothermique ($Q=-2,119$ MeV), son énergie seuil est égale à $E_d=2,39$ MeV. Rappelons que la réaction $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ utilisée pour produire les neutrons est une réaction exothermique ($Q=3,27$ MeV).

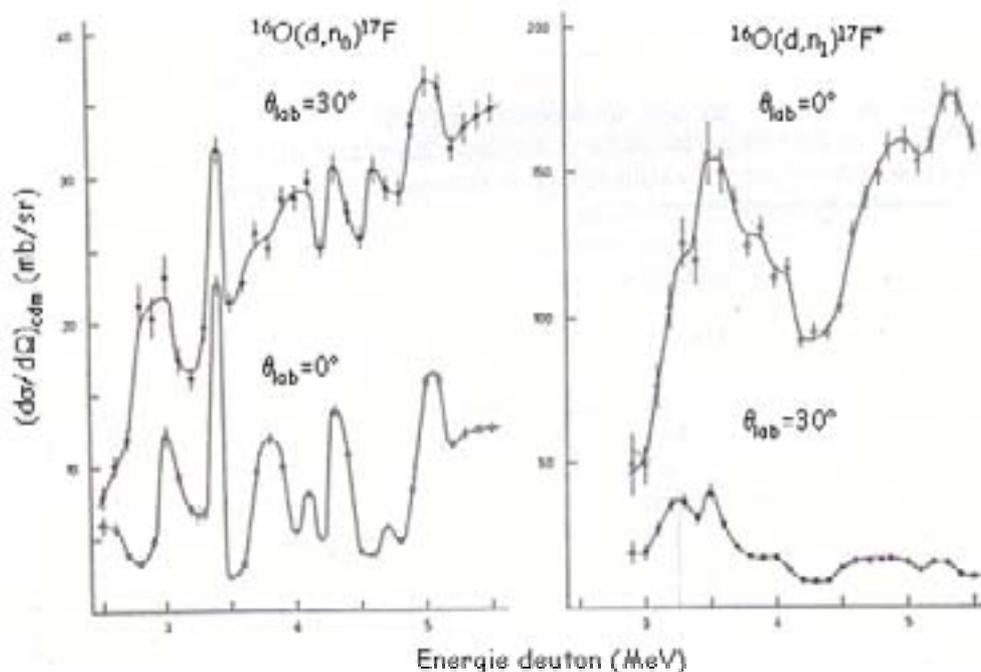


Figure 4.6 : Distributions angulaires dans le centre de masse des neutrons produits par les réactions $^{16}\text{O}(d, n_0)^{17}\text{F}$ et $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ associées à un angle d'émission dans le laboratoire $\theta_{\text{lab}}=0^\circ$ et 30° .

Le bombardement de notre cible de titane deutérée va donc produire un groupe de neutrons parasites de plus faible énergie accompagnant celui venant de la réaction principale. Le tableau (4.2) rassemble les énergies des deux groupes de neutrons produits à 0° pour des énergies de deutons comprises entre 2,5 et 3,25 MeV.

Energie deuton E_d (MeV)	$\text{D}(d, n)^3\text{He}$ E_n (MeV)	$^{16}\text{O}(d, n_0)^{17}\text{F}$ E_{n_0} (MeV)	$^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ E_{n_1} (MeV)
2,5	5,759	0,766	0,189
2,75	6,014	1,021	0,468
3	6,267	1,273	0,730
3,25	6,517	1,524	0,988

Tableau 4.2 : Energies des neutrons produits à 0° par les réactions $\text{D}(d, n)^3\text{He}$, $^{16}\text{O}(d, n_0)^{17}\text{F}$ et $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ pour une énergie de deuton comprise entre 2,5 et 3,25 MeV.

Le groupe de neutrons principal (6 à 6,5 MeV) est accompagné d'un groupe parasite d'énergie inférieure à 1 MeV qui est transparent vis à vis de notre télescope à protons de recul puisque son seuil de détection est supérieur à 2 MeV. En revanche, ce groupe parasite va générer des fissions supplémentaires qui sont vraisemblablement à l'origine de l'anomalie que présentent nos mesures au delà de 6 MeV (figure 4.4). Nous allons maintenant présenter la technique que nous avons utilisée pour corriger nos mesures de ce flux parasite.

4.3.3 Correction des mesures associées à la réaction $^{233}\text{U}(n, f)$ pour $E_n \geq 6 \text{ MeV}$

La méthode utilisée est une extension de celle que nous avons déjà présentée (^{238}U et ^{232}Th) à laquelle s'ajoute la contribution du flux de neutrons parasites provenant de la réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$. Le nombre de fragments de fission détectés durant un temps Δt pour ^{233}U est donnée par l'expression suivante :

$$N_{f_{233\text{U}}}^{\text{det}} = \alpha_{233\text{U}} \left(\sum_i \Phi_{n_{233\text{U}}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \times \sigma_{f_{233\text{U}}}^{(i)}(E_n^{(i)}) + \Phi_{n_{233\text{U}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})}) \times \sigma_{f_{233\text{U}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})}) \right) \quad (4.14)$$

Nous avons vu précédemment que les neutrons produits par la réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ étaient transparents vis à vis de notre télescope. La détermination du flux parasite $\Phi_{n_{233\text{U}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})})$ est donc impossible à partir de la diffusion (n, p). Une autre technique consisterait à déterminer directement ce flux à partir de la section efficace de la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}^*$. Elle n'a pas pu être mise en œuvre car il nous est difficile d'estimer la quantité d'oxygène présente dans nos cibles TiD. Nous avons donc choisi une autre méthode qui consiste à déterminer ce flux de neutrons parasites à partir de la section efficace de fission de ^{235}U . Lors de nos mesures, nous avons décidé de placer dos à dos les cibles d' ^{235}U et d' ^{233}U afin que les flux de neutrons arrivant sur celles-ci soient les plus proches possibles. A partir de la moyenne des sections efficaces de fission de ^{235}U données par les bibliothèques aux différentes énergies neutrons et du nombre de fragments de fission de ^{235}U détectés ($N_{f_{235\text{U}}}^{\text{det}}$), il est possible de déterminer le flux de neutrons parasites produit par la réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ arrivant sur les cibles.

De la même manière que pour ^{233}U , le nombre de fragments de fission détectés durant un temps Δt pour ^{235}U est donnée par l'expression suivante :

$$N_{f_{235\text{U}}}^{\text{det}} = \alpha_{235\text{U}} \left(\sum_i \Phi_{n_{235\text{U}}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \times \sigma_{f_{235\text{U}}}^{(i)}(E_n^{(i)}) + \Phi_{n_{235\text{U}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})}) \times \sigma_{f_{235\text{U}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})}) \right) \quad (4.15)$$

Où $\Phi_{n_{235\text{U}}}^{(16\text{O})}$ correspond au flux de neutrons d'énergie moyenne $E_n^{(16\text{O})}$ produits par la réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ arrivant sur la cible d' ^{235}U et $\sigma_{f_{235\text{U}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})})$ est la moyenne des sections efficaces de fission de ^{235}U issues des bibliothèques à l'énergie de ces neutrons.

A partir de la relation (4.15), on peut extraire le flux de neutrons parasite $\Phi_{n_{235U}}^{(16O)}$ de la manière suivante :

$$\Phi_{n_{235U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)}) = \frac{1}{\sigma_{f_{235U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})} \cdot \left(\frac{N_{f_{235U}}^{det}}{\alpha_{235U}} - \sum_i \Phi_{n_{235U}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \times \sigma_{f_{235U}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \right) \quad (4.16)$$

Connaissant $\Phi_{n_{235U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})$, on en déduit le flux de neutrons parasites arrivant sur l' 233U :

$$\Phi_{n_{233U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)}) = \frac{\Omega_{233U}}{\Omega_{235U}} \times \Phi_{n_{235U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)}) \quad (4.17)$$

Le tableau suivant regroupe les flux de neutrons parasites arrivant sur la cible d' 233U aux trois énergies étudiées comparés à ceux issus de la réaction principale $D(d, n)^3He$.

E_d (MeV)	$E_n^{(0)}$ (MeV)	$E_n^{(16O)}$ (MeV)	$\Phi_{n_{233U}}^{(0)}$ ($s^{-1}.cm^{-2}$)	$\Phi_{n_{233U}}^{(16O)}$ ($s^{-1}.cm^{-2}$)
2,75	5,94	0,39	0,636 10^6	0,626 10^6
3	6,20	0,66	1,417 10^6	0,466 10^6
3,29	6,49	0,96	0,779 10^6	0,749 10^6

Tableau 4.3 : Flux de neutrons arrivant sur la cible 233U issus des voies $D(d, n)^3He$ et $^{16O}(d, n)^{17F^*}$ pour des deutons de 2,75 , 3 et 3,29 MeV.

D'après le tableau (4.3), l'intensité du flux de neutrons parasite est comparable à celle du flux principal pour les énergies de deuton de 2,75 et 3,29 MeV. Pour des deutons de 3 MeV, elle équivaut à 30 % environ de l'intensité du flux principal. Cette baisse de production de neutrons parasites à 3 MeV par rapport à 3,29 MeV est liée à la diminution de la section efficace de la réaction $^{16O}(d, n)^{17F^*}$ (figure 4.6). La contribution de ce flux de neutrons parasites conduit donc à un nombre de fissions parasites important qu'il faut absolument soustraire du nombre de fissions détectés.

La section efficace de fission que l'on cherche à déterminer est représentée par le terme ($\sigma_{f_{233U}}^{(0)}$) de la relation (4.14). A partir de cette équation, on peut donc écrire :

$$\sigma_{f_{233U}}^{(0)}(E_n^{(0)}) = \frac{N_{f_{233U}}^{det}}{\alpha_{233U} \times \underbrace{\Phi_{n_{233U}}^{(0)}(E_n^{(0)})}_{\sigma_p^{233U}(E_n^{(0)})}} - \underbrace{\sum_{i>0} \frac{\Phi_{n_{233U}}^{(i)}(E_n^{(i)})}{\Phi_{n_{233U}}^{(0)}(E_n^{(0)})} \times \sigma_{f_{233U}}^{(i)}(E_n^{(i)})}_{\sigma_{f_{corr}}^{233U}(E_n^{(i)})}} - \underbrace{\frac{\Phi_{n_{233U}}^{(16O)}}{\Phi_{n_{233U}}^{(0)}} \cdot \sigma_{f_{233U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})}_{\sigma_{f_{corr}}^{16O}(E_n^{(16O)})}} \quad (4.18)$$

La relation (4.18) peut s'écrire alors de la manière suivante :

$$\sigma_{f_{233U}}^{(0)}(E_n^{(0)}) = \sigma_{f_p}^{233U}(E_n^{(0)}) - \sigma_{f_{corr}}^{233U}(E_n^{(i)}) - \sigma_{f_{corr}}^{16O}(E_n^{(16O)}) \quad (4.19)$$

On retrouve les deux premiers termes de la relation (4.4) appliquée au noyau ^{233}U , et un troisième ($\sigma_{f_{corr}}^{16O}(E_n^{(16O)})$) associé à la contribution du flux de neutrons parasites issus de la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}^*$.

En développant le rapport $\frac{\Phi_{n_{233U}}^{(16O)}}{\Phi_{n_{233U}}^{(0)}}$ à partir des relations (4.5), (4.16) et (4.17), ce

dernier terme peut s'écrire de la manière suivante :

$$\sigma_{f_{corr}}^{16O}(E_n^{(16O)}) = \frac{\Omega_{233U}}{\underbrace{\Omega_{235U} \times \Phi_{n_{233U}}^{(0)}}_{\Phi_{n_{235U}}^{(0)}}} \cdot \left(\frac{N_{f_{235U}}^{det}}{\alpha_{235U}} - \sum_i \Phi_{n_{235U}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \times \sigma_{f_{235U}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \right) \cdot \frac{\sigma_{f_{233U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})}{\sigma_{f_{235U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})} \quad (4.20)$$

Ou encore :

$$\sigma_{f_{corr}}^{16O}(E_n^{(16O)}) = \frac{\sigma_{f_{233U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})}{\sigma_{f_{235U}}^{(16O)}(E_n^{(16O)})} \times \left[\sigma_{f_p}^{235U}(E_n^{(0)}) - \sigma_{f_{corr}}^{235U}(E_n^{(i)}) - \sigma_{f_{235U}}^{(0)}(E_n^{(0)}) \right] \quad (4.21)$$

$$\text{avec} \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{f_p}^{235U}(E_n^{(0)}) = \frac{N_{f_{235U}}^{det}}{\alpha_{235U} \times \Phi_{n_{235U}}^{(0)}(E_n^{(0)})} \\ \Phi_{n_{235U}}^{(0)}(E_n^{(0)}) = \frac{\Omega_{235U}}{\Omega_{rad}} \times \frac{N_{p_{det}}^{(0)}(E_{p_{tot}}^{(0)})}{N_H \cdot \varepsilon_p \cdot \sigma_{np}^{(0)}(E_n^{(0)}) \cdot \Delta t} \\ \sigma_{f_{corr}}^{235U}(E_n^{(i)}) = \sum_{i>0} \frac{N_{p_{det}}^{(i)}}{N_{p_{det}}^{(0)}} \times \frac{\sigma_{np}^{(0)}}{\sigma_{np}^{(i)}} \times \sigma_{f_{235U}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \end{array} \right. \quad (4.22)$$

- $\sigma_{f_{233U}}^{(16O)}$ et $\sigma_{f_{235U}}^{(16O)}$ sont les moyennes des sections efficaces de fission de ^{233}U et de ^{235}U à l'énergie $E_n^{(16O)}$ des bases de données ENDF/B-VI, JENDL-3.3, BROND-2 et JEFF-3.0.

- $\sigma_{f_{235U}}^{(0)}$ et $\sigma_{f_{235U}}^{(i)}$ correspondent à la moyenne des sections efficaces de fission de l' ^{235}U à l'énergie du flux de neutrons principal $E_n^{(0)}$ et à l'énergie $E_n^{(i)}$ des bases de données citées précédemment.

- On notera que pour la mesure à 6,49 MeV, l'anisotropie des fragments de fission n'est plus négligeable et intervient dans l'efficacité de détection (ε_f) (contribution de l'ordre de 3 %). Le terme α_{233U} sera différent dans le cas où les neutrons proviennent de la réaction principale $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ ou de la réaction parasite $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$. Pour déterminer la section efficace recherchée, il suffit de diviser le terme correctif $\sigma_{f_{\text{corr}}}^{^{16}\text{O}}(E_n^{(^{16}\text{O})})$ dû à la réaction parasite dans l'expression (4.19) par le facteur d'anisotropie f_a déterminé dans le chapitre 3.

Après correction des trois mesures au delà de 6 MeV, nos résultats sont présentés sur la figure ci-dessous.

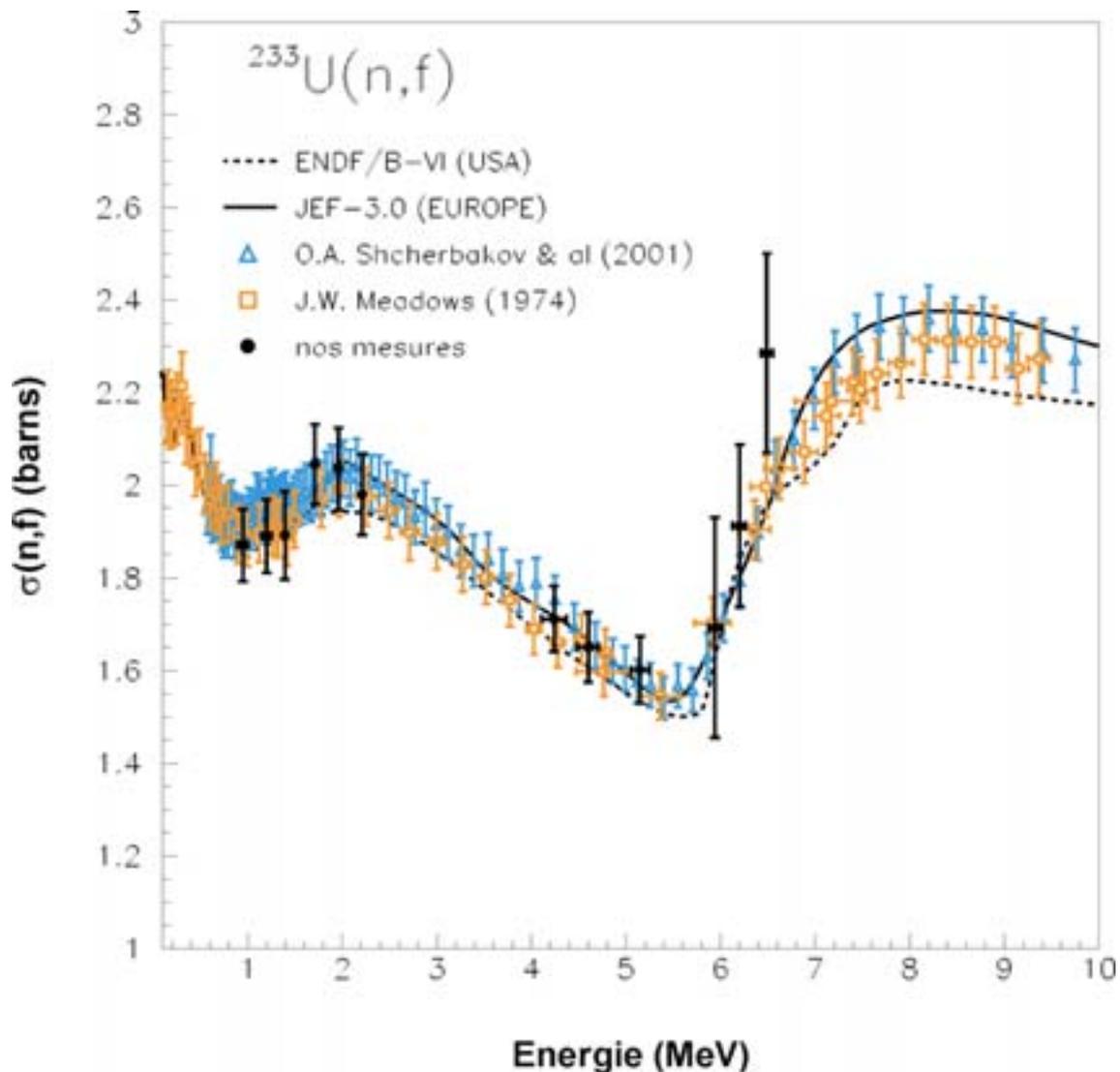


Figure 4.7 : Résultats des mesures de la section efficace de fission de l' ^{233}U en fonction de l'énergie des neutrons. A partir de 6 MeV, les mesures sont corrigées de la contribution du flux de neutrons parasites de la réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ ($Q=-2,119$ MeV).

On notera que les trois mesures pour $E_n \geq 6$ MeV, sont en bon accord avec les résultats expérimentaux de J. W. Meadows [Me74], de O. A. Shcherbakov et collaborateurs [Sh01] et avec les évaluations. Ces données expérimentales ont été obtenues par rapport à la section efficace de fission de ^{235}U . En revanche, l'incertitude associée à ces mesures est ici de l'ordre de 10 % alors qu'elles ne dépassent pas 5 % pour des énergies de neutron inférieures à 6 MeV. Cette détérioration de la précision de nos mesures est le résultat de la correction due à la présence d'oxygène 16 dans nos cibles dont la contribution représente 50 % environ des événements de fission détectés. Il est clair que la poursuite de ces mesures à partir de la réaction $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ devra dorénavant se faire à partir d'une cible de deutérium gazeux (D_2). Cette cible va être mise en place sur la ligne neutron du C.E.N.B.G. et va faire l'objet prochainement de premiers tests d'irradiation.

