



**HAL**  
open science

# Optimisation de combinaisons de faisceau et de cible pour les systèmes de réacteurs hybrides et pour la production de faisceaux radioactifs par fission

D. Ridikas

► **To cite this version:**

D. Ridikas. Optimisation de combinaisons de faisceau et de cible pour les systèmes de réacteurs hybrides et pour la production de faisceaux radioactifs par fission. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Caen, 1999. Français. NNT: . tel-00719971

**HAL Id: tel-00719971**

**<https://theses.hal.science/tel-00719971>**

Submitted on 23 Jul 2012

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

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

# THESE

présentée

par

**Danas RIDIKAS**

en vue de l'obtention du

**le GRADE de DOCTEUR de L'UNIVERSITE de CAEN**

**Spécialité: Constituants Élémentaires**

sujet:

**Optimisation de combinaisons de faisceau et de cible pour  
les systèmes de réacteurs hybrides et pour la production de  
faisceaux radioactifs par fission**

**soutenue le 28 octobre 1999 devant le jury composé de:**

*Directeur de thèse:* Monsieur W. MITTIG

*Président :* Monsieur D. GUERREAU

*Rapporteurs :* Monsieur B. JONSON  
Monsieur H. NIFENECKER

*Examineurs :* Monsieur M. SALVATORES  
Monsieur M. SPIRO  
Monsieur B. TAMAIN  
Monsieur A.C.C. VILLARI

*Invité :* Monsieur J.S. VAAGEN

**à Seung In, Lukas et ma famille**



## Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier la direction du GANIL, D. Guerreau et J.P. Fouan pour m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire et offert la chance de mener à bien mon travail de thèse.

Je remercie particulièrement les personnes qui ont eu la gentillesse d'accepter de faire partie de mon jury de thèse : le président, Monsieur D. Guerreau, les rapporteurs, Messieurs B. Jonson et H. Nifenecker, ainsi que Messieurs M. Salvatores, M. Spiro, B. Tamain et A.C.C. Villari.

Je voudrais exprimer tout particulièrement ma gratitude à Wolfgang Mittig, mon responsable de thèse, pour m'avoir accompagné et encadré lors de ce travail. J'ai en particulier apprécié l'étendue de ses connaissances, son sens de la communication ainsi que son ouverture d'esprit et son enthousiasme : toutes ces qualités qui font de lui un grand chercheur. J'ai également apprécié ses nombreuses qualités humaines, en particulier sa bonne humeur et son optimisme qui ont été un soutien constant lors de ces trois dernières années et qui font de lui bien plus qu'un collaborateur.

Je remercie les différentes personnes avec qui j'ai eu la chance de travailler : Patricia Roussel-Chomaz, Marie-Geneviève Saint Laurent, Siegie Förtsch, Kobus Lawrie, Jerry Nolen, Hervé Savajols, Antonio C.C. Villari. Je remercie également Jeff Tostevin avec qui j'ai collaboré tout au long de cette thèse. Je tiens également à exprimer ma reconnaissance à Jan S. Vaagen pour ses conseils et sa collaboration.

Je remercie le groupe SPEG du GANIL, Wolfi, Patricia, Hervé, Anne et Frédéric pour m'avoir offert la chance de travailler avec eux et de participer aux expériences de physique nucléaire.

Je suis très reconnaissant à tout ceux qui m'ont aidé dans la correction de ce manuscrit : Wolfi, Odile, Denis, Bertrand, Anne, Anne-Sophie, Jean-Marc, Nathalie et Patricia. Je voudrais leur exprimer toute ma gratitude et mon estime pour ce travail de titan.

Je voudrais remercier Odile, ma "directrice" de thèse de version française, pour sa patience, sa gentillesse et son humour, à laquelle s'ajoute une efficacité et une motivation exceptionnelles.

Enfin, je dis un grand merci à toutes les personnes qui m'ont accompagnées tout au long de ces dernières années et qui, par leur aide, leur soutien et leur amitié, ont fait de ces années une expérience inoubliable. Merci à Odile et Wolfi, Delphine et Denis, Alexandra et Bertrand, Patricia et Philippe, Nathalie et Hervé, Cécile et Laurent, Mylène et Olivier L., Lynda et Jean-Claude.

Je voudrais également remercier Anne, Fred., Jean-Michel, Anne-Sophie, Karim, Maria-José, Alain, Yannick, François, Gilles, Jean-Marc, Olivier T., Nadya, Oleg, Piet, Marek P., Abdou, David, Gérard, Jean-Pierre, Marek L., Nigel, ainsi que Armelle, Christine, Monique, Solange, Michel et Monsieur Kahwati.

Je tiens à remercier plus particulièrement Denis. Tout d'abord pour son accueil chaleureux au GANIL mais aussi pour ses encouragements et son aide tout au long de ma thèse, sans oublier ses enseignements sur la philosophie de la vie.

J'exprime ma gratitude à Hervé pour son humour et son soutien pendant la thèse.

Je voudrais exprimer mes amitiés à Bertrand pour tous les moments de détente au café, son humour et sa patience face à mes questions.

Enfin, je remercie plus spécialement ma famille qui m'a toujours aidé et encouragé. Bien sûr, je garde une dernière pensée pour Seung In dont le courage m'a servi constamment d'exemple et qui, par ses conseils, sa patience et son soutien quotidien, m'a accompagné et encouragé tout au long de ces dernières années.