4.4 Présentation générale des sections efficaces de fission mesurées et de leurs erreurs

En résumé, la section efficace de fission mesurée de l'actinide étudié induite par des neutrons d'énergie comprise entre 0,95 et 6,5 MeV est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_{f_{\text{Act}}}^{(0)}(E_n^{(0)}) = \sigma_{f_p}^{\text{Act}}(E_n^{(0)}) - \sigma_{f_{\text{corr}}}^{\text{Act}}(E_n^{(i)}) - \sigma_{f_{\text{corr}}}^{16\text{O}}(E_n^{(16\text{O})}) \quad (4.18)$$

$$\text{où} \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{f_p}^{\text{Act}}(E_n^{(0)}) = \frac{N_{f_{\text{Act}}}^{\text{det}}}{\alpha_{\text{Act}} \times \Phi_{n_{\text{Act}}}^{(0)}(E_n^{(0)})} \\ \Phi_{n_{\text{Act}}}^{(0)}(E_n^{(0)}) = \frac{\Omega_{\text{Act}}}{\Omega_{\text{rad}}} \times \frac{N_{p_{\text{det}}}^{(0)}(E_{p_{\text{tot}}})}{N_{\text{H}} \cdot \varepsilon_p \cdot \sigma_{\text{np}}^{(0)}(E_n^{(0)}) \cdot \Delta t} \\ \sigma_{f_{\text{corr}}}^{\text{Act}}(E_n^{(i)}) = \sum_{i>0} \frac{N_{p_{\text{det}}}^{(i)}}{N_{p_{\text{det}}}^{(0)}} \times \frac{\sigma_{\text{np}}^{(0)}}{\sigma_{\text{np}}^{(i)}} \times \sigma_{f_{\text{Act}}}^{(i)}(E_n^{(i)}) \end{array} \right. \text{ et } \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{f_{\text{corr}}}^{16\text{O}}(E_n^{(16\text{O})}) = 0, \text{ pour } E_n^{(0)} < 6 \text{ MeV} \\ \text{ou pour un noyau non fissile } (^{238}\text{U}, ^{232}\text{Th}) \\ \forall E_n^{(0)} < 6,5 \text{ MeV.} \\ \sigma_{f_{\text{corr}}}^{16\text{O}}(E_n^{(16\text{O})}) = \frac{\Phi_{n_{\text{Act}}}^{(16\text{O})}}{\Phi_{n_{\text{Act}}}^{(0)}} \times \sigma_{f_{\text{Act}}}^{(16\text{O})}(E_n^{(16\text{O})}) \text{ si l'actinide} \\ \text{est un noyau fissile } (^{233}\text{U}) \text{ et } E_n^{(0)} \geq 6 \text{ MeV.} \end{array} \right.$$

L'incertitude sur la section efficace de fission mesurée va dépendre des erreurs (écarts quadratiques) associées aux trois termes intervenant dans l'équation (4.18) telle que :

$$\Delta\sigma_{f_{\text{Act}}}^{(0)} = \sqrt{(\Delta\sigma_{f_p}^{\text{Act}})^2 + (\Delta\sigma_{f_{\text{corr}}}^{\text{Act}})^2 + (\Delta\sigma_{f_{\text{corr}}}^{16\text{O}})^2} \quad (4.19)$$

Une liste détaillée des différentes erreurs associées à chaque mesure est présentée dans le tableau (4.4). Ces erreurs se divisent en deux types : les erreurs statistiques et les erreurs systématiques. Les erreurs statistiques sont associées essentiellement aux nombres de fragments de fission détectés ($N_{f_{\text{Act}}}^{\text{det}}$) et de protons de recul détectés ($N_{p_{\text{det}}}^{(0)}$) associés au flux de neutron principal ($\Phi_{n_{\text{Act}}}^{(0)}$).

Les erreurs systématiques regroupent, quant à elles, les erreurs liées à la géométrie du dispositif de mesure et celles associées aux nombres d'atomes de l'actinide étudié et d'hydrogène contenus respectivement dans la cible et le radiateur.

Erreurs statistiques	Erreur (%)
Nombre de fissions détectées : $\Delta N_{f_{act}}^{det} = \sqrt{N_{f_{act}}^{det}}$	De 0,5 à 2
Nombre de protons de recul détectés associé au flux de neutrons principal : $\Delta N_{p_{det}}^{(0)} = \sqrt{N_{pp}^{det} (E_n^{(0)}) + (f_n)^2 \times N_{Bf}^{det} (E_n^{(0)})}$	De 0,4 à 1
$\sigma_{f_{act}}^{(i)}$: Moyenne des sections efficaces de fission des bases de données à l'énergie $E_n^{(i)}$ de l'actinide étudié	≤ 3
Erreurs systématiques	Erreur (%)
Angles solides	
Ω_{act} : angle solide formé par la source de production de neutrons et la cible de l'actinide étudié	1,3 à 2,5
Ω_{rad} : angle solide formé par la source de production de neutrons et le film de polypropylène	0,9 à 1,1
Efficacités de détection	
ε_f	1,6 à 1,7
ε_p	1,3 à 1,7
Nombre d'atomes /cm ² de l'actinide étudié	
cible ²³³ U	0,23
cible ²³⁵ U	1,12
cible ²³⁸ U	0,49
cible ²³² Th	0,95
Nombre d'atomes d'hydrogène /cm ² de chaque film de polypropylène utilisé	1,3

Tableau 4.4 : Liste des différentes erreurs associées à nos mesures.

On notera que les erreurs statistiques les plus importantes concernent les erreurs associées au nombre de fragments de fission détectés. Dans le cas du ²³²Th, compte tenu de sa section efficace de fission assez faible (100 à 300 mb pour des neutrons de 1 à 6,5 MeV), elles peuvent atteindre 2 %. Quant aux erreurs systématiques, les plus importantes sont associées aux angles solides (Ω_{rad} , Ω_{act}) et aux efficacités de détection (ε_f , ε_p).

Elles sont dues principalement aux incertitudes liées aux distances mesurées entre les différents éléments composant le dispositif expérimental. Pour la détection des fragments de fission, les distances entre la cible et le montage photovoltaïque sont mesurées à 0,2 mm près. Tandis que, pour la détection des protons de recul, les distances entre le radiateur et les jonctions silicium étant plus grandes, l'incertitude sur chacune d'elles est de l'ordre de 0,5 mm. Concernant les erreurs sur les nombres d'atomes de ^{232}Th , d'hydrogène et des différents isotopes d'uranium, elles ont été déterminées dans le chapitre 3.

Les sections efficaces de fission induite par neutrons rapides des noyaux ^{232}Th et ^{233}U sont présentées respectivement dans les tableaux (4.5) et (4.6). Dans chaque tableau, les mesures sont regroupées par énergie de neutron croissante (colonne 1) dont la dispersion en énergie est présentée en colonne 2. Les quatre colonnes ou six pour ^{233}U suivantes rassemblent les contributions (et leurs erreurs) des termes correctifs associés aux différents flux de neutrons parasites intervenant dans la détermination des sections efficaces mesurées. Les deux dernières colonnes présentent les sections efficaces de fission corrigées et leurs erreurs.

$^{232}\text{Th}(n, f)$							
$E_n^{(0)}$	$\Delta E_n^{(0)}$	$\sigma_{f_p}^{232\text{Th}}$	$\Delta\sigma_{f_p}^{232\text{Th}}$	$\sigma_{f_{\text{corr}}}^{232\text{Th}}$	$\Delta\sigma_{f_{\text{corr}}}^{232\text{Th}}$	$\sigma_{f_{232\text{Th}}}^{(0)}$	$\frac{\Delta\sigma_{f_{232\text{Th}}}^{(0)}}{\sigma_{f_{232\text{Th}}}^{(0)}}$
(MeV)	(MeV)	(barns)	(barns)	(barns)	(barns)	(barns)	(%)
1,58	0,02	0,1266	0,0055	0	0	0,1266	4,3
1,63	0,05	0,1168	0,0064	0	0	0,1168	5,5
4,24	0,13	0,1653	0,0066	0,0079	0,0004	0,1573	4,2
5,15	0,09	0,1655	0,002	0,0082	0,0006	0,1573	4,5
5,42	0,08	0,1716	0,0099	0,0089	0,0041	0,1627	6,6
5,68	0,08	0,1664	0,0069	0,0089	0,001	0,1575	4,4
5,94	0,07	0,1719	0,007	0,0087	0,0011	0,1631	4,3
6,2	0,07	0,2085	0,0091	0,0086	0,0018	0,1999	4,6
6,49	0,06	0,2946	0,013	0,0083	0,0022	0,2863	4,6

Tableau 4.5 : résultats des mesures concernant la section efficace de fission du ^{232}Th induite par des neutrons d'énergie comprise entre 1,55 et 6,5 MeV.

$^{233}\text{U}(n, f)$									
$E_n^{(0)}$	$\Delta E_n^{(0)}$	$\sigma_{fp}^{233\text{U}}$	$\Delta\sigma_{fp}^{233\text{U}}$	$\sigma_{f_{\text{corr}}}^{233\text{U}}$	$\Delta\sigma_{f_{\text{corr}}}^{233\text{U}}$	$\sigma_{f_{\text{corr}}}^{16\text{O}}$	$\Delta\sigma_{f_{\text{corr}}}^{16\text{O}}$	$\sigma_{f_{233\text{U}}}^{(0)}$	$\frac{\Delta\sigma_{f_{233\text{U}}}^{(0)}}{\sigma_{f_{233\text{U}}}^{(0)}}$
(MeV)	(MeV)	(barns)	(barns)	(barns)	(barns)	(barns)	(barns)	(barns)	(%)
0,95	0,05	2,042	0,076	0,171	0,0107	0	0	1,871	4,1
1,2	0,05	2,204	0,078	0,3138	0,0106			1,89	4,2
1,4	0,01	2,23	0,093	0,3377	0,0214			1,892	5
1,7	0,05	2,322	0,086	0,2773	0,01			2,045	4,2
1,96	0,04	2,339	0,088	0,3037	0,0095			2,035	4,3
2,21	0,04	2,324	0,086	0,3448	0,0092			1,979	4,4
4,24	0,13	1,865	0,071	0,1524	0,0044			1,712	4,2
4,6	0,11	1,919	0,076	0,2677	0,0066			1,651	4,6
5,15	0,09	1,919	0,072	0,3165	0,0059			1,602	4,5
5,94	0,07	4,127	0,158	0,381	0,0107	2,052	0,177	1,693	14
6,2	0,07	3,025	0,11	0,484	0,015	1,428	0,135	1,912	9,1
6,49	0,06	4,028	0,149	0	0	1,743	0,155	2,285	9,4

Tableau 4.6 : Résultats des mesures concernant la section efficace de fission de ^{233}U induite par des neutrons d'énergie comprise entre 0,95 et 6,5 MeV.

Chapitre 5 Interprétation des résultats pour ^{233}U

5.1 Introduction

L' ^{233}U fait partie avec l' ^{235}U et le ^{239}Pu des noyaux fissiles les plus importants. La figure (5.1) présente l'allure de la section efficace de fission de ce noyau pour des énergies de neutron inférieures à 20 MeV.

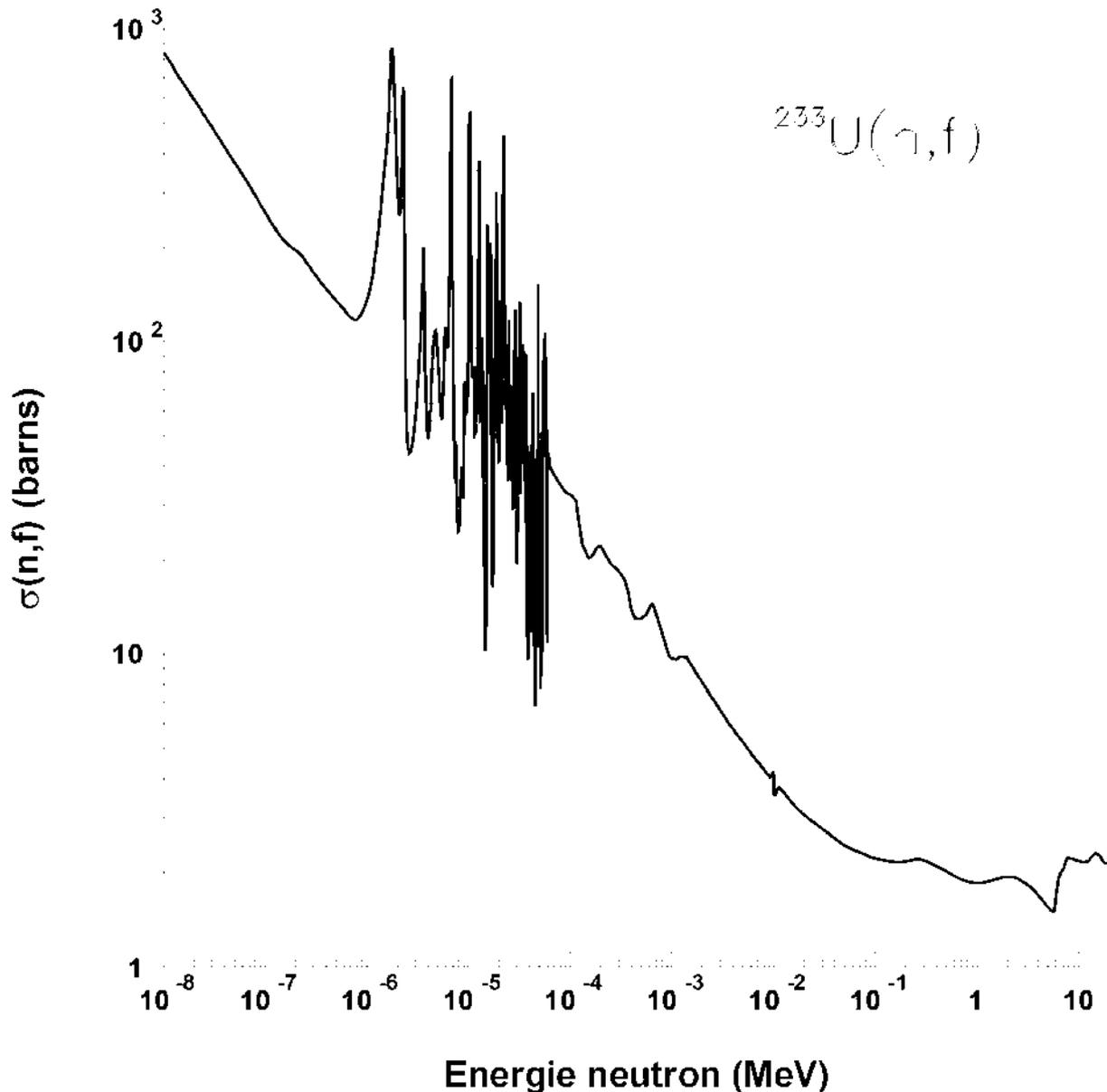


Figure 5.1 : Section efficace de fission du noyau ^{233}U extraite de la bibliothèque de données américaine ENDF/B-VI.

Trois régions apparaissent clairement :

- La région dite des neutrons thermiques ($E_n < 0,1 \text{ eV}$) où la section efficace de fission varie approximativement en raison inverse de la vitesse des neutrons incidents.
- La région des neutrons de résonance ($0,1 \text{ eV} \leq E_n < 10 \text{ keV}$) où la section efficace de fission présente un effet de structure important. L'espacement moyen des résonances est de l'ordre de $0,7 \text{ eV}$ et la région des résonances résolues ne dépasse pas quelques centaines d'eV.
- La région rapide où tout effet de structure disparaît. La section efficace de fission décroît avec l'énergie des neutrons pour se saturer au voisinage de 2 barns pour $E_n \leq 6 \text{ MeV}$. Au-delà de cette énergie, la section efficace de fission présente une série de paliers associés à l'ouverture de fission de seconde chance et de troisième chance qui correspond respectivement à l'émission d'un ou deux neutrons avant la fission du noyau résiduel.

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à cette dernière région puisqu'elle correspond au domaine d'énergie où la confrontation théorie- expérience s'avère la plus riche. Nous avons développé un modèle de réaction dont le caractère prédictif a pu être étudié.

5.2 Cadre de notre analyse

Dans le domaine des neutrons rapides, l'interaction d'un neutron avec le noyau cible ^{233}U fait intervenir principalement deux mécanismes :

- L'un est rapide (10^{-21} s), et correspond à l'interaction directe. Elle comprend la diffusion élastique de forme et les voies de diffusion inélastiques par excitation des premiers états collectifs de basse énergie du noyau cible.
- L'autre, beaucoup plus lent (10^{-16} s), correspond à la formation du noyau composé. Lorsque le neutron incident est absorbé par le noyau cible A , il va peupler une configuration du continuum du système composé ($A+1$). Par une série de collisions à deux corps, l'énergie d'excitation va se redistribuer sur l'ensemble des nucléons. Durant cette phase rapide (10^{-20} s), le système composé peut émettre des particules. C'est la phase de pré équilibre. Sa contribution devient significative au-delà d'une énergie de neutron de 10 MeV . Cette phase ne sera donc pas prise en compte dans ce travail. Quand l'énergie a été répartie sur l'ensemble des nucléons, le système composé ($A+1$) a atteint l'équilibre. C'est un processus lent au bout duquel la mémoire de la première collision a été perdue. Ce concept du noyau composé a été utilisé dans ce travail.

Le modèle optique constitue une approche générale de ces deux mécanismes dans laquelle le neutron incident interagit avec un potentiel complexe représentant son interaction avec l'ensemble des nucléons du noyau cible. Deux approches sont utilisées pour définir ce potentiel complexe. Dans l'approche phénoménologique, les parties réelle et imaginaire du potentiel sont décrites à partir de potentiels du type Wood- Saxon dont les paramètres sont ajustés sur les données expérimentales (élastique, inélastique et totale). Néanmoins, cette approche ne permet pas toujours d'obtenir un jeu unique de paramètres. La seconde approche plus récente, a été réalisée par les physiciens du C.E.A./D.A.M. de Bruyères Le Châtel. Elle repose sur une approche plus microscopique de la collision neutron- noyau traitée à partir d'une interaction effective tenant compte des effets de milieu. Cette approche microscopique, dont nous avons utilisé les résultats [Ba04], est maintenant capable de traiter les noyaux sphériques et déformés.

Dans ces deux approches, le modèle optique est utilisé en voies couplées pour décrire l'interaction directe. Ces calculs donnent également accès aux sections efficaces totale, élastique et inélastique par interaction directe. Les autres voies non explicitées et traitées dans ce modèle, représentent la section efficace de réaction σ_R . Cette section efficace et les coefficients de transmission qui lui sont associés, vont permettre de décrire la formation et la désexcitation du noyau composé.

Le modèle optique permet de déterminer la section efficace de diffusion élastique et de réaction de la manière suivante :

$$\sigma_{\text{dif}} = \pi\lambda^2 \times \sum_{\ell} (2\ell + 1) \cdot (1 - |U_{\ell}|^2) \quad (5.1)$$

$$\sigma_R = \pi\lambda^2 \times \sum_{\ell} (2\ell + 1) \cdot (1 - |T_{\ell}|^2) \quad (5.2)$$

Elle représente la contribution des différentes ondes partielles (de moment orbital $\ell = 0, 1, 2$) possibles dans la collision. Le nombre complexe U_{ℓ} représente la diffusion de l'onde ℓ par le potentiel d'interaction neutron- noyau. Le terme ($T_{\ell} = (1 - |U_{\ell}|^2)$) désigne le facteur de transmission. On peut donc écrire :

$$\sigma_R = \pi\lambda^2 \times \sum_{\ell} (2\ell + 1) \cdot T_{\ell} \quad (5.3)$$

Si le mécanisme d'interaction directe est négligé, la section efficace de réaction correspond à celle de formation du noyau composé. On retrouve ici l'expression proposée à l'origine par Hauser et Feshbach [Ha52].

5.3 Description du modèle utilisé

Ce modèle a été développée tout d'abord pour le noyau impair- impair ^{233}Pa lors du travail de thèse de M. Petit [Pe02]. A partir de la section efficace de fission mesurée, ce modèle a permis d'extraire les sections efficaces de diffusion inélastique $^{233}\text{Pa}(n, n')$ et de capture radiative $^{233}\text{Pa}(n, \gamma)$. Mon travail a consisté à adapter ce modèle dans le cas du noyau pair- impair ^{233}U et à le compléter en introduisant la fission de seconde chance du noyau composé ^{234}U et la réaction $^{233}\text{U}(n, 2n)$.

Notre approche est basée sur le modèle statistique de Hauser et Feshbach pour décrire la formation du noyau composé et la description statistique (et séquentielle pour l'émission de particules) dans toutes les voies de sortie permises par la conservation de l'énergie et par les règles de sélection quantiques. Pour les énergies de neutron considérées ($E_n < 10$ MeV), la désexcitation du noyau composé formé (^{234}U) fait intervenir les noyaux résiduels ^{233}U (après évaporation d'un neutron) et ^{232}U (après évaporation de deux neutrons). Cette désexcitation s'effectue séquentiellement. A chaque étape, les différentes probabilités de désexcitation du noyau considéré sont calculées. Pour les noyaux ^{233}U , ^{234}U les voies explorées sont la fission, la diffusion inélastique et l'émission γ alors que seule l'émission γ est prise en compte pour le noyau résiduel ^{232}U . La chaîne d'évaporation est arrêtée avant l'ouverture des voies $(n, 3n)$ et $(n, 2nf)$. La figure suivante illustre les différentes voies de désexcitation du noyau composé prises en compte dans ce modèle.