Caen, le 28 Octobre 1999



Danas RIDIKAS

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
---------------------	----------

---

---

## Partie I Théorique

---

---

<b>Chapitre 1</b>
-------------------

<b>Codes de simulation</b>
----------------------------

1.1	Introduction . . . . .	11
1.2	Le Système de Code LAHET (LCS) . . . . .	14
1.3	Le Système de Code MCNP . . . . .	17
1.3.1	Transport et interactions de neutrons . . . . .	17
1.3.2	Problème de criticité . . . . .	19
1.4	Le Système de Code CINDER . . . . .	20
1.5	Conclusion . . . . .	22

<b>Chapitre 2</b>
-------------------

<b>Calculs de benchmark</b>
-----------------------------

2.1	Introduction . . . . .	25
2.2	Modèle de cascade intranucléaire . . . . .	27
2.2.1	Production de nucléons dans le code LCS . . . . .	27
2.2.2	Dissociation coulombienne élastique du deutéron . . . . .	29

2.2.3	Production de nucléons induites par deutérons aux angles vers l'avant . . . . .	33
2.3	Production des isotopes . . . . .	38
2.4	Conclusion . . . . .	43

<b>Chapitre 3</b>
-------------------

<b>Production de neutrons</b>
-------------------------------

3.1	Introduction . . . . .	47
3.2	Taux total de neutrons . . . . .	48
3.3	Distributions angulaires de neutrons . . . . .	52
3.4	Distributions en énergie de neutrons . . . . .	55
3.5	Conclusion . . . . .	55

<b>Chapitre 4</b>
-------------------

<b>Amplificateur d'énergie piloté par accélérateur</b>
--

4.1	Introduction . . . . .	57
4.2	Génération d'énergie . . . . .	60
4.3	Radioactivité dans une cible de spallation . . . . .	66
4.4	Conclusion . . . . .	72

<b>Chapitre 5</b>
-------------------

<b>Production de Faisceaux d'Ions Radioatifs (RIBs)</b>
---

5.1	Introduction . . . . .	75
5.2	Le projet SPIRAL Phase-II . . . . .	78
5.3	Radioactivité dans les cibles de production . . . . .	88
5.4	Chauffage et refroidissement de la cible . . . . .	91
5.5	Conclusion . . . . .	95

---

---

## Partie II Expérimentale

---

---

---

<b>Chapitre 6</b> <b>Expérience de SATURNE</b>
---

6.1 Introduction . . . . .	99
6.2 Dispositif expérimental . . . . .	100
6.3 La mesure et l'analyse de données . . . . .	102
6.4 Conclusion . . . . .	104

<b>Chapitre 7</b> <b>Expérience de NAC</b>
---

7.1 Introduction . . . . .	107
7.2 Dispositif expérimental . . . . .	108
7.3 Les mesures et analyse de données . . . . .	111
7.4 Résultats et discussion . . . . .	115
7.4.1 Spectres en énergie . . . . .	115
7.4.2 Distributions angulaires . . . . .	117
7.4.3 Discussion . . . . .	119
7.5 Comparaison avec les calculs du code LCS . . . . .	123
7.6 Conclusion . . . . .	127

<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>133</b>
------------------------------------	------------

<b>Annexe A</b> <b>Spectres en énergie des protons</b>
---



# Introduction

## Motivation

Selon l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique, les centrales nucléaires ont produit 17% de l'électricité du mondiale en 1997, et elles sont censées continuer ainsi dans l'avenir proche. Malgré les avantages de l'énergie nucléaire, son utilisation à long terme pose un certain nombre de problèmes sérieux : 1) l'incidence des déchets nucléaires de haute activité et à vie longue sur l'environnement, 2) les risques d'une excursion accidentelle de la criticité du réacteur (le syndrome de Tchernobyl), 3) la possibilité de transfert vers des applications militaires, 4) la nécessité d'une infrastructure très complexe, 5) l'utilisation pas très efficace du combustible nucléaire dans les réacteurs actuels. Le développement de moyens plus sûrs, moins polluants et plus efficaces afin de produire l'énergie à partir de la fission nucléaire, est ainsi de grande importance.

En bref, beaucoup de problèmes difficiles de l'énergie nucléaire sont liés à l'économie de neutrons dans une réaction de fission en chaîne. L'excès de neutrons – si disponible – peut être utilisé pour la conversion de matière non-fissile dans le combustible nucléaire ainsi que pour la transmutation d'isotopes radioactifs de vie longue dans des isotopes de courte durée de vie ou même non radioactifs. Il permettrait également au réacteur de fonctionner dans un régime sous-critique. Le concept de l'utilisation d'accélérateurs pour produire des neutrons est bien connu et souvent utilisé. Les protons ou les deutérons accélérés à l'énergie de 1 GeV peuvent produire quelques dizaines de neutrons dans une réaction de spallation en interagissant avec une cible lourde (par exemple, Pb). Mais seules les avances technologiques récentes des accélérateurs rendent envisageables et intéressantes les constructions des systèmes hybrides de réacteur sous-critique appelés Systèmes Pilotés par Accélérateur (Accelerator Driven Systems – ADS).

L'intérêt pour l'ADS a récemment redoublé dans les pays européens aussi bien que dans le monde entier (les États-Unis, le Japon, la Corée du Sud). Même la Suède et la Suisse, qui ont décidé et légiféré de ne pas développer l'énergie nucléaire conventionnelle pour l'instant, conduisent une recherche active dans ce domaine.

Les chercheurs en République Tchèque, en Belgique, en Italie, en Allemagne, en Espagne, aussi bien qu'en France [Sal99], étudient également les systèmes hybrides. En Russie, dans le Centre International de Science et Technologie, plus de 500 chercheurs travaillent dans le domaine de l'ADS. Les scientifiques nucléaires reconnaissent de plus en plus que les accélérateurs ouvrent de nouvelles possibili-

tés pour l'option "énergie nucléaire" en général, et pour la destruction de déchets nucléaires et la gestion du plutonium militaire en particulier.

L'autre intérêt d'un excès de neutrons est lié à la possibilité de production des faisceaux d'ions radioactifs (Radioactive Ion Beams – RIBs) par fission induite par neutrons. En ce qui concerne la production de RIBs, les noyaux les plus exotiques se trouvent loin des noyaux stables dans la charte nucléaire. Ceci implique un inconvénient fondamental : les sections efficaces de production de ces noyaux exotiques sont basses. Un groupe de recherche (OECD) a récemment émis un document [OEC99] justifié par des arguments scientifiques détaillés, concernant les futurs équipements de faisceaux radioactifs qui ont des intensités d'ordres de grandeur plus élevées. (Ici nous limitons notre discussion à la communauté de physique nucléaire européenne). Par conséquent, nous devons nous demander quelles sont les meilleures approches techniques pour produire ces RIBs intenses. En sus des équipements courants de RIBs aux ARENAS (Belgique), GANIL (France) et GSI (Allemagne), deux équipements presque terminés et entièrement financés en utilisant les faisceaux d'ions lourds – SPIRAL (France) et EXCYT (Italie), et deux équipements en construction ou à l'état de projet en utilisant les faisceaux relativistes de protons – REX-ISOLDE (EU) et SIRIUS (R-U) – devraient être mentionnés [OEC99]. Tous ces équipements sont basés sur des réactions induites par particules chargées, où une limitation importante est définie par le dépôt de chaleur maximal permis dans l'ensemble cible-source.

Contrairement aux particules chargées, les neutrons perdent leur énergie presque uniquement par des réactions "utiles". En outre, dans l'intervalle de masses  $A=80-150$ , la fission des actinides permet de produire les faisceaux les plus intenses. Ces faits étaient à l'origine de deux projets utilisant les neutrons d'un réacteur thermique – PIAFE dans le réacteur à haut flux ILL à Grenoble (maintenant arrêté) et du futur FRM-II de Munich (en construction) [Rea97, OEC99]. Les avantages de la fission induite par neutron sur  $^{235}\text{U}$  ont été clairement démontrés (voir [Rea97] et Refs. incluses). Cependant, on devrait noter que la limite du nombre de fissions par unité de temps dans le cas d'un réacteur conventionnel est fixée non pas par le nombre de neutrons disponibles mais par le problème pratique de l'extraction de chaleur et de la sûreté de la source. En raison de sa proximité du coeur du réacteur, la manipulation d'une source est beaucoup plus difficile comparée à un scénario basé sur l'utilisation d'accélérateur. Cette position est protégée mais difficile d'accès. L'ingénierie de la manipulation de source est plutôt sophistiquée et doit être confiée à un personnel très spécialisé des réacteurs et de la radioprotection.

On a admis jusqu'à récemment que les réacteurs thermiques devraient être les meilleures sources de neutrons pour les faisceaux de fragments de fission. La cible, petite et compacte, de production de RIBs, faite d' $^{235}\text{U}$ , est chauffée par l'énergie libérée par fission uniquement. Ceci est contraire à tous les autres mécanismes de production utilisant les particules chargées, dans lesquels le faisceau primaire fournit la majeure partie de la chaleur à la cible et limite, encore actuellement, l'intensité maximum de faisceau. Donc il n'existe aucun moyen pour que les faisceaux de particules chargés plus élevés puissent être utilisés pour une conversion directe dans des fissions.

---

Le groupe d'Argonne [Nol93] a proposé une voie alternative afin de produire les RIBs dans la même région de masse ( $A=80-150$ ). Dans ce nouveau scénario, les neutrons proviennent des interactions d'un faisceau de deutérons de grande énergie et à haute intensité avec une cible de conversion, les neutrons énergétiques, émis vers l'avant, interagissant avec une cible d' $^{238}\text{U}$ . De cette façon la dissipation thermique du faisceau primaire est retirée de la cible de production. En outre, la richesse d' $^{238}\text{U}$  en neutrons par rapport à  $^{235}\text{U}$  rend cette méthode bien plus avantageuse pour la production des isotopes riches en neutrons, comparée au scénario basé sur les neutrons thermiques. De ce fait les futurs équipements de spallation de puissance élevée, semblables à ceux considérés pour la transmutation des déchets nucléaires, pourraient être un lieu idéal pour les usines avancées de RIBs de haute intensité. Dans ce cas, une source de neutrons pilotée par accélérateur élimine l'interface complexe et problématique de réacteur-source discuté ci-dessus. Elle sépare également la chaleur fournie par le faisceau primaire de particules chargées de la cible de production de RIBs.

Nous notons que les applications d'ADS mentionnées ici, à savoir i) les réacteurs hybrides pilotés par accélérateur pour la transmutation des déchets nucléaires et pour la production d'énergie, et ii) les équipements de RIBs pilotés par accélérateur et basés sur des fissions induites par neutrons, sont étroitement liées par un certain nombre de tâches et/ou de problèmes à examiner et/ou à résoudre : 1) le développement et l'utilisation des accélérateurs de haute puissance ; 2) le choix du faisceau incident et de l'énergie ; 3) le développement d'une source efficace en neutrons (la cible de spallation), y compris les problématiques de refroidissement ; 4) les fissions induites par neutrons et les produits de fission ; 5) les questions de radioprotection.

Ces principaux objectifs ainsi que d'autres, annexes, sont traités dans ce travail de thèse intitulé "Optimisation de combinaisons de faisceau et de cible pour les systèmes de réacteurs hybrides et pour la production de faisceaux radioactifs par fission". Le paragraphe suivant trace un bref historique de l'ADS, tandis que la fin de cette introduction présente le plan de ce travail de doctorat.

## Historique de l'ADS

Dans les années 40, il était admis d'après les travaux sur les accélérateurs, que le bombardement d'une cible en uranium par des protons ou deutérons de haute énergie produirait un grand nombre de neutrons [Mag99]. Ces neutrons ont pu être employés pour produire la matière fissile par des réactions nucléaires. En 1941, Glenn Seaborg a produit artificiellement le premier plutonium en utilisant un accélérateur [Mag99].