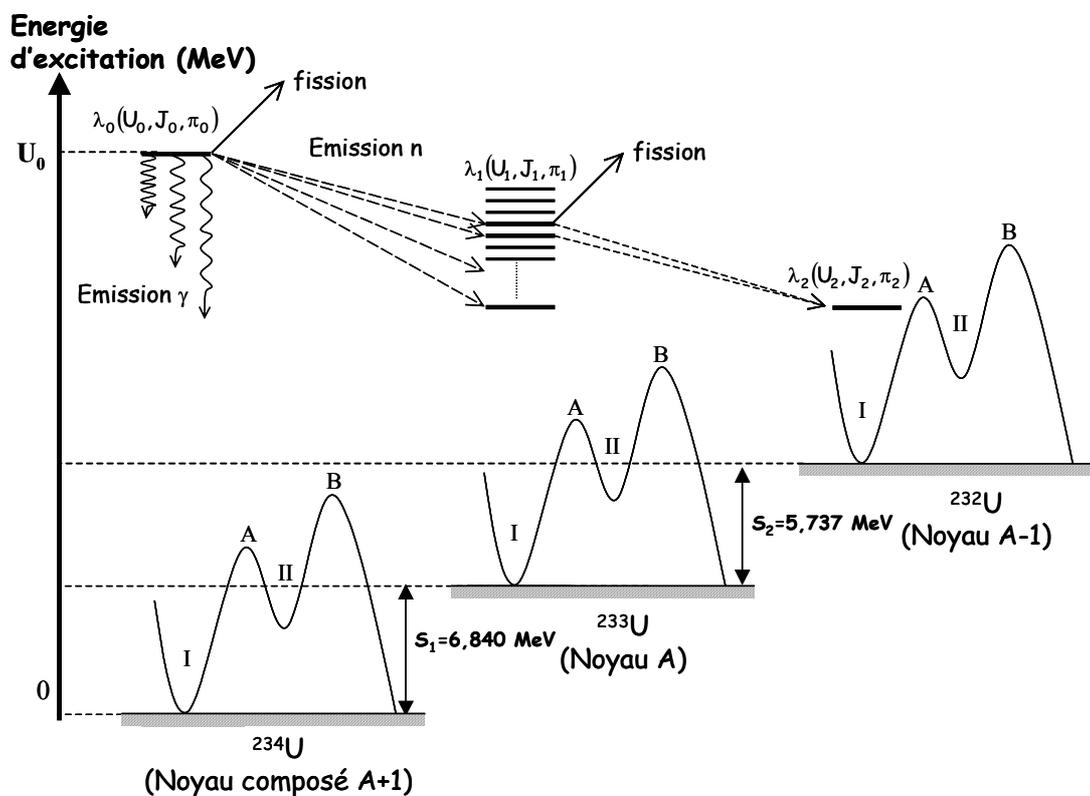


Figure 5.2 : Schéma des différentes voies de désexcitation d'un état $\lambda_0(U_0, J_0, \pi_0)$ du noyau composé ^{234}U intervenant dans notre modèle. S_1 et S_2 représentent les énergies de séparation d'un neutron dans ^{234}U et ^{233}U .

Pour la voie fission, la section efficace à calculer s'exprime de la manière suivante (en négligeant pour l'instant les nombres quantiques de spin et de parité) :

$$\sigma_F(E_n) = \sigma_{\text{NC}}(E_n) \times \left[\left(\frac{\Gamma_f}{\Gamma_T} \right)_{^{234}\text{U}} + \left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma_T} \right)_{^{234}\text{U}} \times \left(\frac{\Gamma_f}{\Gamma_T} \right)_{^{233}\text{U}} \right] \quad (5.4)$$

Dans cette expression, le terme $\left(\frac{\Gamma_f}{\Gamma_T} \right)_{^{234}\text{U}}$ représente la probabilité de fission de première chance du noyau ^{234}U (A+1). Le rapport $\left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma_T} \right)_{^{234}\text{U}}$ représente la probabilité d'émission d'un neutron par le noyau ^{234}U et la formation du noyau résiduel ^{233}U (A) dont la probabilité de fission est représenté par $\left(\frac{\Gamma_f}{\Gamma_T} \right)_{^{233}\text{U}}$. Le produit de ces deux derniers termes constitue la probabilité de fission de seconde chance du noyau ^{234}U (A+1). Dans la chaîne {A+1, A, A-1}, la fission, l'émission γ et l'émission de neutron sont décrites par leur largeur partielle Γ_f , Γ_γ et Γ_n et leur probabilité par les rapports d'embranchement $\frac{\Gamma_{i=f,\gamma \text{ ou } n}}{\Gamma_T}$ où $\Gamma_T = \Gamma_f + \Gamma_\gamma + \Gamma_n$.

Nous allons, maintenant, nous intéresser à la description des différents termes intervenant dans l'expression (5.4).

5.3.1 Section Efficace de formation du noyau composé

Dans cette partie, nous allons préciser le formalisme utilisé pour calculer la section efficace de formation du noyau composé : σ_{NC} .

Soit A (^{233}U) le noyau cible de spin \vec{s}_c (5/2) de projection m_c et de parité π_c (+).

Le neutron incident présente un spin intrinsèque $\vec{s}_n = \frac{1}{2}$, de projection m_n et de parité π_n . Par rapport à la cible, ce neutron présente un moment orbital $\vec{\ell}$ dont la projection sur l'axe du faisceau (axe de quantification) est $m_\ell = 0$.

Le moment angulaire total transféré par le neutron est $\vec{j} = \vec{\ell} + \vec{s}_n$ avec $m_j = m_n$. La probabilité de trouver le neutron dans l'état $|j m_j\rangle$, en couplant les états $(\ell; m_\ell)$ et $(s_n; m_n)$, est donnée par le carré du coefficient de Clebsch-Gordan $\langle \ell 0 s_n m_n | j m_j \rangle^2$. Pour des neutrons dans l'état $|j m_j\rangle$, la section efficace de formation du noyau composé s'écrit :

$$\sigma_{\text{NC}}(s_n m_n \pi_n j) = \pi \lambda^2 \times \sum_{\ell} T_{\ell}^j(E_n) \cdot (2\ell + 1) \langle \ell 0 s_n m_n | j m_j \rangle^2 \quad (5.5)$$

Les T_{ℓ}^j sont les coefficients de transmission pour des neutrons d'énergie E_n et de longueur d'onde réduite λ .

La probabilité de former le noyau composé dans l'état de moment angulaire $|J M\rangle$ par couplage des états $|j m_n\rangle$ (neutron) et $|s_c m_c\rangle$ (cible) est donnée par :

$$\langle j m_n s_c m_c | J M \rangle^2, \text{ avec } M = m_n + m_c \text{ et } |j - s_c| < J < |j + s_c|.$$

Les neutrons incidents et la cible ne sont pas polarisés. Les deux sous-états magnétiques du neutron ($m_n = \pm 1/2$) sont donc également probables ainsi que les différents sous-états magnétiques m_c du noyau cible ; on peut donc effectuer une moyenne sur ces différentes possibilités [Si76] :

$$\sigma_{\text{NC}}(J M \pi) = \frac{\pi \hat{\lambda}^2}{(2s_n + 1)(2s_c + 1)} \times \sum_{\ell} \left[(2\ell + 1) \cdot \delta(\pi_n, \pi_c, (-1)^\ell, \pi) \cdot \sum_j T_{\ell}^j \sum_{m_n} \langle \ell m_n s_n m_n | j m_n \rangle^2 \sum_{m_c} \langle j m_n s_c m_c | J M \rangle^2 \right] \quad (5.6)$$

Les sommations sur j , m_n et m_c sont effectuées en tenant compte des valeurs particulières des coefficients de Clebsch-Gordan.

La section efficace de formation du noyau composé est alors donnée par l'expression :

$$\langle \sigma_{\text{NC}}(E_n, J, M, \pi) \rangle = \frac{\pi \hat{\lambda}^2}{2(2s_c + 1)} \cdot \left[\begin{array}{l} T_0^{\frac{1}{2}}(E_n) \cdot \delta(\pi_n, \pi) \cdot \delta\left(s_c - \frac{1}{2} < J < s_c + \frac{1}{2}\right) + \\ \sum_{\ell > 0} \delta(\pi_c, (-1)^\ell, \pi) \cdot \left((\ell + 1) \cdot T_{\ell}^{\ell + \frac{1}{2}}(E_n) \sum_{m_n, m_c} \left\langle \left(\ell + \frac{1}{2}\right) m_n s_c m_c | J M \right\rangle^2 \right. \\ \left. + \ell \cdot T_{\ell}^{\ell - \frac{1}{2}}(E_n) \sum_{m_n, m_c} \left\langle \left(\ell - \frac{1}{2}\right) m_n s_c m_c | J M \right\rangle^2 \right) \end{array} \right] \quad (5.7)$$

Les fonctions δ apparaissant dans les expressions précédentes assurent la conservation du spin et de la parité. Les coefficients de transmissions $T_{\ell}^{j=\ell \pm \frac{1}{2}}(E_n)$ que nous avons utilisés sont ceux calculés par le groupe de physique théorique de Bruyères-Le-Châtel.

La section efficace de formation du noyau composé, pour un état λ_0 (U_0, J_0, π_0), d'énergie d'excitation U_0 , de moment angulaire J_0 et de parité π_0 est donnée par la relation suivante :

$$\langle \sigma_{\text{NC}}(\lambda_0(U_0, J_0, \pi_0)) \rangle = \sum_{M=-J_0}^{+J_0} \langle \sigma_{\text{NC}}(E_n, J_0, M, \pi_0) \rangle \quad (5.8)$$

Où U_0 représente l'énergie d'excitation du noyau composé telle que :

$$U_0 = S_n + \frac{A}{A+1} \times E_n \quad (5.9)$$

Avec S_n et E_n correspondant respectivement aux énergies de liaison et cinétique du neutron incident dans le laboratoire.

La figure (5.3) présente pour certaines valeurs du moment angulaire J et pour les deux parités, l'évolution des sections efficaces de formation du noyau composé ^{234}U en fonction de l'énergie des neutrons incidents.

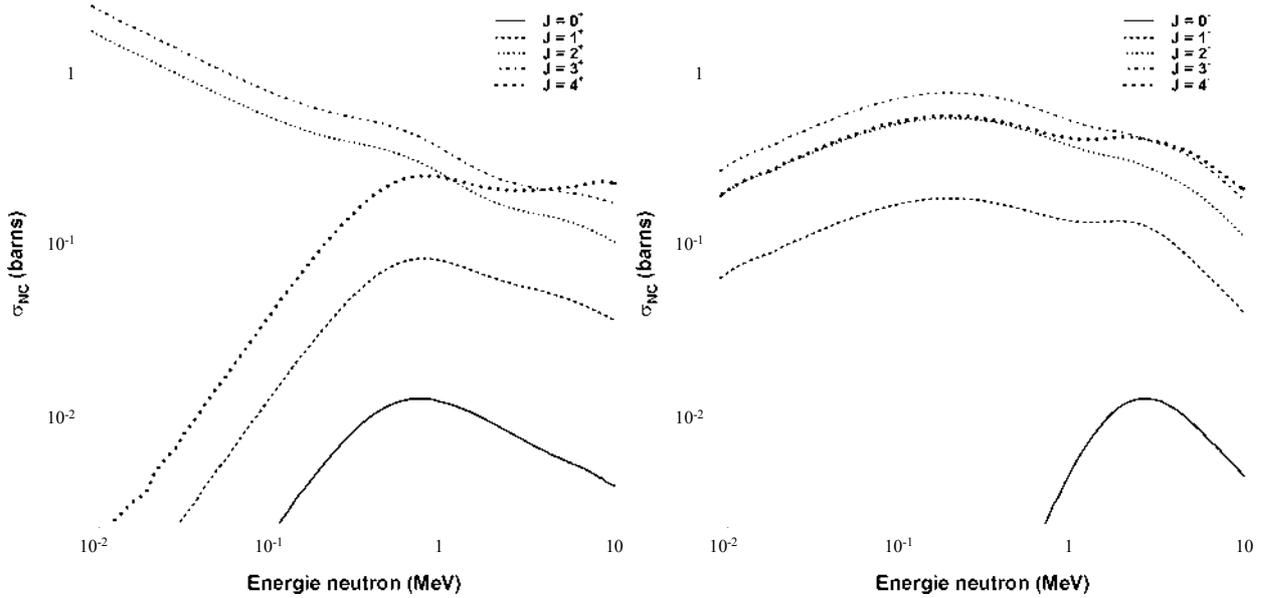


Figure 5.3 : Contribution des différentes valeurs de moment angulaire total J dans la section efficace de formation du noyau composé ^{234}U pour des énergies de neutrons incidents comprises entre 0,01 et 10 MeV. Le moment angulaire et la parité de l'état fondamental de ^{233}U sont $5/2^+$.

5.3.2 Désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron

Nous supposons que l'émission d'un neutron ne modifie pas l'état de déformation du noyau composé ^{234}U . Nous supposons également, conformément au schéma présenté sur la figure (5.2), que l'émission d'un neutron se fait, depuis le premier puits de potentiel du noyau composé ($A+1$) vers celui du noyau cible (A). Dans ce cas, la largeur partielle $\langle \Gamma_n^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle$ pour la désexcitation du noyau composé ($A+1$) dans l'état λ_0 (U_0, J_0, π_0), par émission d'un neutron, s'exprime à partir de la relation suivante :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} = \sum_{U_1} \sum_{J_1 \pi_1} \sum_{j=|J_0-J_1|}^{J_0+J_1} \sum_{\ell=|j-1/2|}^{j+1/2} T_\ell^j(U_0 - U_1) \delta(\pi_0, \pi_1, (-1)^\ell) \quad (5.10)$$

Où :

- $D_I^{J_0, \pi_0}(U_0)$ est l'espace moyen des niveaux dans le premier puits du noyau composé à énergie d'excitation U_0 .
- $T_\ell^j(U_0 - U_1)$ est le coefficient de transmission d'un neutron d'énergie $(U_0 - U_1)$ émis avec le moment angulaire orbital ℓ et emportant le moment angulaire j . La fonction $\delta(\pi_0, \pi_1, (-1)^\ell)$ assure la conservation de la parité.

Pour une énergie d'excitation supérieure à plusieurs centaines de keV, les niveaux discrets du noyau résiduel sont suffisamment nombreux pour les remplacer par une densité continue $\rho(J_1, \pi_1, U_1)$. Le calcul du nombre de voies effectives comprendra une intégration sur les niveaux continus plus une sommation sur les niveaux discrets de basse énergie du noyau résiduel dont l'énergie est inférieure à l'énergie d'appariement dans le noyau ^{233}U . La relation précédente peut s'écrire alors de la manière suivante :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} = \int_{U_1^k}^{U_0 - S_1} \sum_{J=|J_0 - J_1|}^{J_0 + J_1} \sum_{\ell=|j-1/2|}^{j+1/2} T_\ell^j(U_0 - U_1) \cdot \delta(\pi, \pi_1, (-1)^\ell) \cdot \rho(U_1, J_1, \pi_1) \cdot T_\ell^j(E_n) \cdot dU_1$$

$$+ \sum_{U_1^k} \sum_{J_1^k} \sum_{\pi_1^k} \sum_{j=|J_0 - J_1^k|}^{J_0 + J_1^k} \sum_{\ell=|j-1/2|}^{j+1/2} T_\ell^j(U_0 - U_1^k) \cdot \delta(\pi, \pi_1^k, (-1)^\ell)$$

(5.11)

5.3.3 Désexcitation du noyau composé par émission γ

Nous considérons également que l'émission d'un rayonnement γ ne modifie pas la déformation du noyau composé et que la transition s'effectue entre deux états du premier puits du noyau composé ($A+1$). En 1952, Blatt et Weisskopf [Bl52] ont établi la théorie de l'émission γ à partir du modèle à particules indépendantes. Elle correspond à la transition d'un état de particule à un autre de plus faible énergie. L'intensité de la transition γ dépend de sa multipolarité ($\ell = 1, 2, \dots$). Dans ce modèle, les transitions dipolaires électriques E_1 ($\ell = 1$) sont favorisées par rapport aux autres transitions (M_1, E_2, M_2, \dots), ($\frac{I_M(\ell)}{I_E(\ell)} \approx 6 \cdot 10^{-3}$ et $\frac{I_{E_2}}{I_{E_1}} \approx 1,5 \cdot 10^{-3}$, où I_i est l'intensité de la transition i).

Aux énergies d'excitation considérée ($U_0 > 5 \text{ MeV}$), les états du noyau composé peuvent s'exprimer comme une multitude d'états individuels de particules indépendantes.

Ceci permet d'utiliser l'approche statistique de Weisskopf : la largeur moyenne d'émission de rayonnements γ dipolaires électriques $\langle \Gamma_{\gamma;E1}^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle$ d'un niveau composé λ_0 (U_0, J_0, π_0) vers un état final peut s'écrire :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_{\gamma;E1}^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} \approx 2\pi.(A+1)^{2/3}.E_\gamma^3 \quad (5.12)$$

Où $(A+1)$ est le nombre de masse du noyau composé et $E_\gamma = U_0 - U'$, l'énergie de la transition.

Pour un noyau composé dont l'énergie d'excitation atteint plusieurs MeV, la largeur de désexcitation γ est la somme des largeurs partielles correspondant aux différents états finaux possibles :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_{\gamma}^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} = C \sum_{J_f=J_0-1}^{J_0+1} \int_0^{U_0} \rho(U', -\pi_0, J_f)(U_0 - U')^3 .dU' \quad (5.13)$$

La constante de normalisation C est ajustée de façon à reproduire la largeur moyenne d'émission γ mesurée dans le domaine des neutrons de résonances ($\langle \Gamma_\gamma \rangle = 40$ meV) [Mu73].

Comme pour la désexcitation par émission de neutrons, la sommation sur les niveaux du noyau résiduel est remplacée par une intégrale sur les densités de niveaux continues. Nous avons négligé les transitions vers les états discrets de basse énergie dont la contribution est très faible.

5.3.4 Désexcitation du noyau composé par fission

Notre objectif ici est de décrire l'allure moyenne de la section efficace de fission. La fission est traitée dans le cas de la traversée d'une barrière de fission à deux bosses (A et B). Chacune de ces bosses est assimilée à une barrière parabolique définie par sa hauteur $E_{A, B}$ et son épaisseur $\hbar \omega_{A, B}$ exprimées en MeV. Nous négligeons donc tout effet de résonance associé à la pénétrabilité de la double barrière de fission, car la section efficace de fission de ^{233}U ne présente pas de résonances dans la région des neutrons incidents d'énergie comprise entre 0,01 et 10 MeV.

Nous rappelons les hypothèses suivantes adoptées pour décrire le passage de la double barrière de fission :

- La fission se produit en deux étapes successives et indépendantes : traversée de la première barrière (A) suivie de la traversée de la seconde barrière (B).
- On néglige l'émission γ et l'émission de neutrons dans et à partir du puits intermédiaire séparant les deux barrières.

On démontre alors que la largeur totale de fission peut s'écrire [Va73] :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_f^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} = \frac{2\pi}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} \times \frac{\Gamma_A \cdot \Gamma_B}{\Gamma_A + \Gamma_B} \quad (5.14)$$

Où Γ_A et Γ_B sont les largeurs partielles associées à la traversée des barrières (A) et (B). Elles sont calculées à partir de l'expression proposée par Bohr et Wheeler [Va73] :

$$2\pi \frac{\Gamma_i^{J_0, \pi_0}}{\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle} = \int_{-\infty}^{U_0 - Bf_i} P_i(\varepsilon) \cdot \rho_i^{J_0, \pi_0}(U_0 - (Bf_i + \varepsilon)) \cdot d\varepsilon \quad (5.15)$$

Où $\langle D_I^{J_0, \pi_0}(U_0) \rangle^{-1} = \rho_{e,s}(\lambda_0 = U_0, J_0, \pi_0)$ et $\rho_i^{J_0, \pi_0}(U_0 - (Bf_i + \varepsilon))$ sont les densités de niveaux (J_0, π_0) respectivement à l'énergie d'excitation U_0 dans le premier puits du noyau composé $(A+1)$ et à l'énergie $U_0 - (Bf_i + \varepsilon)$ au sommet de la barrière i . Chaque barrière i est associée à une parabole inversée dont la pénétrabilité $P_i(\varepsilon)$ est calculée à partir de l'expression de Hill et Wheeler [Va73] :

$$P_i(\varepsilon) = \left(1 + \exp \left[-\varepsilon \cdot \frac{2\pi}{\hbar\omega_i} \right] \right)^{-1} \quad (5.16)$$

Bf_i est la hauteur de la barrière de fission i . Elle correspond à une énergie de déformation du noyau composé que l'on doit soustraire à l'énergie d'excitation initiale U_0 . L'énergie d'excitation disponible s'écrit alors $U_0 - Bf_i$, elle se partage entre les degrés de liberté intrinsèques et collectifs (énergie cinétique ε dans la voie fission). Au sommet de la barrière de fission, l'énergie d'excitation intrinsèque s'écrit :

$$U_0 - Bf_i - \varepsilon \quad (5.17)$$

$$-\infty < \varepsilon < U_0 - Bf_i \quad (5.18)$$

Les valeurs négatives de ε correspondent à la traversée de la barrière de fission par effet tunnel.

A cette contribution des niveaux continus, nous devons ajouter celle des niveaux discrets. Il s'agit des états de transition par lesquels transite le noyau fissionnant quand son énergie d'excitation U est voisine de la hauteur des barrières. Ce concept, introduit par A. Bohr [Bo56], considère que le noyau franchit la barrière de fission dans des états quantiques qui s'apparentent aux états collectifs de basse énergie du noyau fissionnant à la déformation de l'état fondamental. Dans le cas d'un noyau pair, ces niveaux collectifs sont groupés en bande de rotation construite sur des états de vibration.

Dans la région des actinides, on trouve en moyenne :

- La bande de rotation construite sur l'état fondamental $K=0^+ \rightarrow J=0^+, 2^+, 4^+, \dots$,
- Vers 0,5 MeV, la bande de vibration octupolaire $Y_3^0(\theta, \varphi)$; $K=0^- \rightarrow J=1^-, 3^-, 5^-, 7^- \dots$
- Vers 0,8 MeV, la bande de vibration $Y_2^0(\theta, \varphi)$ β (à 1 phonon) ; $K=0^+ \rightarrow J=0^+, 2^+, 4^+ \dots$,
et à deux phonons γ $Y_2^{\pm 2}(\theta, \varphi)$; $K=2^+ \rightarrow J=2^+, 3^+, 4^+, 5^+, \dots$,

Dans la région des uraniums et des plutoniums [Go78], certains de ces états de transition ont été identifiés à partir de la fission induite par neutron ou réaction de transfert. Il s'agit des états de transition $K=0^+$, $K=0^-$ et $K=2^+$. Dans ce travail, ces états de transition ont constitué la base de notre recherche des voies de fission possibles. La séquence des bandes de rotation associées est donnée par la relation suivante :

$$E_i^{J_0 K \pi_0} = E_i^K + \frac{\hbar^2}{2\mathfrak{I}_\perp} \cdot [J_0(J_0 + 1) - K(K + 1)] \quad (5.19)$$

Où $\frac{\hbar^2}{2\mathfrak{I}_\perp}$ désigne le paramètre de rotation. Il dépend de la déformation par l'intermédiaire du moment d'inertie \mathfrak{I}_\perp . Dans l'état fondamental, ce paramètre est voisin de $\frac{\hbar^2}{2\mathfrak{I}_\perp} \approx 7 \text{ keV}$, sa valeur dans le second puits (entre les barrières A et B) se situe au voisinage de $\frac{\hbar^2}{2\mathfrak{I}_\perp} \approx 3,3 \text{ keV}$.

Pour les déformations correspondant aux barrières A et B, il n'existe malheureusement aucune données expérimentales. Pour la première barrière (A), nous avons utilisé le paramètre de rotation du premier puits, et celui du second puits pour la deuxième barrière (B). Pour ces voies, la largeur de fission associée s'écrit (elle s'ajoute à celle des niveaux continus) :

$$2\pi \frac{\Gamma_i^{J_0, \pi_0}}{\langle D_I^{J_0, \pi_0} \rangle} = \sum_K \frac{1}{1 + \exp \left[-\frac{2\pi}{\hbar\omega_i} (U_0 - Bf_i - E_i^{J_0 K \pi_0}) \right]} \quad (5.20)$$

5.3.5 Calcul des voies de désexcitation (n,nf) et (n, 2n)

L'émission d'un neutron par le noyau composé ^{234}U (A+1) conduit à différents états excités (du continuum aux états discrets du noyau résiduel ^{233}U (A). soit $\lambda_1 (U_1, J_1, \pi_1)$ l'un de ces états identifié par son énergie d'excitation U_1 par rapport à l'état fondamental du noyau ^{233}U , son moment angulaire J_1 et sa parité π_1 . Selon la valeur de son énergie d'excitation U_1 , cet état peut se désexciter de trois manières différentes (voir figure 5.2) :

- par émission γ .
- par fission si U_1 est supérieure à la barrière de fission du noyau ^{233}U .
- par émission d'un neutron si U_1 est supérieure à l'énergie de séparation S_2 d'un neutron du noyau ^{233}U .

5.3.5.1 La réaction $^{233}\text{U}(n, nf)$

Ce processus correspond à la fission de seconde chance du noyau cible ^{234}U . L'émission d'un neutron par le noyau composé ^{234}U conduit à alimenter les états excités $\lambda_1 (U_1, J_1, \pi_1)$ du noyau résiduel ^{233}U . Nous nous plaçons à l'énergie d'excitation U_1 (au dessus de l'état fondamental du noyau ^{233}U). Dans un intervalle dU_1 centré sur U_1 , le nombre de ces états λ_1 est égal à $\omega_1(U_1, J_1, \pi_1) = \rho_1(U_1, J_1, \pi_1) \cdot dU_1$. Une fraction de ces états est alimentée par émission de neutron à partir de l'état $\lambda_0 (U_0, J_0, \pi_0)$ du noyau composé ^{234}U .

La fraction de ces états conduisant à la fission de l' ^{233}U peut s'écrire :

$$P_1(\lambda_1 \rightarrow f) = P_0(\lambda_0) \times \frac{\Gamma_n(\lambda_0 \rightarrow \lambda_1)}{\Gamma_T(\lambda_0)} \times \frac{\Gamma_f(\lambda_1)}{\Gamma_T(\lambda_1)} \times \omega_1 \quad (5.21)$$

Où P_0 désigne la section efficace du noyau composé dans l'état λ_0 . Les rapports $\frac{\Gamma_n(\lambda_0 \rightarrow \lambda_1)}{\Gamma_T(\lambda_0)}$ et $\frac{\Gamma_f(\lambda_1)}{\Gamma_T(\lambda_1)}$, quant à eux, représentent respectivement la probabilité relative de formation de l'état excité λ_1 et la probabilité de fission du noyau ^{233}U à cet état. Les quantités Γ_i ($i=n, f$ ou γ) correspondent aux largeurs partielles d'émission de neutron, de γ et de fission des états λ_0 ou λ_1 .

La section efficace de fission de seconde chance du noyau ^{234}U dans l'état $\lambda_0 (U_0, J_0, \pi_0)$ peut alors s'écrire :

$$\sigma_f^{\lambda_0} = \sigma_{\text{NC}}(\lambda_0) \times \sum_{J_1, \pi_1} \sum_{U_1=0}^{U_0-S_1} P_1((U_1, J_1, \pi_1) \rightarrow f) \quad (5.22)$$

La double sommation est effectuée sur le spin J_1 , la parité π_1 de tous les états excités du noyau ^{233}U dont l'énergie U_1 est comprise entre 0 et (U_0-S_1) . La sommation sur l'énergie est effectuée par découpage de l'intervalle en pas de 100 keV.

5.3.5.2 La réaction $^{233}\text{U}(n, 2n)$

Cette voie est ouverte pour la désexcitation par émission de neutrons des noyaux ^{233}U qui n'ont pas fissionnés. Cette émission de neutron, si elle est permise, conduit elle aussi à alimenter différents états excités du noyau résiduel ^{232}U ($A-1$). Soit $\lambda_2 (U_2, J_2, \pi_2)$ l'un de ces états. Dans la région du continuum, le nombre de ces états dans un intervalle d'énergie dU_2 centré sur U_2 correspond à $\rho_2(U_2, J_2, \pi_2) \cdot dU_2 = \omega_2(U_2, J_2, \pi_2)$. Seule une fraction de ces états λ_2 est alimentée lors de l'émission d'un neutron. C'est celle-ci que nous devons déterminer.

Dans le noyau ^{233}U tous les états excités λ_1 dont l'énergie d'excitation U_1 est supérieure à $U_2 + S_2$ peuvent alimenter les états λ_2 si les règles de sélection quantiques sont respectées dans la transition de $\lambda_1 (U_1, J_1, \pi_1) \rightarrow \lambda_2 (U_2, J_2, \pi_2)$:

$$\begin{cases} \vec{J}_1 = \vec{J}_2 + \vec{s}_n + \vec{\ell} \\ \pi_1 = \pi_2 \times (-1)^\ell \end{cases} \quad (5.23)$$

Pour l'une de ces transitions (i), la population de l'état $\lambda_2 (U_2, J_2, \pi_2)$ à partir des états $\lambda_1 (U_1, J_1, \pi_1)$ peut s'écrire :

$$P_2(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2) = P_1(\lambda_1) \times \frac{\Gamma_n(U_1, J_1, \pi_1 \rightarrow U_2, J_2, \pi_2)}{\Gamma_T(U_1, J_1, \pi_1)} \times \omega(U_2, J_2, \pi_2) \quad (5.24)$$

Où :

- $P_1(\lambda_1)$ représente la population de l'état excité λ_1 après émission d'un neutron par le noyau composé initial ^{234}U . C'est également la section efficace partielle d'émission de neutron d'un état $\lambda_0 (U_0, J_0, \pi_0)$ du noyau composé ^{234}U .
- Le second terme $\left(\frac{\Gamma_n(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2)}{\Gamma_T^1(\lambda_1)}\right)$ représente la probabilité d'émission de neutron du noyau ^{233}U lors de la transition $\lambda_1 (U_1, J_1, \pi_1) \rightarrow \lambda_2 (U_2, J_2, \pi_2)$.
- $\Gamma_T(\lambda_1)$ est la largeur totale de désintégration (émission, neutron et fission) de l'état λ_1 .

Pour un état excité du continuum du noyau résiduel ^{232}U , le terme $\Gamma_n(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2)$ s'écrit de la manière suivante :

$$\Gamma_n(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2) = \frac{1}{2\pi\rho(\lambda_1)} \sum_{j=|J_1-J_2|}^{|J_1+J_2|} \sum_{\ell=|j-\frac{1}{2}|}^{|j+\frac{1}{2}|} \delta(\pi_1, \pi_2, (-1)^\ell) \cdot \omega_2(U_2, J_2, \pi_2) \cdot T_\ell^j(U_1 - U_2 - S_2) \quad (5.25)$$

Pour un état discret λ_2^k de ce même noyau résiduel, ce terme a pour expression :

$$\Gamma_n(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2^k) = \frac{1}{2\pi\rho(\lambda_1)} \sum_{J=|J_1-J_2|}^{|J_1+J_2|} \sum_{\ell=|j-\frac{1}{2}|}^{|j+\frac{1}{2}|} \delta(\pi_1, \pi_2, (-1)^\ell) \cdot T_\ell^j(U_1 - U_2^k - S_2) \quad (5.26)$$

Tous les états λ_1 dont l'énergie d'excitation est comprise entre $U_1^{\min} = U_2 + S_2$ et $U_1^{\max} = U_0$ peuvent alimenter les états excités $\lambda_2(U_2, J_2, \pi_2)$. La population d'un état λ_2 après émission d'un neutron du noyau ^{233}U s'écrit :

$$P_{2n}(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2) = \sum_{U_1=U_2+S_2}^{U_0} \sum_{J_1, \pi_1} P_2(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2) \quad (5.27)$$

Là aussi, la sommation sur l'énergie (U_1) est effectuée en découpant l'intervalle $[U_2+S_2, U_0]$ en pas réguliers de 100 keV.

Finalement la section efficace de la réaction $^{233}\text{U}(n, 2n)$ à partir de l'état $\lambda_0(U_0, J_0, \pi_0)$ est obtenue par sommation des états excités dont l'énergie U_2 est inférieure ou égale à $(U_0 - S_1 - S_2)$:

$$\sigma_{(n,2n)}^{\lambda_0} = \sum_{J_2, \pi_2} \sum_{U_2=0}^{U_0 - S_1 - S_2} P_{2n}(\lambda_1 \rightarrow \lambda_2) \quad (5.28)$$

5.3.6 Les densités de niveaux

Les largeurs partielles définies ci-dessus font intervenir les densités de niveaux de trois noyaux (^{234}U , ^{233}U et ^{232}U). Pour les deux premiers, ces densités de niveaux doivent être calculées à différents états de déformation associées à leur état fondamental mais également aux déformations correspondant aux sommets de leurs barrières de fission.

Pour tous ces noyaux lourds, nous avons supposé que leur déformation la plus probable était celle d'un ellipsoïde à symétrie axiale (de type prolate) dans leur état fondamental et aux sommets des barrières de fission. Pour une énergie d'excitation, ces noyaux sont caractérisés par leur moment angulaire total J et sa projection K sur l'axe de déformation principale qui définit l'axe de fission. Dans ces conditions, la densité de niveaux $\rho(U, J, \pi)$ peut alors s'écrire sous la forme proposée par Bjørnholm, Bohr et Mottelson [Bo98] :

$$\rho(U, J, \pi) \approx \frac{1}{2} \frac{\rho_i(U)}{\sqrt{8\pi\sigma_{\parallel}(U)}} \sum_{K=-J}^{+J} \exp\left[-\frac{K^2}{2\sigma_{\parallel}^2(U)} - \frac{J(J+1) - K^2}{2\sigma_{\perp}^2(U)}\right] \quad (5.29)$$

$$\text{avec } \rho_i(U) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \cdot \frac{\exp(2\sqrt{a \cdot U})}{a^4 \cdot U^4} \text{ et } U = E^* - \chi\Delta \quad (5.30)$$

Où $\chi=0$ pour un noyau impair- impair, 1 pour un noyau impair et 2 pour un noyau pair- pair.

$\rho_i(\text{U})$ représente la densité de niveaux intrinsèque exprimée à partir du modèle du gaz de Fermi où les termes \mathbf{a} et U correspondent respectivement au paramètre de densité de niveaux et à l'énergie d'excitation effective du noyau excité après correction des effets d'appariement.

Dans l'expression (5.29), σ_{\parallel} et σ_{\perp} représentent les paramètres du spin «cut off» pour la distribution des projections des spins sur les axes parallèles et perpendiculaires à l'axe de symétrie du noyau fissionnant. Ces quantités sont reliées aux moments d'inertie \mathfrak{I}_{\parallel} et \mathfrak{I}_{\perp} par les relations suivantes :

$$\sigma_{\parallel}^2(\text{U}) = \frac{\mathfrak{I}_{\parallel}}{\hbar^2} \sqrt{\frac{\text{U}}{\mathbf{a}}} \text{ et } \sigma_{\perp}^2(\text{U}) = \frac{\mathfrak{I}_{\perp}}{\hbar^2} \sqrt{\frac{\text{U}}{\mathbf{a}}} \quad (5.31)$$

Il nous reste maintenant à définir la densité de niveaux intrinsèques ρ_i . Nous avons pour cela utilisé une expression analytique de ces densités qui dérive de l'approche phénoménologique proposée par Ignatyuk, et reprise ensuite par de nombreux auteurs ([Ig75b], [Ig79]; [I192], [Ig93], [Ju98]). Cette approche repose sur une modélisation du comportement du paramètre de densité de niveaux \mathbf{a} en fonction des effets de couches (ΔS) et de l'énergie d'excitation.

Cette modélisation est représentée par :

$$\mathbf{a}(\text{U}, \text{N}, \text{Z}) = \tilde{\mathbf{a}}(\text{N}, \text{Z}) \times \left(1 + \frac{\Delta S}{\text{U}} f(\text{U}) \right) \quad (5.32)$$

Où ΔS est la correction de couche dans l'état fondamental du noyau $A=\text{N}+\text{Z}$, $f(\text{U})$ est un facteur d'amortissement qui tient compte de la disparition des effets de couches avec l'énergie d'excitation.

Lorsque ces effets de couches ont disparu, le paramètre de densité de niveaux tend vers la valeur asymptotique :

$$\tilde{\mathbf{a}}(\text{N}, \text{Z}) = \alpha A + \beta A^{\frac{2}{3}} \quad (5.33)$$

Dans cette expression, le premier terme est proportionnel à la masse A du noyau, le second tient compte des effets de surface ($A^{\frac{2}{3}}$). Les paramètres α et β sont des paramètres ajustés sur les espacements moyens des résonances.

Indépendamment du facteur d'amortissement $f(U)$, on notera une augmentation du paramètre de densité de niveaux ($a > \tilde{a}$) pour une correction de couche positive (effet d'anticouche) et une diminution ($a < \tilde{a}$) pour une correction de couche négative.

Pour le paramètre de densité de niveaux asymptotique \tilde{a} et le facteur d'amortissement $f(U)$, nous avons adopté les expressions proposées par Ignatyuk ([Ig75a], [Sc82]) :

$$\tilde{a} = 0,073A + 0,095A^{\frac{2}{3}} \quad (5.34)$$

$$f(U) = 1 - \exp(-\gamma U) \quad (5.35)$$

$$\frac{1}{\gamma} = 0,4 \times \frac{A^{\frac{4}{3}}}{\tilde{a}} \quad (5.36)$$

5.3.7 Définition des effets de couches utilisés dans ce travail

Les densités de niveaux doivent être calculées à différentes déformations du noyau fissionnant : Dans son état fondamental ($G.S$) et au sommet des deux barrières de fission (A) et (B).

Dans le cadre du modèle macroscopique-microscopique, la correction de couche à la déformation (i) est définie par :

$$\Delta S(i) = V_{\text{def}}(i) - V_{\text{ldm}}(i) \quad (5.37)$$

où $V_{\text{def}}(i)$ désigne l'énergie totale de déformation du noyau à la déformation (i). Le terme $V_{\text{ldm}}(i)$, quant à lui, représente la contribution macroscopique (goutte liquide) à l'énergie totale du noyau.

Les hauteurs E_A et E_B des barrières (A) et (B) sont comptées à partir de l'état fondamental ($G.S$) du noyau fissionnant. Cet état fondamental est déformé : son énergie, mesurée par rapport à l'état fondamental sphérique de la goutte liquide, représente la contribution (E_{micro}) des effets de couches à la masse totale du noyau déformé dans son état fondamental. Les hauteurs des barrières sont définies à partir des relations suivantes dont les différents paramètres sont représentés sur la figure (5.4) :

$$\begin{cases} E_A = V_{\text{ldm}}(\beta_A) - E_{\text{micro}} + \Delta S_A \\ E_B = V_{\text{ldm}}(\beta_B) - E_{\text{micro}} + \Delta S_B \end{cases} \quad (5.38)$$

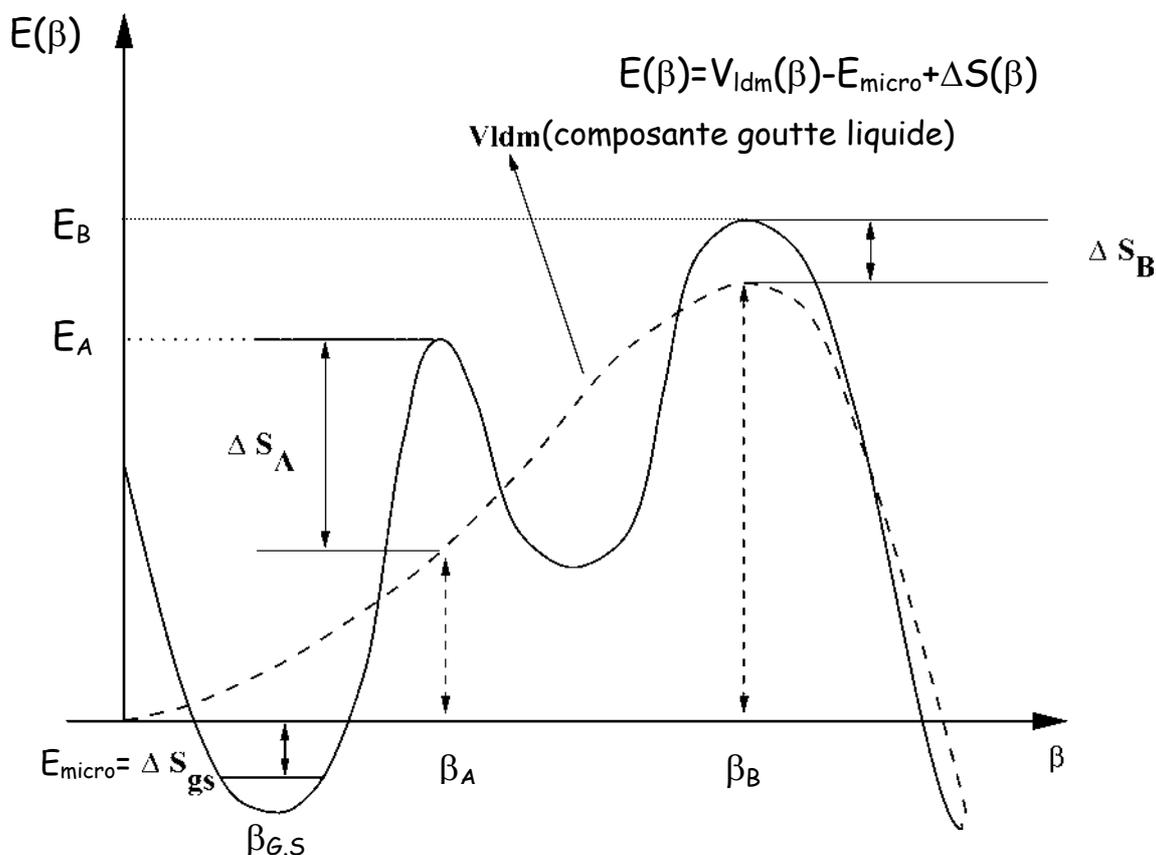


Figure 5.4 : Représentation schématique des différents paramètres permettant de définir la hauteur des barrières de fission.

Dans notre analyse, les effets de couches ΔS_A et ΔS_B interviennent dans les densités de niveaux ρ_A et ρ_B au sommet des barrières (A) et (B). Ces effets de couches sont à l'origine de la double barrière de fission. Leurs valeurs absolues sont comprises entre 0 et 2 MeV. Pour illustrer notre propos nous avons reporté sur les figures (5.5) les corrections de couches en fonction du numéro atomique Z du noyau fissionnant dont le nombre de neutrons est fixé à $N=144$, donc très proche de ^{234}U ($N=142$). Cette figure est extraite de la systématique de Bjørnholm et Lynn [Bj80]. Deux estimations (expérimentale et théorique) sont présentées.