Pendant la période 1949-54, le programme de MTA (Materials Testing Accelerator) au laboratoire de Lawrence Livermore (à ce moment-là laboratoire de recherches de Livermore) a étudié en détail l'utilisation des accélérateurs permettant de produire la matière fissile [AEC53, Sta54]. Presque simultanément au Canada, Lewis se rendit compte de la valeur de ces accélérateurs pour la production d'énergie et effectua des mesures de neutrons de spallation avec le cyclotron de McGill [Lew52].

L'objectif du programme de MTA était de prouver que des quantités significatives de matières fissiles pouvaient être produites de manière sûre et économique par rapport aux réacteurs de production à Hanford et à Savanna River [Sta54]. Vers la fin de 1952, un concept d'usine électronucléaire de MTA connu sous le nom d'A-12 fut développé. L'accélérateur fut conçu pour produire un courant 500mA de deutérons à 350MeV. Ces deutérons seraient convertis en neutrons, puis en  $^{239}\text{Pu}$  par des réactions de neutrons dans la cible secondaire d'uranium. Une production de 564kg de plutonium par an à un coût de \$230 par gramme a été estimée pour le concept d'A-12 [Sta54]. En août 1952, la Commission d'Énergie Atomique a annulé le programme de la construction A-12 et limita le travail à la construction d'un accélérateur moins puissant d'essai de deutérons de 35MeV. Jusqu'en 1954, les améliorations considérables de l'accélérateur et, en particulier, de la physique de cible ont eu comme résultat un prototype amélioré connu sous le nom de C-50. L'accélérateur a été conçu pour produire un courant de 320mA de deutérons d'énergie de 500MeV [Sta54]. Bien que la production annuelle de plutonium n'ait pas changé, le coût estimatif par gramme a été pratiquement divisé par deux à \$124.

Conjointement au développement de l'accélérateur, celui d'une cible et des assemblages environnants alternatifs pour la production de  $^{239}\text{Pu}$  et d' $^{233}\text{U}$  ont été étudiés et évalués. Ces solutions ont inclus des systèmes sous-critiques ( $k \leq 0.9$ ) thermalisés, capables de surgénérer le plutonium et de produire plusieurs fois la puissance nécessaire pour faire fonctionner les systèmes d'accélérateur. Ils ont été appelés les "accelerator driven sub-critical power breeders". Le projet terminé en 1954, les documents furent déclassifiés en 1957 [Sta54]. Apparemment, le MTA n'a pas été retenu pour une réalisation pratique, pour des raisons principalement économiques et non techniques [Sta54]. La découverte de gisements d'uranium capables de satisfaire aux besoins du programme nucléaire des USA était la cause principale dans ce contexte.

Un accélérateur de production de matériaux - le réacteur électronucléaire - a été breveté en 1960 par Lawrence et al. [Law60] pour "des quantités de matériaux commercialement compétitives produits artificiellement par des réactions nucléaires". Les cibles considérées étaient l'uranium et le thorium, et les matériaux artificiellement produits étaient  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{233}\text{U}$  respectivement.

A Chalk River au Canada, le concept du générateur intense de neutron (ING) était [Bar66] considéré comme un projet "de grande importance potentielle dans les perspectives d'énergie nucléaire à long terme, où l'ING rendrait possible la surgénération de la matière fissile et, avec le développement des accélérateurs et de la technologie associée, pourrait ouvrir une voie totalement nouvelle d'accès à la puissance économique".

Les études postérieures (1975-88) sur le programme de la conversion de Fertile-to-Fissile (FERFICON) - issus d'un effort de collaboration entre divers laboratoires - ont étudié la dépendance en énergie, jusqu'à 800MeV de protons, de l'efficacité de conversion fertile-à-fissile en utilisant des matériaux de cible et des géométries normalisées [ABA77, Bar78, Bur79, Fra81, Gil88]. En 1981, K. Furukawa a fait breveter le concept du réacteur autorégénérateur de thorium de sel fondu fonctionnant à l'aide d'un accélérateur [Mag99].

Le programme "Accelerator Transmutation of Waste" (ATW) a commencé au-

---

tour 1990, et concerne principalement la destruction plutôt que la production des matériaux radioactifs. Un tel projet a été récemment recommandé par plusieurs physiciens, et plus particulièrement par C.D. Bowman à Los Alamos [Bow92] et C. Rubbia au CERN [Rub95]. En outre, les Etats-Unis et la France envisagent actuellement des programmes pour la production du tritium à l'aide d'un accélérateur (APT) [Bro96]. La production de RIBs pour la recherche fondamentale et de radio-isotopes pour la médecine nucléaire par fission induite par neutron est un argument supplémentaire en faveur des ADS actuels [Con95, Bro96, R&D98].

## Plan

Deux méthodes permettent d'aborder les objectifs principaux de ce travail de thèse intitulé "Optimisation de combinaisons de faisceau et de cible pour les systèmes de réacteurs hybrides et pour la production de faisceaux radioactifs par fission" : 1) réaliser des expériences, et/ou 2) effectuer des simulations numériques. Les expériences demandent habituellement beaucoup d'équipements et d'efforts, sont plutôt onéreuses et pas toujours réalisables. Par contre, une expérience réussie, en général, fournit des informations incontestables. Cependant, les simulations, par rapport aux expériences, sont moins coûteuses, et les résultats plus rapides. Les simulations donnent également beaucoup plus de liberté et de flexibilité pour la modélisation de problèmes aussi bien simples que très complexes. Cependant, le travail théorique doit être validé par des données expérimentales.