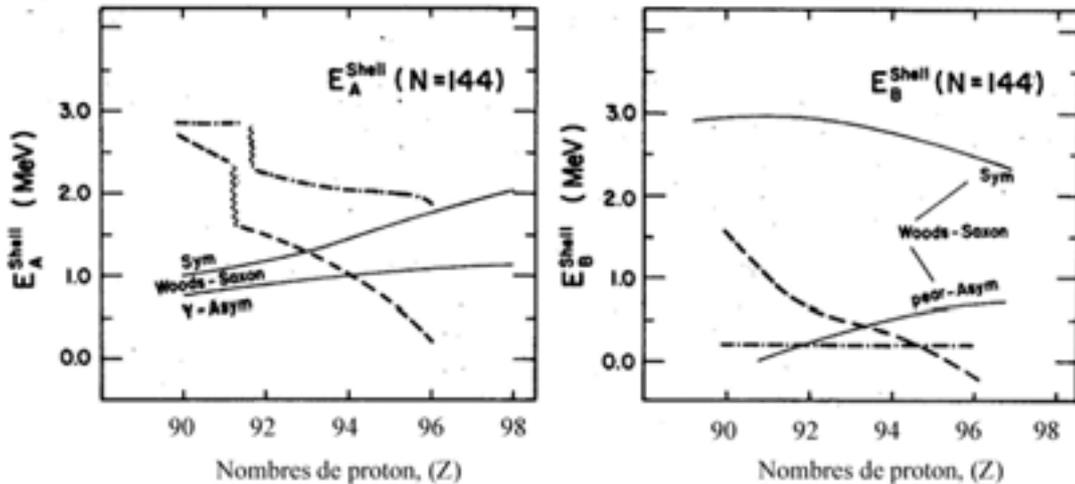


Figure 5.5 : Comparaison expérimentale (lignes en traits pointillés) et théorique (lignes en traits pleins) des corrections de couches au sommet des deux barrières de fission en fonction du nombre de protons.

Pour les noyaux dont les barrières de fission ont été mesurées, les effets de couches ($\Delta S_A = E_A^{\text{shell}}$) et ($\Delta S_B = E_B^{\text{shell}}$) sont obtenus par soustraction de la goutte liquide à la déformation correspondante. La composante goutte liquide ($V_{\text{ldm}}(i)$) est calculée pour deux formulations de la goutte liquide : Celle dite de Lyssekil (*liquid drop*) (1967) et celle plus récente dite « *droplet model* » (1977). Ces deux approches prévoient des corrections de couches ΔS_A et ΔS_B positives [BJ80].

Pour la version la plus récente de la goutte liquide (*droplet model*), les valeurs moyennes des effets de couches $\overline{\Delta S_A}$ et $\overline{\Delta S_B}$ se situent au voisinage de 1 MeV et 0,5 MeV, respectivement, pour $Z=92$.

Les estimations théoriques sont basées sur un calcul du type Strutinsky en utilisant différents puits de potentiel (Woods-Saxon ou puits carré convolué par un potentiel de Yukawa). L'influence de la rupture axiale (γ -Asym) ou de l'asymétrie de masse (pear-Asym) apparaît clairement sur les figures présentées. Pour les Actinides légers dont ^{234}U fait partie, il est admis que le noyau conserve sa symétrie axiale (γ -Asym) à la première barrière et présente une asymétrie de masse (pear-Asym) à la seconde barrière. Les effets de couches calculés ($\Delta S_A=1$ MeV) et ($\Delta S_B=0$ MeV) sont toujours positifs et sont du même ordre de grandeur que ceux extraits de l'expérience.

En ce qui concerne les effets de couches dans l'état fondamental, $\Delta S_{G,S}$, les estimations expérimentales et les prévisions théoriques prévoient des corrections de couches négatives dont les valeurs absolues sont comprises entre 0,5 et 2,5 MeV à $Z=92$. En raison de cette dispersion, il nous a paru plus raisonnable d'assimiler $\Delta S_{G,S}$ à la différence de masse du noyau ^{234}U par rapport à la goutte liquide sphérique. Cette valeur que nous avons appelée plus haut E_{micro} a été extraite de la dernière table de masse de Möller et Nix [Mo95] basée sur la formule goutte liquide dite *droplet model*.

Les moments d'inertie \mathfrak{I}_{\parallel} et \mathfrak{I}_{\perp} ont été calculés pour les déformations correspondant à l'état fondamental des noyaux $(A+1)$ et A , et pour les deux barrières E_A et E_B . Nous avons utilisé les calculs de Howard et Möller [Ho80] qui prévoient, pour ^{234}U , des déformations proches de $\beta_{G,S}(\varepsilon_2) \approx 0,2$ dans le fondamental, $\beta_A(\varepsilon_2) \approx 0,4$ pour la première barrière et de $\beta_B(\varepsilon_2) \approx 0,8$ pour la seconde barrière. Ces déformations correspondent à l'élongation quadripolaire ε_2 du noyau dans la voie fission. Il s'agit pour les barrières (A) et (B) de déformation moyenne sur lesquelles s'accordent la plupart des calculs théoriques. Il n'existe évidemment pas de mesure directe de ces déformations au sommet des barrières. Les déformations (quadripolaires) de l'état fondamental des actinides (dont celles des uraniums) ont été mesurées : Elles sont proches de la valeur $\beta_{G,S}(\varepsilon_2) \approx 0,2$ adoptée dans ce travail. Dans la région des plutoniums et des uraniums où le moment quadripolaire électrique des isomères de fission a été mesuré, la déformation de second puits correspond à $\varepsilon_2 \approx 0,6$ [Me80].

5.3.8 Structure des densités de niveaux en fonction de la déformation du noyau

Pour les noyaux fissionnant considérés dans ce travail ($^{233,234}\text{U}$), les densités de niveaux ont été calculées pour l'état fondamental et au sommet des deux barrières à partir des effets de couche associés à ces déformations. La première barrière est celle d'un noyau à symétrie axiale. En revanche, à la seconde barrière, le noyau fissionnant conserve sa symétrie axiale mais perd sa symétrie par réflexion autour d'un axe perpendiculaire à l'axe de symétrie (asymétrie de masse). La densité des niveaux est multipliée par deux pour tenir compte de la dégénérescence en parité de chaque niveau.

Pour les noyaux ^{232}U et ^{233}U produits par émission de neutrons, notre formulation des densités de niveaux est mal adaptée pour décrire les premiers états excités de ces noyaux dont le nombre et la nature sont liés à leur structure nucléaire. Un simple raisonnement statistique n'est donc certainement pas approprié. Pour des énergies d'excitation inférieure à l'énergie d'appariement ($E^* < \Delta n \sim 0,7$ MeV pour ^{233}U et $E^* < \Delta n + \Delta p \sim 1,4$ MeV pour ^{232}U), on ajoute les niveaux discrets connus et extraits de la littérature [Fi96].

Faute de données expérimentales, il est exclu de tester notre formule de densité de niveaux au sommet des barrières. La comparaison a donc été effectuée pour la déformation correspondant à l'état fondamental et pour une énergie d'excitation du noyau correspondant à l'énergie de liaison (S_n) du neutron capturé. Notre échantillon comprend 23 Actinides ($Z=90-96$) dont les espacements moyens des résonances ($\ell=0$) ont été mesurés. Les incertitudes sur les densités de niveaux mesurées sont rarement indiquées. L'étude systématique de Iljinov [I192] indique des erreurs comprises entre 4.3% et 47.2% pour notre échantillon.

La figure (5.6) présente le rapport des densités de niveaux mesurées et calculées à partir du formalisme que nous venons de présenter. On remarquera que la comparaison est satisfaisante puisque nous retrouvons, en moyenne et à un facteur deux près, les densités de niveaux expérimentales. On soulignera que nous n'avons pas cherché à optimiser l'expression de $\tilde{\alpha}$ proposée par Ignatyuk, qui est ajustée sur une gamme de noyaux plus importante que la nôtre.

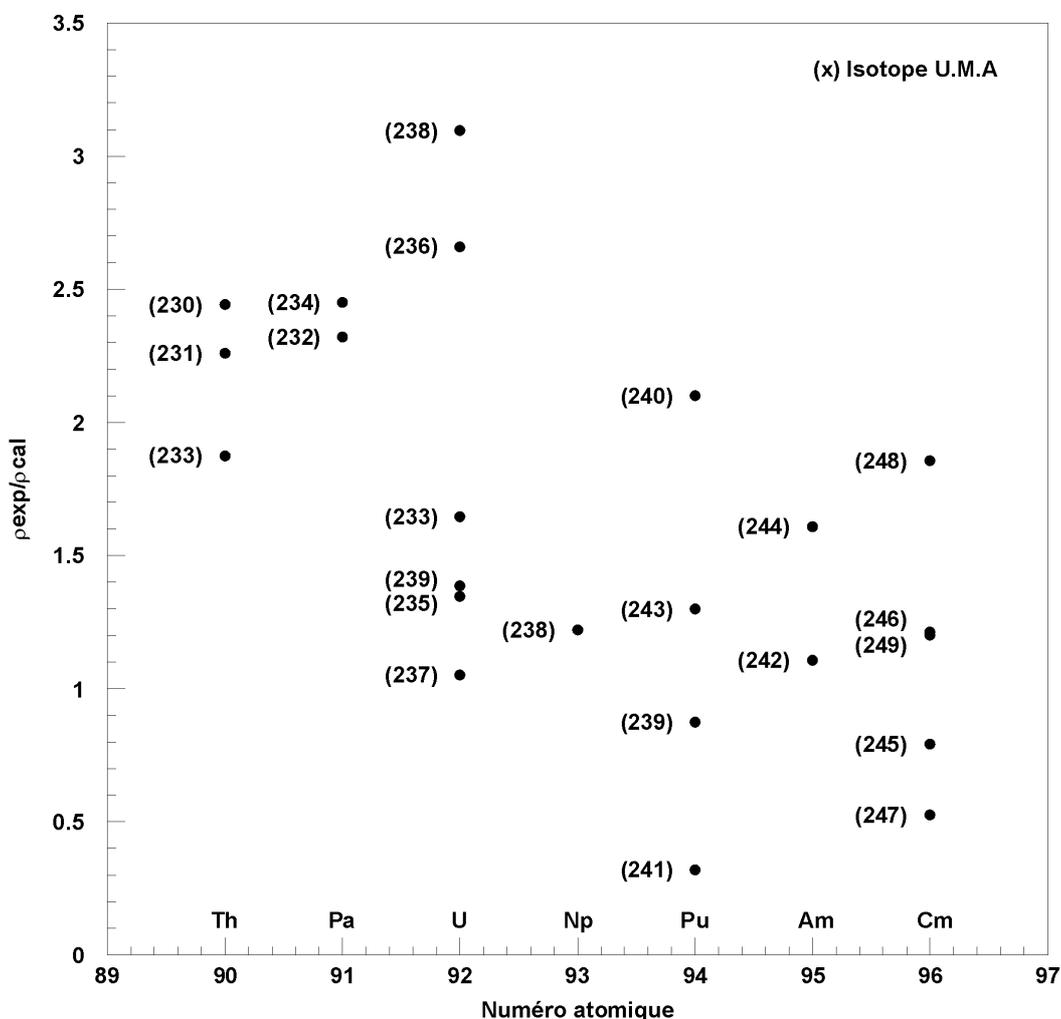


Figure 5.6 : Rapports des densités de niveaux expérimentales et calculées ($E^* \approx S_n$) pour différents actinides.

5.4 Présentation des résultats de notre analyse

Dans cette analyse, nous avons tout d'abord interprété la section efficace de fission à partir du modèle que nous venons de présenter. Les données expérimentales utilisées comprennent nos mesures que nous avons complétées à l'aide des mesures de Meadows [Me74], Carlson [Ca78] et Poenitz [Po78] les plus complètes dans la gamme d'énergie où cette analyse a été effectuée (0,010 à 10 MeV).

Plusieurs paramètres interviennent dans le calcul de la section efficace de fission. Ils correspondent aux hauteurs et largeurs des barrières de fission des noyaux $^{233}, ^{234}\text{U}$, mais également aux densités de niveaux calculées à différentes déformations des noyaux $^{232}, ^{233}, ^{234}\text{U}$. Les paramètres qui interviennent dans l'expression de ces densités de niveaux, sont les effets de couche (ΔS_i) et l'énergie d'appariement (Δ_i). Les effets de couches ont été fixés sur les valeurs mentionnées plus haut (voir § 5.3.7).

En revanche, l'énergie d'appariement Δ_i est un paramètre libre dans cette analyse où l'on suppose que l'énergie d'appariement pour les protons (Δ_p) est la même que pour les neutrons (Δ_n).

La plage de variation de cette énergie d'appariement correspond à un intervalle de plus ou moins 1 MeV autour de la valeur empirique : $\Delta_p = \Delta_n = \frac{12}{\sqrt{A}}$ où A désigne le nombre de masse du noyau considéré.

Pour un jeu complet d'énergie d'appariement (Δ_i), les densités de niveaux sont utilisées pour calculer les largeurs partielles de capture, de diffusion inélastique et de la réaction ($n, 2n$). Les largeurs partielles de fission pour les noyaux ^{233}U et ^{234}U sont déterminées à partir des paramètres ($E_A, \hbar\omega_A, E_B$ et $\hbar\omega_B$) de ces deux noyaux. Une approche itérative permet par approximations successives de comparer les sections efficaces calculées et mesurées. Cette comparaison est effectuée à partir d'un calcul des moindres carrés :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \left[\frac{|\sigma_{\text{cal}}^i - \sigma_{\text{exp}}^i|}{\sigma_{\text{exp}}^i} \right]^2$$

Où i représente le nombre de mesures (avec leurs erreurs σ_{exp}^i) pris en compte dans l'analyse. La recherche de la valeur minimale de cette expression nous a conduit à déterminer les paramètres suivants reportés dans les tableaux (5.1) et (5.2).

Noyau	Etat fondamental (gs)		1 ^{ère} barrière (A)		2 ^{ème} barrière (B)	
^{234}U	$\Delta_n+\Delta_p$ 1,56	ΔS_{gs} -1,23	$\Delta_n+\Delta_p$ 1,56	ΔS_A 1	$\Delta_n+\Delta_p$ 1,56	ΔS_B 0,6
^{233}U	Δ_p 0,72	ΔS_{gs} -1,27	Δ_p 0,792	ΔS_A 1	$\Delta_n+\Delta_p$ 0,792	ΔS_B 0,6
^{232}U	$\Delta_n+\Delta_p$ 1,3	ΔS_{gs} -0,98				

Tableau 5.1: Valeurs des énergies d'appariement et des effets de couche (en MeV) extraites de l'analyse.

Noyau	1 ^{ère} barrière E_A E(MeV) ; K^π	1 ^{ère} barrière E_B E(MeV), K^π
^{234}U	0, 0 ⁺ 0,5; 2 ⁺ 0,4; 0 ⁻	0; 0 ⁺ 0,5; 2 ⁺ 0,2; 0 ⁻
^{233}U	0; $\frac{1^+}{2}$ 0,05; $\frac{3^-}{2}$ 0,08; $\frac{1^-}{2}$ 0,08; $\frac{5^+}{2}$	0; $\frac{1^+}{2}$ 0,05; $\frac{3^-}{2}$ 0,05; $\frac{1^-}{2}$ 0,06; $\frac{5^+}{2}$

Tableau 5.2 : Caractéristiques des voies de fission. Les énergies sont données par rapport aux barrières de fission correspondantes (têtes des bandes de rotation).

Les barrières de fission que nous avons déterminées sont rassemblées dans le tableau (5.3). Pour comparaison, nous avons également reporté les valeurs extraites de la compilation de Bjørnholm et Lynn [Bj80] et les données expérimentales de B. Back [Ba71].

Noyau	Référence	E_A (MeV)	$\hbar\omega_A$ (MeV)	E_B (MeV)	$\hbar\omega_B$ (MeV)
^{234}U	Ce travail [Ba71]	$5,7 \pm 0,2$ 5,6	$1,1 \pm 0,3$ 1	$5,6 \pm 0,1$ 5,5	$0,5 \pm 0,1$ 0,6
^{233}U	Ce travail [Bj80]	$5,2 \pm 0,3$ $\leq 5,8$	$1,1 \pm 0,3$?	$5,7 \pm 0,2$ $\leq 5,8$	$0,5 \pm 0,2$?

Tableau 5.3 : Barrières de fission des noyaux ^{233}U et ^{234}U

Pour ^{234}U , les caractéristiques des barrières de fission sont en bon accord avec celles déterminées par B. Back par réaction de transfert $^{233}\text{U}(d, pf)^{234}\text{U}$. En revanche, la compilation de S. Bjørnholm et J.E. Lynn ne donnent que des valeurs supérieures pour ^{233}U . Celles-ci sont extraites d'analyses anciennes effectuées sur la fission induite par neutrons du noyau ^{232}U dont la durée de vie ne dépasse pas 70 ans.

La figure (5.7) présente la comparaison de la section efficace de fission calculée et les mesures de Meadows, Carlson et Poenitz. Nous avons également reporté les sections efficaces inélastique, de capture et (n, 2n) extraites de notre modèle. Ces sections efficaces ont été calculées à partir de la désexcitation du noyau composé ^{234}U .

A la section efficace de diffusion inélastique nous devons ajouter la section efficace inélastique d'interaction directe calculée par les théoriciens de Bruyères Le Châtel [BA04].

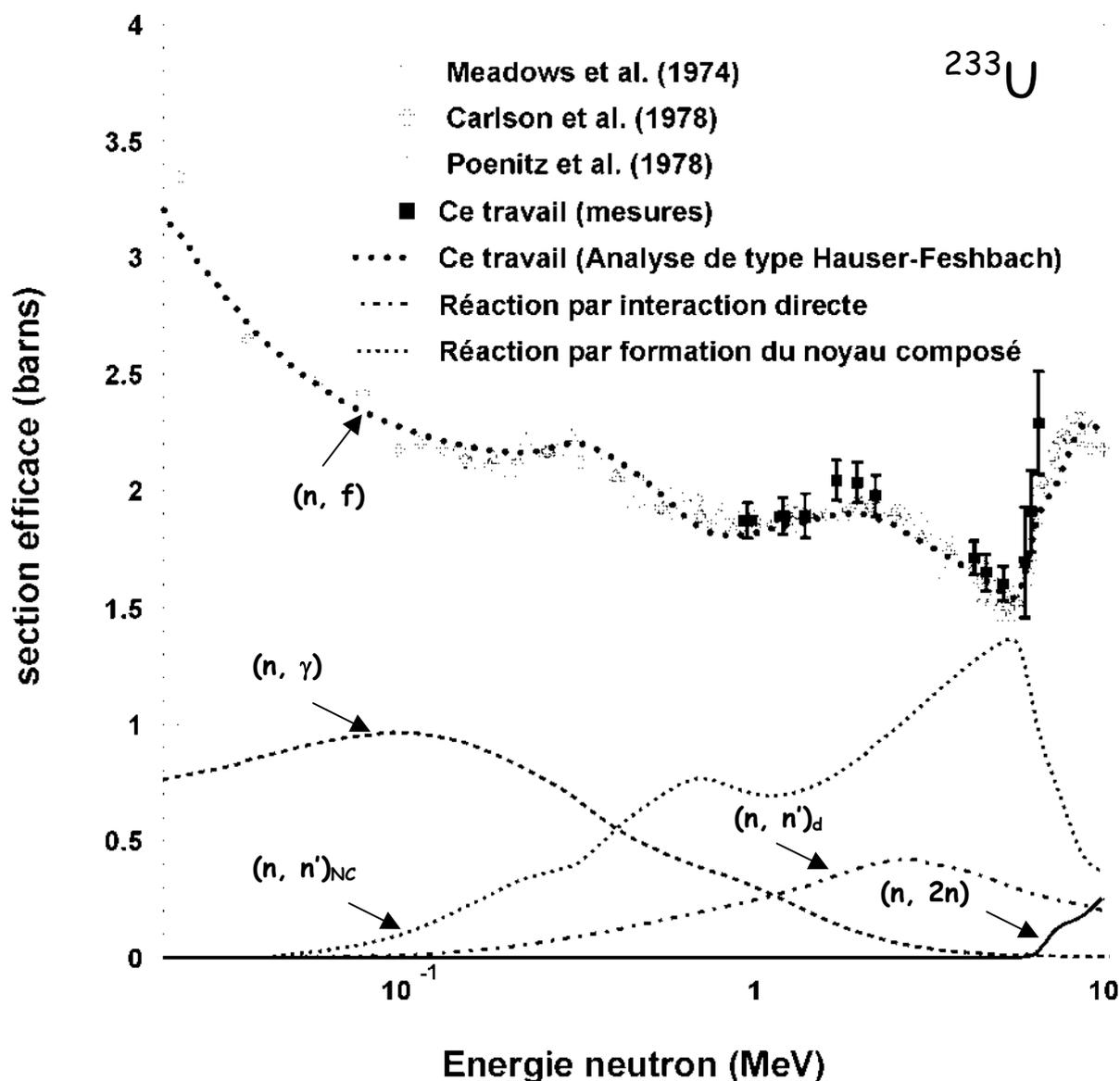


Figure 5.7 : Sections efficaces des réactions (n, f) , (n, γ) , $(n, n')_{NC}$ et $(n, 2n)$ issues de notre analyse de type Hauser-Feshbach pour des neutrons d'énergie comprise entre 0,01 et 10 MeV.