Dans la présente thèse nous avons réalisé à la fois un travail théorique et expérimental. Les simulations ont été très soigneusement vérifiées à des étapes intermédiaires de calculs sur des cas simples afin de valider des prévisions théoriques dans des cas plus complexes. Nos nouvelles données expérimentales ont un rapport direct avec les modélisations numériques et servent, en conséquence, pour valider en partie les modèles théoriques sous-jacents. Ce travail se divise naturellement en deux parties principales : Partie I (théorique), qui inclut les Chapitres de 1 à 5, et la Partie II (expérimentale), qui inclut les Chapitres 6 et 7.

Le Chapitre 1 présente les systèmes de codes (Monte Carlo) de simulation, à savoir LAHET [Pra89], MCNP [Bri93] et CINDER [Wil98], qui nous ont été fournis séparément, combinés et utilisés pour les simulations théoriques. Nous décrivons brièvement la liaison de codes et le flux des données. Le même Chapitre résume également les modèles de physique utilisés, et donne une description courte des bibliothèques de données utilisées. Le lecteur, non intéressé par le détail des codes de simulation et des bibliothèques de données, pourrait sauter ce Chapitre 1 plutôt technique et passer au Chapitre 2.

Dans le Chapitre 2, nous exécutons des calculs de "banc d'essai" (benchmarking) de codes que nous utilisons plus tard dans ce travail. Le Section 2.2 présente une brève étude des calculs de production de nucléons pour des réactions induites par deutérons. Nous prouvons que les modèles de physique de LAHET négligent la dissociation coulombienne du deutéron. Ce processus manquant (décrit en détail dans la sous-section 2.2.2) une fois ajouté à LAHET, donne une bonne concordance avec

les données disponibles. Dans le même Chapitre 2 nous examinons également les prévisions de LAHET pour la production isotopique. L'application d'un modèle de fission différent pour les noyaux résiduels de  $Z \geq 91$  améliore l'accord entre les prévisions théoriques et les données expérimentales, aussi bien pour les valeurs absolues que pour les distributions isotopiques.

Des évaluations de production de neutrons sont présentées dans Chapitre 3. Nous comparons les réactions induites par protons et les réactions induites par deutérons. Les résultats incluent les spectres d'énergies, les distributions angulaires et les multiplicités moyennes des neutrons émis. Chacun de ces paramètres est considéré en fonction du projectile, de son énergie totale et de la cible.

Nos résultats dans le Chapitre 3 fournissent des caractéristiques utiles pour le choix de la cible de spallation (métal léger/lourd) et de la particule incidente (proton/deutéron) pour deux applications où une source de neutrons joue le rôle principal : a) l'amplification d'énergie sous-critique pilotée par accélérateur (Chapitre 4), et b) production de RIBs par accélérateur par l'intermédiaire de neutrons induisant les fissions (Chapitre 5). Dans le Chapitre 4, en plus des prévisions du gain d'énergie dans le système hybride examiné, nous estimons également la radioactivité produite et accumulée dans la cible de spallation (métal léger/lourd) bombardée par les particules incidentes (proton/deutéron) de grande énergie et de haute intensité. A la fin du Chapitre 4, nous présentons nos commentaires sur l'accélération des deutérons comparés aux protons.

Le Chapitre 5 décrit le principe du projet de SPIRAL Phase-II au GANIL pour la production de RIBs par l'intermédiaire des fissions induites par neutrons. Les énergies de faisceau incident, les cibles de conversion et les cibles de production pour les rendements de fission les plus élevés sont évaluées. En outre, les problèmes de radioprotection sont estimés quantitativement pour différentes combinaisons de cible menant au scénario optimum du système entier. En conclusion, les calculs du dépôt de chaleur de faisceau dans la cible sont effectués et un dispositif simple pour la conduction de chaleur dans une chemise refroidie à l'eau est proposé.

Les Chapitres 6-7 présentent les travaux expérimentaux (Partie II) réalisés dans cette thèse. La première expérience (Chapitre 6) a été faite au Laboratoire National de Saturne (Saclay, France). La deuxième expérience (Chapter 7) a été réalisée au National Accelerator Centre (Faure, Afrique du Sud). Des spectres d'énergies complets et des distributions angulaires de protons ont été mesurés avec des deutérons de 100MeV sur des cibles de Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb et U ainsi qu'avec des deutérons de 200MeV sur U. Les Chapitres 6-7 contiennent des descriptions détaillées de l'installation expérimentale, des données et des procédures d'analyse de données.

En outre, la Section 7.4 du Chapitre 7 est consacrée à la physique des réactions  $X(d, xp)$  à  $E_d=100\text{MeV}$ . Les spectres en énergie et les distributions angulaires sont obtenus ainsi que les sections efficaces totales de production de protons. Nous comparons nos nouvelles données à une systématique de Kalbach-Mann pour les distributions angulaires des protons. Le code LAHET (cette fois incluant la dissociation coulombienne) est comparé de nouveau à ces nouvelles données expérimentales dans la Section 7.5.

Le dernier Chapitre de cette thèse donne un bref résumé des résultats obtenus

---

ainsi que des perspectives de recherches futures à effectuer.

L'annexe A contient les spectres différentiels des protons obtenus pour les cibles de Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb, et U dans la réaction (d,xp) à une énergie de deutérons incidents de 100MeV. Notons que plus que 120 spectres ont été ainsi obtenus et analysés au total.



# Première partie

## Théorique



# Chapitre 1

## Codes de simulation

### 1.1 Introduction

Quand une particule énergétique interagit avec une cible composée de noyaux lourds, des dizaines de neutrons sont produits. En physique nucléaire, ce processus, connu depuis les années 50 [Ser47a], est appelé réaction de spallation. Bien que ce processus soit fondamentalement compris, la fiabilité des prévisions est encore sujette à discussion. Il est essentiel de répondre aux questions suivantes : Dans quelle mesure les calculs de production induite par spallation de particules sont-ils fiables ? Quelles sont les insuffisances des modèles utilisés ? Comment améliorer ces modèles ? Les données éditées sont-elles fiables ? Quelles autres mesures sont nécessaires et dans quel intervalle d'énergie ?