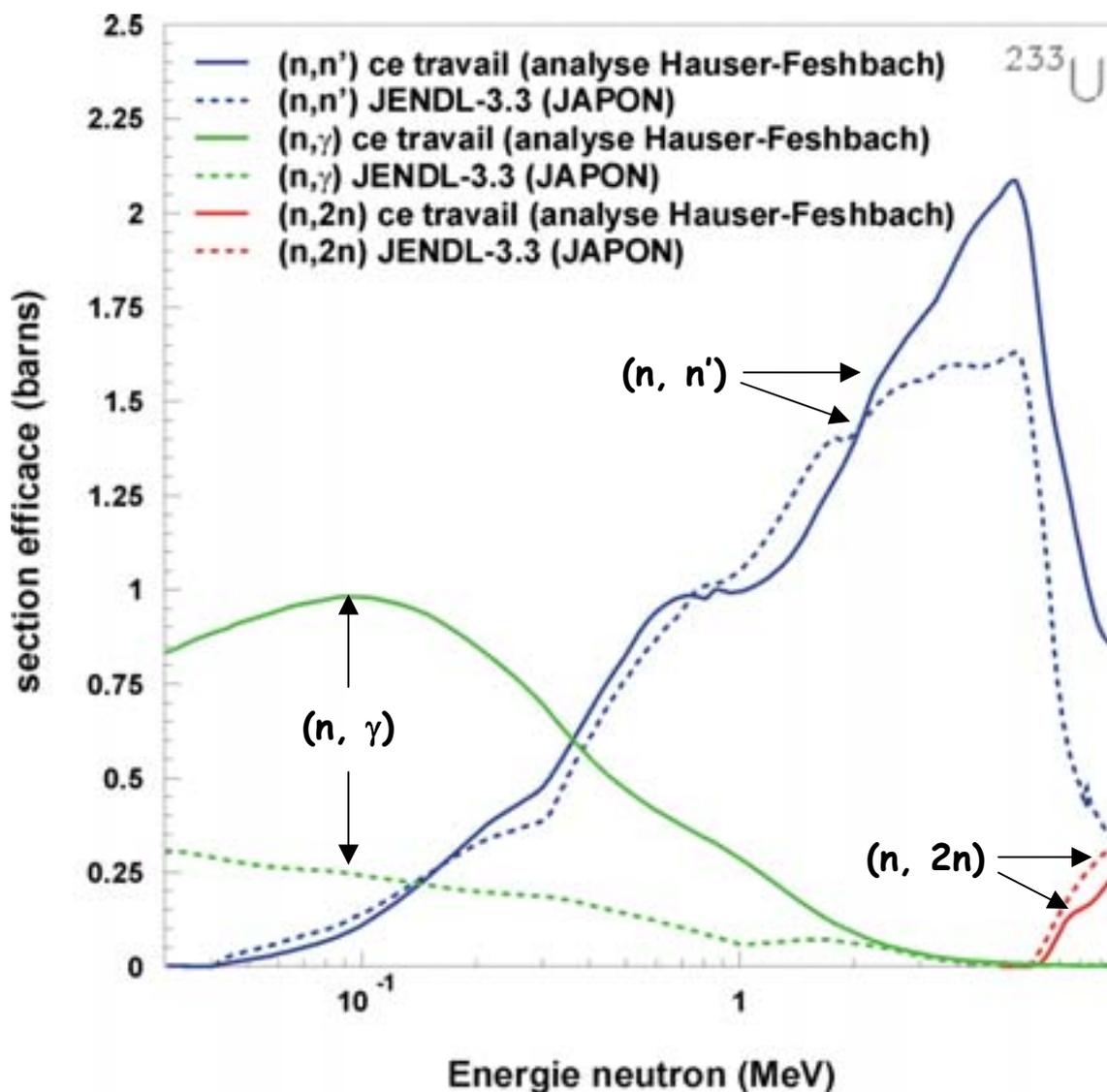


Figure 5.8 : Comparaison des sections efficaces des réactions (n, n') , (n, γ) et $(n, 2n)$ issues de notre analyse et celles extraites de la base de données JENDL-3.3.

En dehors de la fission, aucune mesure n'est disponible pour tester les prédictions de notre modèle. Parmi les banques de données existantes, c'est la banque de données JENDL-3.3 qui paraît la plus complète. Là encore, les sections efficaces (n, γ) , (n, n') et $(n, 2n)$ sont extraites d'un modèle statistique (CASTHY) dont les données d'entrée sont différentes des nôtres : Les densités de niveaux sont du type Gilbert et Cameron. Néanmoins ces données ont fait l'objet de normalisations :

- La section efficace de capture $^{233}\text{U}(n, \gamma)$ pour laquelle il n'existe pas de mesures dans le domaine des neutrons rapides de 0.1 à 1 MeV. Les valeurs proposées par JENDL-3.3 et ENDF/B-VI ont été obtenues à partir du rapport α (rapport des sections efficaces de capture et de fission) mesuré par Hopkins et Diven [Ho62]. La normalisation est effectuée à 1 MeV avec $\sigma(n, \gamma)=0,0578$ barns. On peut contester cette procédure sachant que, pour l' ^{233}U , la compilation des rapports α mesurés dans les années 60 présente dans le domaine des neutrons de résonance des écarts de 28 %.

- La section efficace de diffusion inélastique pour laquelle les valeurs calculées ont été ajustées pour reproduire les données de Smith et al (aucune trace de cette mesure n'apparaît dans la base EXFOR/CSISRS). On remarquera néanmoins qu'entre 0,040 et 0,8 MeV, notre calcul est quantitativement en bon accord avec JENDL-3.3 (voir figure 5.8). Cette région en énergie correspond à la diffusion inélastique composée sur les niveaux discrets de ^{233}U . Nous avons utilisé la même séquence de niveaux discrets que celle choisie par JENDL-3.3.
- La section efficace (n, 2n) pour laquelle les valeurs calculées ont été normalisées sur la section efficace moyenne mesurée par Kobayashi et al [Ko73] à partir d'un spectre de neutrons de fission. Entre 6 et 10 MeV, nos valeurs de sections efficaces sont plus faibles que celles proposées par JENDL-3.3 (la différence varie de 50 à 90 mb).

On notera que notre désaccord avec la base de données JENDL-3.3 concerne la section efficace de capture (n, γ). Ce désaccord a vraisemblablement pour origine la normalisation effectuée (voir ci-dessus) et les données d'entrée du code statistique utilisé dans JENDL-3.3. Nous avons rassemblé dans le tableau suivant toutes les sections efficaces mises en jeu dans ce calcul pour une énergie de neutron de 0,100 MeV. Les sections efficaces reportées sont celles proposées par JENDL-3.3 et ENDF/B-VI.

Section efficace (barns)	JENDL-3.3	ENDF/B-VI	Ce travail
σ_T	12,035	12,1	12,511
σ_{el}	9,45	9,47	9,120
σ_f	2,2	2,2	2,2
$\sigma_{(n, n')}$	0,139	0,174	0,106
$\sigma_{(n, \gamma)}$	0,241	0,233	0,964
σ_R	2,58	2,6	3,27

Tableau 5.4 : Sections efficaces totale (σ_T), élastique (σ_{el}), de fission (σ_f), inélastique ($\sigma_{(n, n')}$), de capture ($\sigma_{(n, \gamma)}$) et de réaction (σ_R) pour une énergie de neutron de 0,1 MeV extraites des bases de données JENDL-3.3, ENDF/B-VI et de notre analyse.

Notre valeur de la section efficace de fission est en bon accord avec les bases de données. Notre valeur de la section efficace (n, n') s'avère 23 % ou 33 % inférieure à JENDL-3.3 ou ENDF/B-VI. La somme des sections efficaces $\sigma(n, f)$, $\sigma(n, n')$ et $\sigma(n, \gamma)$ représente la section efficace de réaction σ_R . Notre valeur est 30 % plus élevée que celles de JENDL-3.3 ou ENDF/B-VI. Cette différence se retrouve évidemment dans les sections efficaces totale et élastique. Notre section efficace totale diffère d'environ 0,500 barns par rapport à celles des bases de données américaine et japonaise. Le désaccord provient ici de la nature du modèle optique utilisé. Pour JENDL-3.3 et ENDF/B-VI, il s'agit d'un modèle phénoménologique dont les paramètres ont été réajustés sur la mesure de la section efficace totale.

Dans notre calcul, il s'agit d'une approche microscopique de ce modèle optique dont l'intérêt principal est ici de pallier aux manques de données expérimentales concernant l'interaction d'un neutron avec le noyau cible ^{233}U . Ces données concernent les sections efficaces totale, élastique, et inélastique dont les mesures sont encore trop peu nombreuses. Par cohérence avec notre modèle, nous n'avons pas choisi de normaliser nos calculs sur des données expérimentales peu fiables ($n, 2n$) ou indirectes (n, γ). Cette analyse montre que le caractère prédictif des modèles optique et statistique pourrait être amélioré. Elle justifie l'effort déployé par les expérimentateurs pour compléter les mesures existantes concernant le noyau ^{233}U , l'un des noyaux clés de la filière thorium.

CONCLUSION

L'objectif de ce travail concernait la mesure des sections efficaces de fission induites par neutrons rapides d'énergie comprise entre 1 et 7 MeV des noyaux ^{233}U et ^{232}Th . Il s'inscrit dans le cadre de la recherche de nouveaux cycles de combustible pour des systèmes innovants afin de réduire la production des déchets radioactifs générés par l'ensemble du parc électronucléaire. En effet, la filière du thorium (cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$) présente des caractéristiques moins polluantes que la filière uranium utilisée dans les réacteurs actuels. En revanche, les données nucléaires concernant le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ ne satisfont pas, encore aujourd'hui, aux besoins futurs concernant notamment la mise en place de systèmes hybrides (réacteur couplé à un accélérateur). Ces systèmes devraient permettre de transmuter en ligne les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue (déchets HAVL ou de type C) provenant essentiellement des combustibles usés du parc électronucléaire. En particulier, des efforts importants doivent être réalisés concernant la précision mais également la fiabilité des données concernant les sections efficaces de capture et de fission des éléments composant cette filière (^{232}Th , ^{233}Pa , ^{233}U) et des éléments transmutables (actinides mineurs et produits de fissions). Les précisions demandées, aujourd'hui, concernant les voies de réaction $^{232}\text{Th}(n, f)$ et $^{233}\text{U}(n, f)$ sont respectivement de l'ordre de 5 et 1 %.

Nous avons vu qu'une mesure de section efficace de fission induite par neutrons implique de déterminer le nombre de fragments de fission émis par la cible, le nombre d'atomes de l'actinide étudié contenus dans cette cible et le flux de neutrons arrivant sur celle-ci. La détermination de ce flux est délicate et fait souvent appel à l'utilisation de réactions secondaires dites de référence. Compte tenue de la précision demandée sur ces mesures, nous avons choisi la diffusion élastique (n, p) comme réaction de référence, car sa section efficace est la mieux connue actuellement (~ 0,5 %) sur une large gamme en énergie de neutron (de 1 eV à 50 MeV). Un détecteur à protons de recul émis par un film mince de polypropylène a été étudié. Ses caractéristiques et ses performances ont été décrites. Ce dispositif a été utilisé pour la détermination du flux de neutrons pour des énergies comprises entre 1 et 7 MeV. Notre méthode de détermination du flux de neutrons a été comparée à une technique par activation (réaction $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$). Les résultats obtenus sont en très bon accord (écart 3,5 %) et valident notre technique de détection des neutrons.

La mesure de la section efficace de fission de ^{238}U induite par des neutrons d'énergie comprise entre 4,2 et 6,5 MeV, nous a ensuite permis de valider l'ensemble de notre méthode expérimentale. Cette méthode a été appliquée, tout d'abord, au noyau ^{232}Th sur le même domaine en énergie et également au niveau de la résonance à 1,6 MeV. Nos résultats sont en bon accord avec les données expérimentales les plus récentes. Ils montrent également que la section efficace de fission du ^{232}Th est légèrement sous estimée par les bases de données (en particulier ENDF/B-VI) entre 3 et 6 MeV.

La précision sur nos mesures est globalement de l'ordre de 4,5 %. Elle répond donc aux exigences actuelles. Quant au noyau fissile ^{233}U , les résultats obtenus sont plus contrastés.

Pour des neutrons d'énergie inférieure à 6 MeV, nos mesures sont en bon accord avec les données évaluées mais l'incertitude associée à celles-ci (4,5 % en moyenne) est plus élevée que la précision demandée. Au delà de 6 MeV, les mesures ont dues être corrigées de la contribution des neutrons parasites provenant de l'interaction du faisceau de deutons avec les atomes d'oxygène (réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$) présents dans nos cibles TiD. L'intensité du flux de ces neutrons parasites est comparable au flux de neutrons principal. L'incertitude associée à ces trois mesures après correction s'est largement détériorée (~ 10 %). Pour éliminer ces contributions parasites, une cible de deutérium gazeux (D_2) devrait être prochainement mise en place au C.E.N.B.G. Notre dispositif sera alors utilisé pour la mesure des sections efficaces de fission des noyaux ^{241}Am et ^{243}Am qui font également l'objet d'un vaste programme de mesures associées à la transmutation des actinides mineurs.

La dernière partie de ce travail concerne l'interprétation de la section efficace de fission de ^{233}U induite par des neutrons d'énergie comprise entre 0,010 et 10 MeV. Un modèle statistique de type Hauser- Feshbach a été développé et utilisé pour modéliser la section efficace de fission (1^{ère} et 2^{ème} chance) de ^{233}U . Les sections efficaces de capture radiative $^{233}\text{U}(n, g)$, inélastique $^{233}\text{U}(n, n')$ et $^{233}\text{U}(n, 2n)$ ont été extraites de ce modèle et comparées aux valeurs proposées par les banques de données JENDL-3.3 et ENDF/B-VI. Malheureusement, le manque de mesures fiables concernant l'interaction d'un neutron avec le noyau cible ^{233}U rend difficile cette comparaison et la validation des modèles utilisés. Cette analyse montre qu'un effort expérimental important doit être encore déployé pour améliorer la qualité des mesures existantes concernant le noyau ^{233}U , l'un des noyaux clés de la filière thorium.

ANNEXES

Annexe A : Paramètres physiques de quelques isotopes

Le tableau ci- dessous est extrait de la conférence de Trieste en Italie, intitulée "Nuclear Reaction Data and Nuclear Reactors : Physics, Design and Safety" qui a eu lieu en mars 2000 [Sa00].

Isotope	Period	E (W/g)	neutrons/g/s		E _γ (keV)	γ ray	Dose coeff. (Sv/Bq)	
			FS	(α,n)			ICRP-30	ICRP-68
²³² Th	1.40 10 ¹⁰ y	2.34 10 ⁻⁹			1.2		7.40 10 ⁻⁷	2.3 10 ⁻⁷
²³¹ Pa	3.28 10 ⁴ y	1.25 10 ⁻³			38.7	27 keV (11%) 303 keV (2%) 300 keV (2%)	2.89 10 ⁻⁶	7.1 10 ⁻⁷
²³² U ²⁰⁸ Tl	69.8 y 3.06 mn	0.620	1.05	1.85 10 ⁴	1.7 3385.2	2615 keV (100%) 583 keV (85%) 861 keV (13%)	3.44 10 ⁻⁷	2.9 10 ⁻⁷
²³³ U	1.59 10 ⁵ y	2.46 10 ⁻⁴	4.19 10 ⁻⁴		1.2		7.20 10 ⁻⁸	5.0 10 ⁻⁸
²³⁴ U	2.46 10 ⁵ y	1.57 10 ⁻⁴	4.06 10 ⁻³	3.44	1.5		7.20 10 ⁻⁸	4.9 10 ⁻⁸
²³⁵ U	7.04 10 ⁸ y	5.21 10 ⁻⁸	6.51 10 ⁻⁴	7.68 10 ⁻⁴	167.8	186 keV (57%) 144 keV (11%)	6.80 10 ⁻⁸	4.6 10 ⁻⁸
²³⁶ U	2.34 10 ⁷ y	1.54 10 ⁻⁶	4.04 10 ⁻³	2.45 10 ⁻²	1.2		6.70 10 ⁻⁸	4.6 10 ⁻⁸
²³⁸ U	4.47 10 ⁹ y	7.47 10 ⁻⁹	1.89 10 ⁻²	8.74 10 ⁻⁵	1.3		6.70 10 ⁻⁸	4.4 10 ⁻⁸
²³⁷ Np ²³³ Pa	2.14 10 ⁶ y 27.0 d	1.80 10 ⁻⁵ 1.51 10 ⁻⁶	~ 10 ⁻⁴	0.322	33.5 215.8	14 keV (56%) 86 keV (12%) 312 keV (39%) 98 keV (15%)	1.06 10 ⁻⁶ -	1.1 10 ⁻⁷ 8.8 10 ⁻¹⁰
²³⁸ Pu	87.7 y	0.499	2.28 10 ³	1.58 10 ⁴	1.5		1.00 10 ⁻⁶	2.3 10 ⁻⁷
²³⁹ Pu	2.41 10 ⁴ y	1.70 10 ⁻³	2.61 10 ⁻²	46.4	0.7		1.16 10 ⁻⁶	2.5 10 ⁻⁷
²⁴⁰ Pu	6.56 10 ³ y	6.21 10 ⁻³	931	170	1.4		1.16 10 ⁻⁶	2.5 10 ⁻⁷
²⁴¹ Pu	14.4 y	2.85 10 ⁻³					2.36 10 ⁻⁶	4.7 10 ⁻⁶
²⁴² Pu	3.74 10 ⁵ y	1.03 10 ⁻⁴	1.63 10 ³	2.58	1.3		1.16 10 ⁻⁶	2.4 10 ⁻⁷
²⁴¹ Am	433 y	0.100	0.796	3.17 10 ³	28.2	60 keV (36%) 14 keV (36%)	1.20 10 ⁻⁶	2.0 10 ⁻⁷
^{242m} Am	141 y	1.67 10 ⁻³			5.0		1.14 10 ⁻⁶	1.9 10 ⁻⁷
²⁴² Am ²³⁹ Np	7.36 10 ³ y 2.36 d	5.66 10 ⁻³ 4.65 10 ⁻⁴		177	57.0 182.2	75 keV (66%) 15 keV (51%) 106 keV (27%) 104 keV (25%) 100 keV (16%) 278 keV (14%) 61 keV (13%) 228 keV (11%)	1.19 10 ⁻⁶ -	2.0 10 ⁻⁷ 8.0 10 ⁻¹⁰
²⁴² Cm	163 d	107	1.72 10 ⁷	4.18 10 ⁶	1.4		3.54 10 ⁻⁸	1.3 10 ⁻⁸
²⁴³ Cm	30.0 y	1.56		6.09 10 ⁴	133.2	104 keV (24%) 228 keV (11%) 278 keV (14%) 100 keV (15%)	7.86 10 ⁻⁷	2.0 10 ⁻⁷
²⁴⁴ Cm	18.1 y	2.50	1.01 10 ⁷	8.84 10 ⁴	1.3		6.00 10 ⁻⁷	1.6 10 ⁻⁷
²⁴⁵ Cm	8.50 10 ³ y	4.98 10 ⁻³			93.8	104 keV (30%) 100 keV (18%) 175 keV (10%) 117 keV (7%)	1.20 10 ⁻⁶	3.0 10 ⁻⁷
²⁴⁶ Cm	4.73 10 ³ y	8.90 10 ⁻³	~ 7 10 ⁶	<< FS	3.0		1.19 10 ⁻⁶	2.9 10 ⁻⁷
²⁴⁷ Cm	1.60 10 ⁷ y	2.53 10 ⁻⁶			302.8	403 keV (69%) 278 keV (3%)	1.11 10 ⁻⁶	2.7 10 ⁻⁷
²⁴⁸ Cm	3.40 10 ⁵ y	4.66 10 ⁻⁴	~ 3 10 ⁷	<< FS	579.1	579 keV (100%)	4.40 10 ⁻⁶	1.1 10 ⁻⁶

Annexe B : Validation de la simulation d'angle solide Ω par méthode Monte Carlo dans le cas d'une source isotrope

Les résultats du programme de simulation d'angle solide que nous avons mis au point ont été comparés aux mesures expérimentales dans le cas simple d'une source d'émission isotrope (source étalon α dont les caractéristiques sont énumérées dans le tableau 2.4). L'activité nominale de cette source est de 468 ± 14 Bq dans 2π stéradians (donnée constructeur). Or nos mesures ont été effectuées deux ans après sa date de fabrication, Il faut donc redéfinir l'activité de la source α à cette date. A l'instant t , l'activité $A(t)$ de la source est donnée par l'équation suivante :

$$A(t) = A_0 \cdot \frac{0,35 \cdot \exp(-\lambda_{249_{Pu}} t) + 0,34 \cdot \exp(-\lambda_{241_{Am}} t) + 0,31 \cdot \exp(-\lambda_{244_{Cm}} t)}{0,35 \cdot \lambda_{249_{Pu}} + 0,34 \cdot \lambda_{241_{Am}} + 0,31 \cdot \lambda_{244_{Cm}}} \quad (A.4)$$

Avec $t = 700$ jours = $6,048 \cdot 10^7$ s et $A_0 = 468 \pm 14$ Bq, on obtient :

$$A_{th} = 436 \pm 13 \text{ Bq}$$

(la précision donnée par le constructeur sur A_0 est de 3%).

Le montage expérimental (figure A.1) est composé de la source étalon α et d'une jonction silicium de $150 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La surface de détection est assurée par un collimateur de 15 mm de diamètre.

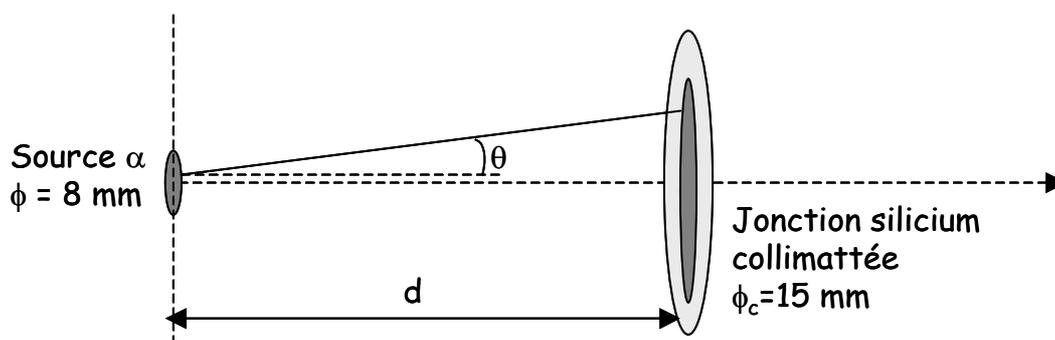


Figure A.1 : Mesure expérimentale de l'activité de la source étalon α

Les mesures consistent à détecter les particules α émises en faisant varier la distance entre la source α et la jonction. On observe trois pics que l'on intègre afin d'obtenir le nombre de particules α détectées N_{α}^{det} dans l'angle solide Ω . Les différents angles solides du montage sont ensuite déterminés par simulation.

Le programme consiste à prendre un point quelconque d'un disque aux dimensions de la source étalon ($\Phi_{\text{actif}}=8$ mm) où une particule α est émise de manière isotrope dans l'espace (tirages aléatoires sur les angles θ et φ en coordonnées sphériques). On introduit les différents paramètres géométriques de l'expérience (distance source - jonction, diamètre du collimateur de la jonction), puis on compte sur un grand nombre d'événements (N_{tirage}), le nombre de particules α (N_{hit}) dont les trajectoires rencontrent la surface de détection de la jonction silicium. L'angle solide simulé s'exprime alors de la manière suivante:

$$\Omega = 4\pi \cdot \frac{N_{\text{hit}}}{N_{\text{tirage}}} \quad (\text{A.1})$$

Pour une bonne précision sur Ω , la simulation est arrêté lorsque $N_{\text{hit}}=10^6$.

Connaissant l'angle solide de détection Ω , nous en déduisons l'activité de la source dans 2π stéradians pour chaque valeur de d telle que :

$$A = \frac{2\pi}{\Omega} \cdot \frac{N_{\alpha}^{\text{det}}}{\Delta t} \quad (\text{A.2}) \quad \text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l} \Omega : \text{angle solide simulé} \\ N_{\alpha}^{\text{det}} : \text{nombre de particules } \alpha \text{ mesurées} \\ \text{expérimentalement pendant un temps } \Delta t \end{array} \right.$$

Nous avons porté en ordonnée sur la figure (A.2), le taux d' α détectés et en abscisse, l'angle solide simulé pour chaque distance d . Nous observons bien une diminution linéaire du taux de particules α détectées en fonction de Ω au fur et à mesure que l'on éloigne le détecteur de la source.

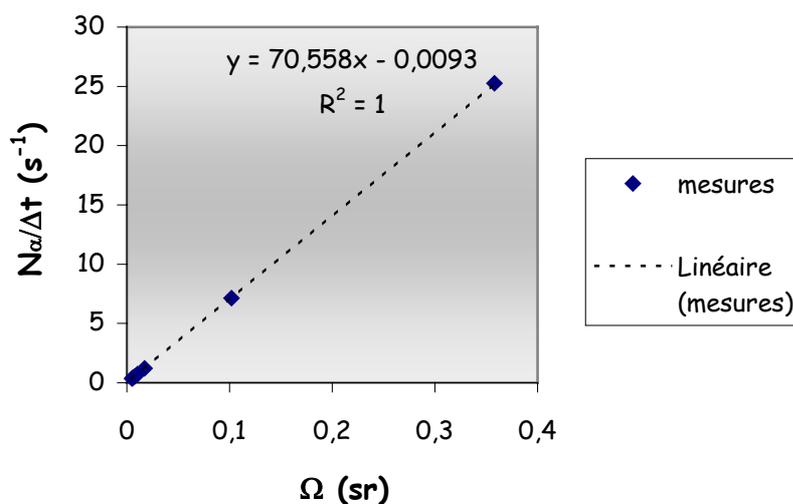


Figure A.2 : taux de particules α détectées en fonction de l'angle solide Ω simulé

Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau (A.1) :

D (mm)	Δt (s)	N_{α}^{det}	Ω (sr)	$\frac{\Delta\Omega}{\Omega}$ (%)	A_{exp} (Bq)	$\frac{\Delta A_{\text{exp}}}{A_{\text{exp}}}$ (%)
21	4952	125114	0,358	4.21	443,4	4,49
41	10402	74278	0,102	2.35	440,1	2,72
101	109443	132445	0,0172	1,00	441,2	1,27
130	107467	79040	0,0104	0,75	443	1,10
150	124433	68541	0,00784	0,66	441,5	1,04
170	237402	101412	0,00611	0,55	439,6	0,87
190	186574	63541	0,00488	0,54	437,6	0,93

Tableau A.1 : Résultats des mesures expérimentales de l'activité de la source étalon α

L'incertitude sur l'angle solide est obtenue en considérant une erreur sur la distance entre la source et la jonction (d) de 0,5 mm. Pour chacune des distances, l'activité A_{exp} de la source reste constante aux incertitudes près. En moyenne, on obtient :

$$\overline{A_{\text{exp}}} = 440,9 \pm 2,7 \text{ Bq} \quad \left(\Delta A_{\text{exp}} = \sqrt{A_{\text{exp}}^2 - (\overline{A_{\text{exp}}})^2} \right) \quad (\text{A.3})$$

L'activité expérimentale obtenue est bon accord avec l'activité théorique de la source (écart $\approx 1,1$ %). Ce programme est donc bien adapté à la simulation d'angle solide pour une source étendue dans le cas d'une émission de particules isotrope. La cohérence de ces résultats nous conduit à appliquer ce type de simulation pour déterminer tous les angles solides intervenant dans nos différentes expériences.

Bibliographie

- [As99] Résumé du rapport de la conférence "Assessment of Nuclear Data Needs for Thorium and other Advanced Cycles", **INDC(NDS)-408**, AIEA, Vienne août 1999.
- [Ba49] H. H. Barschall et R. F. Taschek, *Phys. Rev.*, **75**, 1819 (1949).
- [Ba71] B. B. Back, J. P. Bondorf, G. A. Otroschenko, J. Pedersen et B. Rasmussen, *Nucl. Phys.*, **A165**, 449 (1971)
- [Ba76] D. M. Barton, B. C. Diven, G. E. Hansen, G. A. Jarvis, P. G. Koontz et R. K. Smith, *Nucl. Sci. and Eng.*, **60**, 369 (1976).
- [Ba77] G. Barreau, *Thèse d'état*, Bordeaux (1977)
- [Ba91] C. Bataille, loi n°91-1381 du 30 Décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Journal Officiel- lois et décrets.
- [Ba04] E. Bauge, communication privée (2004)
- [Be77] J. W. Behrens et G. W. Carlson, *Nucl. Sci. and Eng.*, **63**, 250 (1977).
- [Be02] Jean Bergeron, " La maîtrise de l'inventaire plutonium en REP ", *Clefs CEA N°46 -printemps 2002*, 45 (2002)
- [Bi63] M. Birk, G. Goldring, P. Hillman, *Nucl. Instrum. Methods*, **21**, 197 (1963).
- [Bj80] S. Bjørnholm et J. E. Lynn, *Reviews of Modern Physics* (1980).
- [Bl52] J. M. Blatt et V. F. Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics*, *John Wiley and Sons*, New-York (1952).
- [Bo56] A. Bohr, "Peaceful Uses of Atomic Energy", *rapport de la conférence de Genève de 1955*, Vol 2, 220 (1956)
- [Bo98] A. Bohr et B. R. Mottelson, *Nuclear Structure*, *World Scientific Publishing Co. Pte , Ltd.* (1998).
- [Bo04] S. Boyer, *thèse de doctorat*, Bordeaux 1 (2004).
- [Br51] J. E. Brolley, JR., J. H. Coon, et J. L. Fowler, *Phys. Rev.*, **82**, 190 (1951).

- [Br57] R. C. Briant, A. M. Weinberg, *Nucl. Sci. and Eng.*, **2**, 795 (1957).
- [Bu63] J. P. Butter et D. C. Santry, *Chin. J. Phys.*, **41**, 372 (1963).
- [Ca78] G. W. Carlson et J. W. Behrens, *Nucl. Sci. and Eng.*, **66**, 205 (1978)
- [Fi96] R. B. Firestone, *Table of Isotope*, Vol II, 2568 et 2595 (1996).
- [Fo70] E. Fort, J. L. Leroy et J. P. Marquette, *Nucl. Instrum. Methods*, **85**, 115 (1970).
- [Fu91] B. I. Fursov, E. Yu. Baranov, M. P. Klemyshev, B. F. Samylin, G. N. Smirenkin, Yu. M. Turchin, *Atom. Ener.*, **71**, (4), 320 (1991).
- [Ga63] J. L. Gammel, "The n- p Total and Differential Cross Sections in the Energy Range 0- 40 MeV", *Fast Neutron Physics*, vol **4**, p. 2185, J. B. Marion et J. L. Fowler, Eds., Interscience Publishers, Inc., New York (1963)
- [Go71] H. Gotoh et H. Yagi, *Nucl. Instrum. Methods*, **97**, 419 (1971)..
- [Go72] H. Gotoh et H. Yagi, *Nucl. Instrum. Methods*, **101**, 395 (1972).
- [Go78] P. D. Goldstone, F. Hopkins, R.E. Malmin et P. Paul, *Phys. Rev. C*, **18**, 1706 (1978)
- [Gr72] W. Gruhle, *Nucl. Phys.*, **A186**, 257 (1972).
- [Ha49] J. Hadley, E. Kelly, C. Leith, E. Segrè, C. Wiegand, et H. York, *Phys. Rev.*, **75**, 351 (1949).
- [Ha52] U. Hauser et H. Feshbach, *Phys. Rev.*, **87**, 366 (1952).
- [Ha76] G. E. Hansen, R. K. Smith et G. G. Simons, *Technical notes*, "Geometrical efficiency Equation for Proton Recoil Telescopes", 269 (1976)
- [He56] R. L. Henkel et J. E. Brolley, Jr., *Phys. Rev.*, **103**, 1292 (1956).
- [Ho62] J. C. Hopkins et B. C. Diven, *Nucl. Sci. and Eng.*, **12**, 169 (1962)
- [Ho71] J. C. Hopkins et G. Breit, *Nucl. Data Tables*, **A9**, 137 (1971).
- [Ho80] W. M. Howard et P. Möller, *Atom. Data and Nucl. Data Tabl.*, Vol **25** n°3, 219 (1980)
- [Hs81] C. M. Hsieh, P. C. Murley et R. R. O'Brien, *IEEE Trans. Electron Device Letter*, **EDL-2**, 103 (1981).

- [Ig75a] A. V. Ignatyuk, G. N. Smirenkin et A. S. Tishin, *Yad. Fiz.*, **21**, 485 (1975), *Sov J. Nucl. Phys.*, **21**, 255 (1975).
- [Ig75b] A. V. Ignatyuk, M. G. Itkis, V. N. Okolovitch, G. N. Smirenkin et A. S. Tishin, *Yad. Fiz.*, **21**, 1185 (1975), *Sov J. Nucl. Phys.*, **21**, 612 (1975).
- [Ig79] A. V. Ignatyuk, K. K. Isekov et G. N. Smirenkin, *Yad. Fiz.* **29**, 875 (1979), *Sov J. Nucl. Phys.*, **29**, 450 (1979).
- [Ig93] A. V. Ignatyuk, J. L. Weil, S. Raman et S. Kahane, *Pys. Rev.*, **C 47**, 1504 (1993).
- [Il92] A. S. Iljinov et M. V. Mebel, *Nucl. Phys.*, **A543**, 517 (1992).
- [Jo60] C. H. Johnson, "Recoil Telescope Detectors", *Fast Neutron Physics*, vol 1, p. 247, J. B. Marion et J. L. Fowler, Eds., Interscience Publishers, Inc., New York (1960).
- [Ju98] A. R. Juunghans, M. de Jong, H. G. Clerc, A. V. Ignatyuk, G. A. Kudyaev et K. H. Schmidt, *Nucl. Phys.*, **A629**, 635 (1998).
- [Ka01] D. Karamanis, M. Petit, S. Andraimonje, G. Barreau, M. Bercion, A. Billebaud, B. Blank, S. Czajkowski, R. Del Moral, J. Giovinazzo, V. Lacoste, C. Marchand, L. Perrot, M. Pravikoff et J. C. Thomas, *Nucl. Sci. and Eng.*, **139**, 282 (2001).
- [Kn79] G. F. Knoll, *Radiation detection and Mesurement*, JOHN WILEY & SONS, 380 (1979).
- [Ko63] J. Konijn et A. Lauber, *Nucl. Phys.*, **48**, 191 (1963).
- [Ko73] K. Kobayashi, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **10**, 668 (1973).
- [Ky97] Protocole de Kyoto proposant un calendrier de réduction des émissions des gaz à effet de serre (1997),
http://www.industrie.gouv.fr/energie/developp/serre/textes/se_kyoto.htm
- [La75] A. A. Lapenas B, NNDC online data service, <http://www.nndc.bnl.gov>, (1975)
- [Li73] H. Liskien et A. Paulsen, *Nucl. Data Tables*, **11**, 569 (1973)
- [Li75] H. Liskien et A. Paulsen, *Atom. Data and Nucl. Data Tables*, **15**, 57 (1975)
- [Li78] H. Liskien, F. Arnotte, R. Widera, et A. Paulsen, *Nucl. Sci. and Eng.*, **67**, 334 (1978).

- [Lo70] G. Lodin et L. Nilsson, *Z. Physik*, **233**, 181 (1970).
- [Ma02] W. Mannhart, D. Schmidt, *NSTS*, **2(1)**, 218 (2002).
- [Ma63] B. Mainsbridge, T. W. Bonner, T.A. Rabson, *Nucl Phys*, **48**, 83 (1963).
- [Me49] Edward Melkonian, *Phys. Rev.*, **76**, 1744 (1949).
- [Me74] J. W. Meadows, *Nucl. Sci. and Eng.*, **54**, 217 (1974).
- [Me80] V. Metag, *Phys. Rep.*, **65**, 1 (1980).
- [Mi64] A. Michalowicz, "Cinématique des réactions nucléaires", *MONOGRAPHIES Dunod*, Dunod (1964).
- [Mo95] P. Möller et J. R. Nix, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, Vol. **59**, n°2, 185 (1995).
- [Mu73] S. F. Mughabghab et D. I. Garber, *BNL 325 3^{ème} édition*, Vol **2**, (1973)
- [No70] L.C Northcliffe et R. F. Schilling, *Nucl. Data Tables*, **A7**, 233 (1970).
- [Nu02] A. Nuttin, "Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique", *thèse de doctorat*, ISN 02-88, Université Joseph Fourier de Grenoble (2002).
- [Ob03] A. Oberstedt, *Communication privée*, Geel 2003
- [Pe02] M. Petit, "Mesure de la section efficace de fission du ^{233}Pa ", *thèse de doctorat*, Université de Bordeaux 1 (2002).
- [Pe03] M. Petit et al, *Nucl. Phys.*, **A735**, 345 (2004).
- [Po78] W.P. Poenitz, *Nucl. Data and Meas.*, **ANL/NDM-36** (1978)
- [Ry60] B. V. Rybakov et V. Sidorov, "Proportional and scintillation counter telescopes", *Fast-neutron spectroscopy, Sov. Jou. of Atom. Energy*, **suppl 6** (1958), p. 9, CONSULTANTS BUREAU, INC., New York (1960).
- [Ry91] A. Rytz, *Atom. Data and Nucl. Data Tables*, **47**, 205 (1991).

- [Sa00] M. Salvatores, "The back- end of the Nuclear Fuel Cycle 1- The physics of transmutation for radioactive waste minimisation", *conférence Nuclear Reaction Data and Nuclear Reactors: Physics, Design and safety*, Trieste, Italie 13 mars- 14 avril 2000.
- [Sc82] K. H. Schmidt, H. Delagrange, J. P. Dufour, N. Cârjan et A. Fleury, *Z. Phys.*, **A308**, 215 (1982).
- [Sh01] O. A. Shcherbakov, A. Yu. Donets, A. V. Evdokimov et al., Proc of IX Int. Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei (ISINN-9), Dubna, May 23-26, 2001. Dubna, JINR, E3-2001-192, 2001, p. 257; *ibid* p. 326.
- [Si60] J. E. Simmons et R. L. Henkel, *Phys. Rev.*, **120**, 198 (1960).
- [Si76] A. Sicre, *Thèse d' état Bordeaux* (1976).
- [Sm75] Donald L. Smith et James W. Meadows, "Fast- Neutron Excitation of Isomeric States in Indium", *A.N.L. technical notes*, p. 319 (1975).
- [Va73] R. Vandenbosch et J. R. Huizenga, *Nuclear fission*, **ACADEMIC PRESS New-York and London** (1973).
- [Yar61] B. Yaramis, *Phys. Rev.*, **124**, 836 (1961).
- [Zi77] J. F. Ziegler, "Hydrogen Stopping Powers and Ranges in All Elements", *dans The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, Vol 3, Pergamon Press, New York (1977).

Table des figures

Figure 1.1 : Radiotoxicité au cours du temps exprimée en sievert par tonne de métal lourd initial (Sv/tmli) des éléments composant un combustible usé d'oxyde d'uranium enrichi à 3,5 % en uranium 235, déchargé à un taux de combustion de 45 GW-j/t et refroidi cinq ans (figure extraite de Clefs CEA n°46).....	9
Figure 1.2 : Exemple de système hybride constitué de l'accélérateur Genepi (source intense de neutrons pulsés) couplé au réacteur expérimental Masurca. (Figure extraite de clefs CEA n°46).....	10
Figure 1.3 : Vue schématique du cycle du thorium.....	11
Figure 1.4 : Schémas simplifiés des cycles Th/U et U/Pu.....	12
Figure 1.5 : Sections efficaces neutroniques de capture et de fission des noyaux ^{232}Th , ^{233}Pa , et ^{233}U issues des différentes bibliothèques internationales en fonction de l'énergie des neutrons.	15
Figure 1.6 : Sections efficaces neutroniques de capture et de fission des noyaux ^{238}U , ^{239}Np et ^{239}Pu issues des différentes bibliothèques internationales en fonction de l'énergie des neutrons.	16
Figure 1.7 : Sections efficaces des réactions $^{232}\text{Th}(n, \gamma)$, $^{233}\text{Pa}(n, \gamma)$ et $^{233}\text{Pa}(n, f)$ en fonction de l'énergie des neutrons mesurées par le groupe ACEN du C.E.N de Bordeaux- Gradignan.	20
Figure 2.1 : Sections efficaces des réactions $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$, $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, $^1\text{H}(n, p)$ et $^{235}\text{U}(n, f)$ en fonction de l'énergie des neutrons.	22
Figure 2.2 : Comparaison des sections efficaces évaluées de fission de ^{235}U et de diffusion élastique (n, p) pour des neutrons de 0,5 à 6 MeV.....	25
Figure 2.3 :Schéma de principe de la méthode expérimentale.....	26
Figure 2.4 : Sections efficaces différentielles (à 0 degrés) dans le laboratoire des réactions $^7\text{Li}(p, n)$, $\text{T}(p, n)$, $\text{D}(d, n)$ et $\text{T}(d, n)$ en fonction de l'énergie des neutrons produits. Sur chaque courbe sont représentées quelques énergies (en MeV) du projectile de ces réactions.	28
Figure 2.5 : Domaine énergétique possible pour des neutrons mono énergétiques produits au Van de Graaff du C.E.N.B.G. Comparaison avec le spectre énergétique des neutrons prompt de fission.	29
Figure 2.6 : Schéma (vue de dessus) du dispositif expérimental	31
Figure 2.7 : Photographies du dispositif de détection.....	32
Figure 2.8 : Principe de la mesure de l'activité des cibles d'actinides utilisées.....	35
Figure 2.9 : Spectres en énergie des particules α détectées par la jonction à une distance d pour chaque cible utilisée.....	36
Figure 2.10 : Schéma et photographie représentant notre système de détection des fragments de fission.	39
Figure 2.11 : Evolution de l'anisotropie $\left(\frac{\bar{\sigma}_{np}(E_n, \bar{\theta}_n)}{\bar{\sigma}_{np}(E_n, 90)}\right)$ de la diffusion (n, p) exprimée dans le centre de masse en fonction $\bar{\theta}_n$ pour des neutrons d'énergie égale à 1, 3, 6 et 10 MeV.....	41