Pour des sources de spallation de neutrons on emploie des cibles épaisses afin que toutes les particules émises dans la réaction primaire de spallation induisent des réactions secondaires, tertiaires, etc., produisant des neutrons supplémentaires et, de ce fait, convertissent l'énergie incidente plus efficacement en production de neutrons. Les fissions induites par les neutrons primaires, secondaires, etc., auront lieu dans un matériau sous-critique multiplicatif ou dans une cible secondaire de production de noyaux radioactifs (RIBs). Puisqu'il est important de tenir compte de toutes les contributions des différentes générations de réaction (primaire, secondaire, etc.) et à toutes les énergies, des codes de transport hadronique de type Monte Carlo semblent être les outils les plus appropriés pour réaliser ces évaluations.

Beaucoup de théories ont été formulées pour décrire des phénomènes de pré-équilibre (spallation y compris) induits par diverses projectiles. Citons notamment le modèle de cascade intranucléaire [Ber63], le modèle de dispersion quasi-libre [Mig76], le modèle d'exciton de pré-équilibre [Gri66, Bla68], et le modèle hybride [Bla72]. Ces divers modèles sont raisonnablement en accord avec une grande gamme de données expérimentales. Le modèle théorique le plus fréquemment utilisé décrivant le processus de spallation est le modèle de la cascade intranucléaire (INC) qui est effectivement une combinaison de plusieurs modèles correspondant à l'évolution temporelle différente des réactions induites.

Au cours des vingt dernières années, un important travail a été réalisé au Labora-

toire National de Los Alamos (LANL) pour développer un système de code basé sur la version de LANL du code de transport de haute énergie (High Energy Transport Code - HETC). Ce code fut initialement développé au Laboratoire National d'Oak Ridge (ORNL) [Arm72] pour le transport des nucléons, des mésons, des pions et des muons. En raison des nombreuses modifications ajoutées à LANL, la version actuelle a été nommée LAHET (Los Alamos High Energy Transport), et un ensemble des codes basés sur LAHET indiqué comme Système de Code de LAHET (LCS) (voir la Figure 1.1).

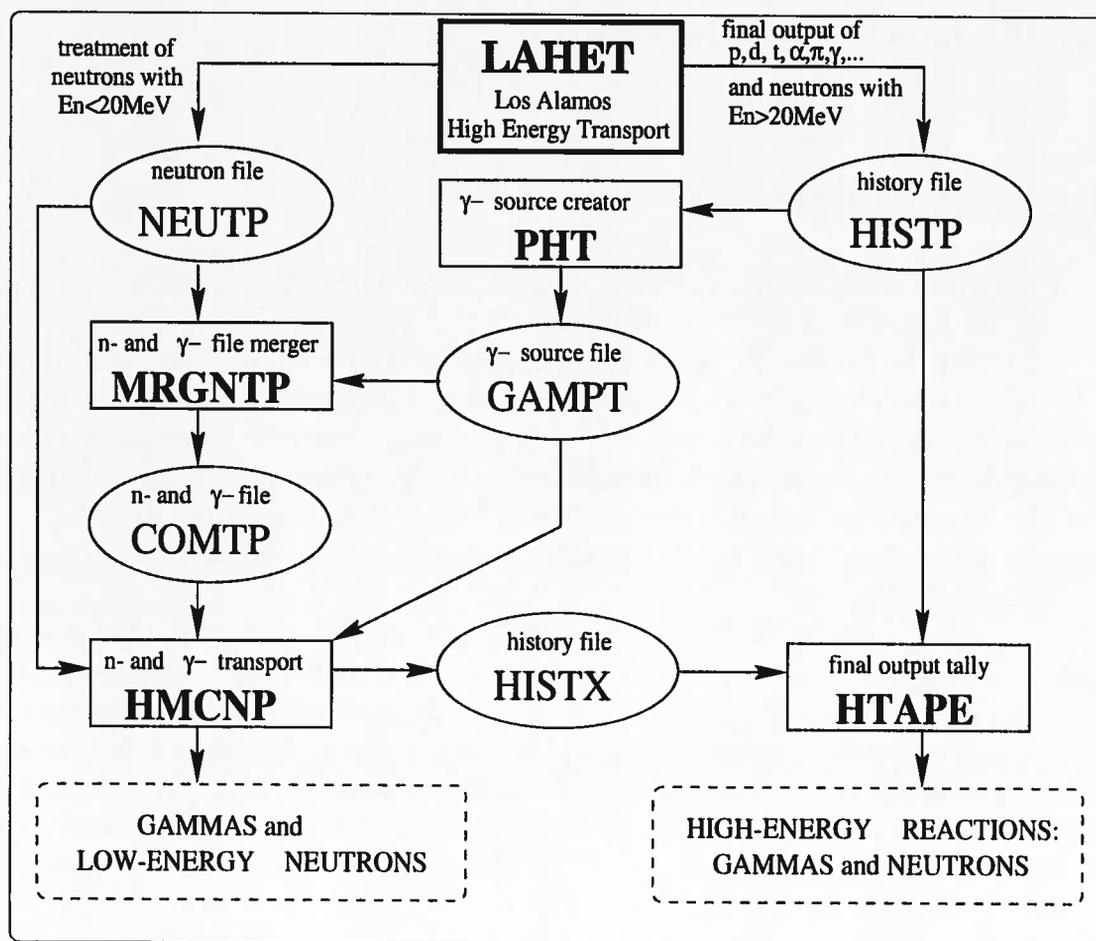


FIG. 1.1 - La liaison des codes et les flux des données pour le Système de Code de LAHET (LCS) comme de [Pra89].