Figure 2.12 : principe de fonctionnement du détecteur de protons de recul.	42
Figure 2.13 : Spectres en énergie des protons de recul normalisés pour différentes valeurs de $D=d_j/r_2$ avec $r_1= 7,5$ mm et $r_2= 12,5$ mm et pour des neutrons incidents d'énergie $E_n = 2$ MeV.	44
Figure 2.14 : Spectres des protons de recul détectés par notre dispositif pour des neutrons de 1,96 MeV et pour deux radiateurs de même diamètre (15 mm) : un en mylar ($C_{10}H_8O_4$) de 14 μm d'épaisseur et un autre en polypropylène (C_3H_6) de 10 μm d'épaisseur. Ils sont comparés au spectre calculé à partir d'une simulation Monte Carlo du dispositif de mesure dans le cas où l'épaisseur du radiateur est négligée ($\Delta E_p^{\text{rad}}=0$). Ce spectre est normalisé sur le nombre de protons détectés dans le cas du polypropylène.	46
Figure 2.15 : principe de fonctionnement du microscope interférométrique.	49
Figure 2.16 : Reconstruction en trois dimensions de la surface { plaque+film de 4 μm } balayée par le microscope.	49
Figure 2.17 : histogramme de hauteur pour l'ensemble { plaque+film de 4 μm }.....	50
Figure 2.18 : Sections efficaces expérimentales des réactions (n, p) et (n, α) sur ^{28}Si [Ma63] et sur ^{29}Si ([Ko63], [Bi63] et [Ma02]) en fonction de l'énergie des neutrons.	52
Figure 2.19 : Sections efficaces expérimentales des réactions $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ [La75] et $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ [Bu63] en fonction de l'énergie des neutrons.	53
Figure 2.20 : Photographie du télescope de protons de recul.....	54
Figure 2.21 : Schéma global de l'électronique et de l'acquisition de notre dispositif expérimental.....	56
Figure 2.22 : Exemple d'un spectre de particules α de la source étalon détectées par la jonction silicium ΔE et droite d'étalonnage en énergie correspondante.	58
Figure 3.1 : Spectres en amplitude des fragments détectés par chaque cellule photovoltaïque issus de la fission des noyaux $^{233/235/238}\text{U}$ et ^{232}Th induite par des neutrons d'énergie moyenne de 5,15 MeV.	60
Figure 3.2 : $W(0)/W(90)$ en fonction de l'énergie neutron pour les noyaux d' $^{233, 235, 238}\text{U}$ et ^{232}Th . Pour les noyaux d'uranium, les incertitudes correspondent aux déviations standard provenant des ajustements de polynômes de Legendre. Pour le ^{232}Th , Elles sont associées aux erreurs expérimentales.....	62
figure 3.3 : facteur d'anisotropie en fonction de la distance séparant la cible et les cellules photovoltaïques dans le cas de la fission du ^{232}Th pour des neutrons de 1,6 MeV, 4 MeV et 7,1 MeV.	64
Figure 3.4 : Spectres en amplitudes des fragments détectés par la jonction silicium et par chaque montage photovoltaïque utilisé lors de nos mesures.	66
Figure 3.5 : Spectres en énergie des particules détectées par la jonction pour des neutrons de 1,2 MeV et de 1,96 MeV produits par la réaction $^3\text{T}(p,n)^3\text{He}$ lors d'une mesure (PP) et d'une mesure bruit de fond (Bf). Les spectres résultant de la soustraction du bruit de font γ sont également présentés.	69
Figure 3.6 : Spectres en énergie des particules détectées (S_{pp} , S_{Bf} et S_{ppR}) par une jonction silicium de 150 μm pour des neutrons de 4,2 MeV. L'épaisseur du film de PP choisie est de 30 μm	70

Figure 3.7 : Histogrammes à deux dimensions représentant la perte d'énergie ΔE en fonction de l'énergie résiduelle E des particules détectées par le télescope lors d'une mesure (PP) (A) et d'une mesure (Bf) (B) pour des neutrons d'énergie moyenne égale à 5.95 MeV et pour un film de polypropylène de 30 μm d'épaisseur.	72
Figure 3.8 : Matrices $E-\Delta E$ et spectres en énergie des particules détectées par le télescope ΔE (50 μm)- E (150 μm) pour des neutrons de 4,2 MeV lors d'une mesure (PP) et une mesure (Bf). L'épaisseur du radiateur est de 30 μm	74
Figure 3.9 : Spectres en énergie totale des protons de recul détectés par le télescope ΔE - E , pour des neutrons d'énergie moyenne allant de 4,2 à 6,5 MeV et une épaisseur de polypropylène de 50 μm	75
Figure 3.10 : Spectres en énergie des protons de recul détectés par la jonction silicium de 50 μm d'épaisseur obtenus expérimentalement et par simulation numérique de type Monte Carlo pour des neutrons de 1,6 MeV produits par la réaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$. L'épaisseur du film PP utilisé est de 10 μm	76
Figure 3.11 : Organigramme du programme de simulation du flux neutrons mesuré par la diffusion (n, p)	79
Figure 3.12 : Simulation de l'efficacité et de la résolution du télescope à protons de recul en fonction de la distance d entre le radiateur et la jonction silicium et pour plusieurs diamètres du radiateur et du collimateur de la jonction silicium.	81
Figure 3.13 : Spectres en énergie des protons de recul détectés pour trois géométries différentes. Les neutrons ont une énergie de 6,5 MeV et l'épaisseur du film de polypropylène est de 50 μm dans chaque cas. En traits pleins, est représenté le résultat de la simulation pour chaque configuration.	82
Figure 3.14 : Spectres en énergie des protons de recul détectés et simulés pour des neutrons de 1,2 ; 2,21 ; 4,24 et 6,2 MeV. Les deux premiers spectres sont obtenus avec une seule jonction silicium et les deux derniers avec un télescope ΔE - E . Les épaisseurs des films de polypropylène utilisées ainsi que les caractéristiques (efficacité et résolution) du dispositif de détection sont données dans le tableau (3.3).	85
Figure 3.15 : Distribution de tritium dans la cible en fonction de sa profondeur : épaisseur Ti = 200 $\mu\text{m}/\text{cm}^2$; épaisseur Al = 200 $\mu\text{m}/\text{cm}^2$ [Fo70].	86
Figure 3.16 : Spectres en énergie des protons de recul détectés et simulés pour des neutrons de 5,4 MeV (Energie des deutons= 2,25 MeV) et pour un radiateur de polypropylène de 30 (a) et 50 (b) μm d'épaisseur.	87
Figure 3.17 : distribution angulaire dans le système du laboratoire des neutrons produits par la réaction $\text{D}(d, n){}^3\text{He}$ en fonction de leur angle d'émission compris entre 0 et 30° à plusieurs énergies de deuton. Ces données, publiées par H. Liskien et A. Paulsen [Lis73] sont des ajustements sur les données expérimentales les plus fiables.	89
Figure 3.18 : Section efficace de la réaction ${}^{115}\text{In}(n, n'){}^{115\text{m}}\text{In}$ en fonction de l'énergie des neutrons incidents extraite de données expérimentales et de la base américaine ENDF/B- VI.	91

Figure 3.19 : Comparaison du flux de neutrons arrivant sur la cible d' ^{233}U et le film de polypropylène mesuré par diffusion (n, p) et celui déterminé après l'activation d'échantillons d'indium pour des neutrons de 5 à 6,5 MeV. Cette méthode utilise comme standard de référence, la diffusion inélastique $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{I}$	92
Figure 4.1 : Spectres en énergie des protons de recul détectés par le télescope et simulés pour des neutrons de 4,2 MeV et un film de polypropylène de 50 μm . Application de la méthode de découpage permettant de définir deux tranches. La première tranche correspond au nombre de protons ($N_{p_0}^{\text{det}}$) contenus dans le spectre simulé. Il est associé au flux de neutrons principal ($\Phi_n^{(0)}$). La seconde contient le nombre de protons ($N_{p_1}^{\text{det}}$) associé au flux de neutrons ($\Phi_n^{(1)}$) de plus basse énergie dû à l'implantation des deutons dans la cible TiD. Ce nombre correspond ici au nombre de coups contenus dans le spectre expérimental après soustraction du spectre simulé entre 2,2 MeV et 3,6 MeV.....	94
Figure 4.2 : Section efficace de fission de l' ^{238}U mesurée au C.E.N.B.G. en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Les résultats sont comparés aux données des bases ENDF/B-VI, JENDL-3.3 et aux mesures de J.W Behrens [Beh77] et de O.A. Shcherbakov [Sh01].	97
Figure 4.3 : section efficace de fission du ^{232}Th pour des neutrons de 1 à 10 MeV mesurée au CENBG. Ces mesures sont comparées avec les données des bases ENDF/B-VI, JENDL-3.3 et avec les données expérimentales de O.A. Shcherbakov [Sh01] et de B.I. Fursov [Fu91] qui ont été mesurées par rapport à la section efficace de fission de l' ^{235}U	99
Figure 4.4 :Section efficace de fission de l' ^{233}U mesurée en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Les résultats sont comparés avec les quatre principales bases de données.....	101
Figure 4.5 : Section efficace de la réaction $^{16}\text{O}(d, n_0)^{17}\text{F}$ pour des deutons d'énergie comprise entre 2 et 4 MeV extraite des données expérimentales de W. Gruhle [Gru72].	102
Figure 4.6 : Distributions angulaires dans le centre de masse des neutrons produits par les réactions $^{16}\text{O}(d, n_0)^{17}\text{F}$ et $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ associées à un angle d'émission dans le laboratoire $\theta_{\text{lab}}=0^\circ$ et 30°	103
Figure 4.7 : Résultats des mesures de la section efficace de fission de l' ^{233}U en fonction de l'énergie des neutrons. A partir de 6 MeV, les mesures sont corrigées de la contribution du flux de neutrons parasites de la réaction $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ ($Q=-2,119$ MeV).	107
Figure 5.1 : Section efficace de fission du noyau ^{233}U extraite de la bibliothèque de données américaine ENDF/B-VI.....	113
Figure 5.2 : Schéma des différentes voies de désexcitation d'un état $\lambda_0 (U_0, J_0, \pi_0)$ du noyau composé ^{234}U intervenant dans notre modèle. S_1 et S_2 représentent les énergies de séparation d'un neutron dans ^{234}U et ^{233}U	116

Figure 5.3 : Contribution des différentes valeurs de moment angulaire total J dans la section efficace de formation du noyau composé ^{234}U pour des énergies de neutrons incidents comprises entre 0,01 et 10 MeV. Le moment angulaire et la parité de l'état fondamental de ^{233}U sont $5/2^+$	119
Figure 5.4 : Représentation schématique des différents paramètres permettant de définir la hauteur des barrières de fission.	129
Figure 5.6 : Rapports des densités de niveaux expérimentales et calculées ($E^* \approx S_n$) pour différents actinides.	132
Figure 5.7 : Sections efficaces des réactions (n, f) , (n, γ) , $(n, n')_{\text{NC}}$ et $(n, 2n)$ issues de notre analyse de type Hauser- Feshbach pour des neutrons d'énergie comprise entre 0,01 et 10 MeV.	135
Figure 5.8 : Comparaison des sections efficaces des réactions (n, n') , (n, γ) et $(n, 2n)$ issues de notre analyse et celles extraites de la base de données JENDL-3.3.....	136
Figure A.1 : Mesure expérimentale de l'activité de la source étalon α	145
Figure A.2 : taux de particules α détectées en fonction de l'angle solide Ω simulé	146

Liste des tableaux

Tableau 1.1 : Inventaire des principaux éléments à vie longue présents dans un combustible usé à l'oxyde d'uranium (UOX) déchargé à 33 GW.j/t.	8
Tableau 1.2 : Précisions des sections efficaces des réactions (n, f) et (n, γ) extraites des recommandations AIEA [As99] des différents isotopes intervenant dans le cycle du thorium.	18
Tableau 2.1 : Liste des réactions de référence les plus souvent utilisées pour la détection de neutrons. Les incertitudes des section efficace associées à ces réactions sont données par la base américaine ENDF/B-VI.....	22
Tableau 2.2 : Caractéristiques du faisceau (Intensité sur la cible) et des sources de neutrons choisis pour nos campagnes de mesures.....	30
(a) : Energie seuil pour la production de neutrons strictement mono-énergétiques.	30
(b) : Energie limite du faisceau fourni par l'accélérateur.....	30
Tableau 2.3 : Caractéristiques des cibles d'actinides utilisées.....	34
Tableau 2.4 : Caractéristiques de la radioactivité α des actinides étudiés pour nos mesures : L'énergie des α a été déterminée par A. Rytz [Ry91].....	35
(a) : $\bar{E}_\alpha = \frac{\sum_i I_{\alpha_i} \cdot E_{\alpha_i}}{\sum_i I_{\alpha_i}}$	35
(b) : valeur moyenne des rapports d'embranchement α reportés dans la littérature. ...	35
Tableau 2.5 : Caractérisation des épaisseurs des cibles utilisées.	37
Tableau 2.6 : Perte d'énergie ΔE_p pour des protons diffusés émis à 0° en fonction de l'épaisseur du film de polypropylène traversée (χ) et de leur énergie initiale égale à celle des neutrons incidents ($E_p = E_n \times \cos^2(\theta_p - 0^\circ)$).....	48
Tableau 2.7 : Caractérisation de l'épaisseur des films de polypropylène utilisés.	50
(a) : ces épaisseurs sont obtenues par empilements successifs de feuilles de 10 μm	50
(b) : l'incertitude relative associée à la micro pesée est de 3 %.	50
Tableau 2.8 : Chaleurs et sections efficaces pour une énergie donnée des réactions (n, α), (n, p), (n, d) avec les principaux matériaux composant le dispositif expérimental.	51
Tableau 2.9 : Caractéristiques de la source étalon α :	57
a : énergie des α donnée par A. Rytz [Ry91].	57
b : rapport d'embranchement moyenné sur les valeurs répertoriées dans la littérature (Table of isotopes vol II, R.B. Firestone).	57
c : $\bar{E}_\alpha = \frac{\sum_i I_{\alpha_i} \cdot E_{\alpha_i}}{\sum_i I_{\alpha_i}}$	57
d : présence de ^{240}Pu et ^{238}Pu en faible quantité, non quantifiable.	57
Tableau 3.1 : Facteur d'anisotropie fa à une énergie de neutron de 6,5 MeV pour les quatre noyaux ($^{233,235,238}\text{U}$ et ^{232}Th) étudiés.	65
Tableau 3.2 : données expérimentales des mesures de l'activité de la cible ^{252}Cf	67

Tableau 3.3 : Caractéristiques (résolution et efficacité) du télescope à protons de recul en fonction de l'énergie des neutrons. (a) : E_{ptot} est l'énergie la plus probable des protons de recul détectés.....	84
Tableau 4.1 : Liste des différents paramètres intervenant dans la mesure de la section efficace de fission de ^{238}U induite par des neutrons de 4,24 MeV.	96
(a) : efficacité de détection des neutrons $\varepsilon_n^{(i)} = \frac{N_H \times \sigma_{np}^{(i)} \times \varepsilon_p}{S_{\text{rad}}}$. Le terme S_{rad} représente la surface du radiateur.	96
Tableau 4.2 : Energies des neutrons produits à 0° par les réactions $\text{D}(d, n)^3\text{He}$, $^{16}\text{O}(d, n_0)^{17}\text{F}$ et $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ pour une énergie de deuton comprise entre 2,5 et 3,25 MeV.....	103
Tableau 4.3 : Flux de neutrons arrivant sur la cible ^{233}U issus des voies $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ et $^{16}\text{O}(d, n_1)^{17}\text{F}^*$ pour des deutons de 2,75 , 3 et 3,29 MeV.	105
Tableau 4.4 : Liste des différentes erreurs associées à nos mesures.....	109
Tableau 4.5 : résultats des mesures concernant la section efficace de fission du ^{232}Th induite par des neutrons d'énergie comprise entre 1,55 et 6,5 MeV.....	110
Tableau 4.6 : Résultats des mesures concernant la section efficace de fission de ^{233}U induite par des neutrons d'énergie comprise entre 0,95 et 6,5 MeV.	111
Tableau 5.1: Valeurs des énergies d'appariement et des effets de couche (en MeV) extraites de l'analyse.	134
Tableau 5.2 : Caractéristiques des voies de fission. Les énergies sont données par rapport aux barrières de fission correspondantes (têtes des bandes de rotation).	134
Tableau 5.3 :Barrières de fission des noyaux ^{233}U et ^{234}U	134
Tableau 5.4 : Sections efficaces totale (σ_T), élastique (σ_{el}), de fission (σ_f), inélastique ($\sigma_{(n, n)}$), de capture ($\sigma_{(n, \gamma)}$) et de réaction (σ_R) pour une énergie de neutron de 0,1 MeV extraites des bases de données JENDL-3.3, ENDF/B-VI et de notre analyse.	137
Tableau A.1 : Résultats des mesures expérimentales de l'activité de la source étalon α	147

Résumé :

Le cycle du thorium ($^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$) présente des caractéristiques moins polluantes que celui utilisé actuellement dans les combustibles des réacteurs nucléaires (U/Pu). Depuis une dizaine d'années, il fait l'objet d'un vaste programme de mesures dont l'objectif est d'atteindre une précision des données neutroniques des noyaux clés du cycle (^{232}Th , ^{233}Pa et ^{233}U) comparable à celles du cycle U/Pu. Ce travail s'inscrit dans ce cadre d'études et consiste à mesurer les sections efficaces de fission induites par neutrons rapides (de 1 à 7 MeV) des noyaux ^{232}Th et ^{233}U avec une incertitude inférieure à 5 %. Ces mesures impliquent de déterminer le taux de fission émis par la cible, le nombre d'atomes composant la cible et le flux de neutrons arrivant sur celle-ci. Cette dernière quantité a été obtenue en utilisant comme réaction de référence, la diffusion élastique (n, p) dont la section efficace est la mieux connue sur un large domaine en énergie de neutron ($\sim 0,5\%$ de 1 eV à 50 MeV) comparée à celle de la réaction $^{235}\text{U}(n, f)$. Cette technique a été appliquée pour la première fois à ces deux noyaux.

Un modèle statistique de type Hauser- Feshbach a été également développé dans ce travail. Il a permis de décrire les différentes voies de désexcitation du noyau composé ^{234}U pour des énergies de neutron de 0,01 à 10 MeV. Les paramètres de ce modèle ont été ajustés afin de reproduire la section efficace de fission mesurée de ^{233}U . A partir de ces paramètres, les sections efficaces des réactions suivantes ont pu être extraites : diffusion inélastique $^{233}\text{U}(n, n')$, capture radiative $^{233}\text{U}(n, \gamma)$ et $^{233}\text{U}(n, 2n)$. Ces sections efficaces évaluées, dont les mesures sont encore difficilement réalisables, permettent de combler le manque de données expérimentales concernant ^{233}U , le noyau fissile de la filière thorium.

Mots- Clés : Cycle du thorium, Combustible, Réacteurs, Nucléaire, Mesures, Sections efficaces, Fission, Neutron, Diffusion élastique (n, p), Modèle statistique, Hauser- Feshbach, diffusion inélastique, capture radiative, $^{233}\text{U}(n, 2n)$, ^{232}Th , ^{233}U , ^{234}U .

Abstract :

The thorium- ^{233}U fuel cycle might provided safer and cleaner nuclear energy than the present Uranium/ Pu fuelled reactors. Over the last 10 years, a vast campaign of measurements has been initiated to bring the precision of neutron data for the key nuclei (^{232}Th , ^{233}Pa and ^{233}U) at the level of those of the U- Pu cycle. This is the framework of these measurements, the energy dependent neutron induced fission cross section of ^{232}Th and ^{233}U has been measured from 1 to 7 MeV with a target accuracy lesser than 5 %. These measurements imply the accurate determination of the fission rate, the number of the target nuclei as well as the incident neutron flux impinging on the target, the latter has been obtained using the elastic scattering (n, p). The cross section of which is the very well known in a large neutron energy domain ($\sim 0,5\%$ from 1 eV to 50 MeV) compared to the $^{235}\text{U}(n, f)$ reaction. This technique has been applied for the first time to the $^{232}\text{Th}(n, f)$ and $^{233}\text{U}(n, f)$ cases.

A Hauser- Feshbach statistical model has been developed. It consists of describing the different decay channels of the compound nucleus ^{234}U from 0,01 to 10 MeV neutron energy. The parameters of this model were adjusted in order to reproduce the measured fission cross section of ^{233}U . From these parameters, the cross sections from the following reactions could be extracted: inelastic scattering $^{233}\text{U}(n, n')$, radiative capture $^{233}\text{U}(n, \gamma)$ and $^{233}\text{U}(n, 2n)$. These cross sections are still difficult to measure by direct neutron reactions. The calculated values allow to fill the lack of experimental data for the major fissile nucleus of the thorium cycle.

Keywords : Thorium cycle, Measurements, Fuel, Reactors, Nuclear, Cross sections, Fission, Neutron, Elastic scattering (n, p), Statistical model, Hauser- Feshbach, Inelastic scattering, Radiative capture, $^{233}\text{U}(n, 2n)$, ^{232}Th , ^{233}U , ^{234}U .