La philosophie qui sous-tend le code de LAHET est de traiter toutes les interactions par des protons, mésons, pions et muons, mais de traiter les interactions de neutrons uniquement au-dessus d'une énergie de coupure, typiquement 20 MeV. Chaque neutron apparaissant avec une énergie inférieure à l'énergie de coupure est enregistré avec ses paramètres cinématiques sur un fichier de neutrons (NEUTP) pour être traité ultérieurement par un autre code de transport Monte Carlo utilisant les bibliothèques de neutrons de la base de données ENDF/B [Kin79]. Pour LAHET, une version du code "Monte Carlo N-Particle" (MCNP) [Bri93], modifiée

pour recevoir NEUTP comme source d'entrée, est utilisée pour terminer le transport de particules, et se nomme HMCNP.

Le code LCS étant basé sur le couplage de LAHET à HMCNP par l'intermédiaire du fichier de neutron NEUTP, LAHET utilise la géométrie de MCNP. L'utilisateur peut exécuter un calcul en préparant d'abord le fichier d'entrée de HMCNP, en utilisant toutes les capacités de ce code pour corriger les définitions de la géométrie si nécessaire; les enregistrements de cellules et de surface de HMCNP ainsi produits peuvent alors être insérés dans le fichier d'entrée de LAHET avec quelques modifications.

Des résultats de calcul de HMCNP peuvent être obtenus directement à partir des procédures de sortie standard de MCNP, bien que la sortie ait été modifiée pour les problèmes d'accélérateur. Des bilans édités du passage initial de LAHET sont obtenus par le traitement ultérieur des données enregistrées sur le fichier historique (HISTP) utilisant le code de sortie HTAPE. On peut exécuter la phase HMCNP du calcul comme problème couplé de neutron-photon; cependant, pour obtenir une source de photons due aux interactions de haute énergie calculées par LAHET, il est nécessaire d'exécuter le code de PHT. Celui-ci reçoit HISTP comme fichier d'entrée et produit un fichier gamma (GAMTP) contenant une source de photons pour HMCNP dans le même format que NEUTP.

Les deux fichiers, NEUTP et GAMTP, peuvent fusionner avec le code MRGNTP pour agir en tant que source pour HMCNP dans un problème couplé de neutron-photon qui décrit le transport de la source entière de rayons gamma du système. Les relations des divers codes dans les LCS et les noms de fichier qui diffusent l'information sont indiqués dans la Figure 1.1.

LAHET peut également être employé pour calculer directement des sections efficaces. Dans cette option, le transport est arrêté et on suppose que la particule primaire interagit directement avec le matériel indiqué à l'énergie incidente. Le fichier historique obtenu est alors traité avec le code de XSEX pour produire des sections efficaces différentielles de production de particules (non montrées dans la Figure 1.1).

Les codes LAHET et MCNP ont été adoptés par le code d'inventaire de radio-nucléides et de transmutation CINDER'90 [Wil98], lequel exige en entrée un flux de neutrons avec  $E_n \leq 20\text{MeV}$  et des taux production de nucléides pour les réactions de neutrons à des énergies plus élevées et pour les particules supplémentaires. Dans ce contexte, LCS peut évaluer les produits de spallation induits par des nucléons d'énergie intermédiaire et un calcul couplé avec HMCNP fournit le flux associé de neutrons de basse énergie. Le code CINDER'90 (discuté ci-dessous en détail) a été développé pour des problèmes associés aux systèmes pilotés par un accélérateur, mais, en général, il est applicable à tout problème de transmutation pour lequel les calculs des réactions sont disponibles.

Dans les Sections suivantes nous décrirons brièvement les modèles et les concepts physiques utilisés respectivement par les codes LAHET, MCNP et CINDER.

## 1.2 Le Système de Code LAHET (LCS)

Le système de code LAHET (LCS) [Pra89], obtenu à partir du LANL [Pra98], utilise l'approche théorique la plus propice aux réactions de spallation, à savoir le modèle de cascade intranucléaire (INC) et le modèle d'évaporation (EVAP). Nous notons une différence importante entre les modèles fondamentaux d'INC et d'EVAP : les calculs d'INC suivent l'historique de différents nucléons d'une façon classique ou semiclassique menant au système équilibré, alors que les calculs d'EVAP suivent la désexcitation du noyau entier quand il décroît statistiquement d'un niveau excité vers un niveau d'énergie inférieur. La connexion entre les deux approches est l'un des points les plus sensibles des simulations des réactions nucléon-noyau de haute énergie ou d'énergie intermédiaire. En général, l'approche simple d'INC devrait être justifiée aussi longtemps que des nucléons peuvent être traités classiquement, c.-à-d. tant que la longueur d'onde  $\lambda$  du nucléon incident est plus petite que le rayon du nucléon. En d'autres termes, lorsque  $\lambda$  est inférieur à  $\pi/2 \text{ fm}$ , de même que quand l'énergie incidente  $E$  est supérieure à 160 MeV. D'autre part, l'approche d'EVAP devrait vérifier que l'énergie du nucléon n'excède pas l'énergie de séparation ajoutée à l'énergie de Fermi, c.-à-d.  $\sim 40 \text{ MeV}$ . Au delà de ce point, l'évaporation standard est assumée. Ainsi, l'énergie de transition entre les calculs d'INC et d'EVAP ne peut pas être rigoureusement indiquée. Pour cette raison la plupart des codes de haute énergie, y compris le LCS, ont cherché à modéliser une étape intermédiaire de pré-équilibre dont le domaine de la validité est intermédiaire au domaine d'énergie d'INC et à celui d'EVAP.

Comme alternative à l'INC de Bertini [Ber63, Ber69] ([Arm72]), LAHET contient les sous-programmes d'INC du code ISABEL [Yar79, Yar81]. Le modèle d'INC de Bertini décrit l'interaction nucléon-noyau au-dessous de 3.5 GeV et l'interaction pion-nucléon au-dessous de 2.5 GeV ; une approximation de loi d'échelle est employée pour prolonger des interactions aux énergies arbitrairement élevées, bien qu'une limite supérieure raisonnable soit d'environ 10 GeV. Dans ce modèle, le nucléon incident heurte un ou plusieurs nucléons des nucléons de cible. Les nucléons frappés, à leur tour, collisionnent d'autres nucléons et une cascade se développe. Le calcul d'INC est arrêté chaque fois que l'énergie d'un nucléon donné tombe au-dessous d'une certaine valeur (liée à la profondeur du potentiel nucléaire). On ne permet pas les collisions entre les nucléons de cascade. Cette limitation est abolie dans des développements plus récents des modèles d'INC [Yar79, Cug87], où on permet des collisions de cascade-cascade (aux dépens du temps de calcul).

Le modèle d'INC ISABEL est une extension réalisée par Yariv et Fraenkel [Yar79] du code VEGAS [Che68]. Il a la capacité de traiter les réactions nucléon-noyau aussi bien que des interactions de noyau-noyau. Il tient compte des interactions entre les particules qui sont excitées au-dessus de la mer de Fermi [Yar81]. Les réactions peuvent être évaluées à 16 valeurs de densités différentes, plutôt que 3 comme dans INC de Bertini. ISABEL permet également l'annihilation d'antiprotons avec l'émission des kaons, mésons et pions [Clo82]. Comme dans LAHET, on autorise seulement des projectiles avec  $A \leq 4$ . La limite supérieure d'énergie incidente est 1 GeV par nucléon. Le temps de calcul est généralement 5 à 10 fois plus grand par collision que le

modèle de Bertini. Le modèle ISABEL contient beaucoup d'options. En fait, le modèle d'INC ISABEL a été rarement utilisé dans des calculs de production de nucléons, puisque le modèle de Bertini est considéré adéquat pour la plupart des applications de conception, et les avantages du modèle ISABEL sont fréquemment trop subtils pour être considérés comme essentiels lors de problèmes pratiques. Nous reviendrons aux calculs de benchmark du modèle ISABEL dans le prochain Chapitre. Une autre raison pour laquelle les options d'ISABEL n'ont pas été correctement mises au point dans LCS est que, dans la plupart des applications pour les accélérateurs, seuls les protons ont été considérés comme projectiles incidents ; l'INC de BERTINI ne peut pas être utilisé avec les projectiles complexes.

La désexcitation ultérieure du noyau résiduel après l'étape d'INC dans le LCS peut, en option, utiliser un modèle à plusieurs étapes d'exciton pré-équilibré (multistage pre-equilibrium exciton model, MPM) [Pra88]. Le MPM est appelé avec une première configuration particule-trou et une énergie d'excitation déterminée par les résultats de la cascade. À chaque étape dans le MPM, le noyau excité peut émettre un neutron, un proton, un deutéron, un triton, un  $^3\text{He}$  ou un alpha ; alternativement, la configuration nucléaire peut évoluer vers un nombre d'excitons équilibrés en augmentant le nombre d'excitons d'une paire de particule-trou [Pra88]. Le MPM se termine lorsque les nombres d'excitons sont équilibrés ; le modèle d'évaporation (ou le modèle de fragmentation de Fermi pour les noyaux légers) est appliqué au noyau résiduel avec l'énergie d'excitation restante. Dans la mise en place du MPM, les sections efficaces de réaction inverse sont représentées par la paramétrisation de Chatterjee [Cha81]. Les potentiels, à partir desquels les sections efficaces de réaction inverse sont obtenues, sont ceux choisis par Kalbach [Kal85].

Quand le modèle de cascade intranucléaire ISABEL est appelé, il est possible de déterminer explicitement la configuration particule-trou du noyau résiduel puisqu'une liste des excitations permises de la mer de Fermi (et le remplissage des trous existants) est fournie. Pour définir l'état initial dans le MPM, le nombre de paires particule-trou est diminué d'un à chaque collision intranucléaire pour laquelle les deux nucléons excités sont en dessous de la barrière du puits du potentiel nucléaire. En adaptant le MPM à l'INC de Bertini, il n'a pas encore été possible d'extraire la même information détaillée à partir de l'historique d'INC. En conséquence, l'algorithme, qui définit l'interface entre l'INC de Bertini et le MPM est une approximation plutôt grossière pour permettre l'évaluation initiale du MPM, mais qui pourrait être améliorée.

LAHET inclut deux modèles de fission induits par des interactions à des énergies élevées : le modèle d'ORNL par Alsmiller [Bar81] et le modèle de RAL par Atchison [Atc80]. Les modèles de fission sont utilisés avec le modèle d'évaporation de Dresner [Dre62]. Le modèle de RAL permet la fission pour  $Z \geq 71$ , donné par défaut dans LAHET. Le modèle de RAL est en fait composé de deux modèles, pour la fission des actinides et des subactinides respectivement. Le modèle de fission d'ORNL suppose que la probabilité de fission est différente de zéro uniquement pour les noyaux résiduels (après l'étape d'INC) avec  $Z \geq 91$ . Nous parlerons des calculs de benchmark des modèles de fission dans le prochain Chapitre.

L'ingrédient le plus important de tout modèle d'évaporation est la densité de

niveau. Trois formulations facultatives de la densité de niveau ont été introduites dans le code de LAHET. Par défaut, le paramètre de la densité de niveau  $a$  est obtenu à partir de la formulation dépendante d'énergie d'Ignatyuk [Ign75] comme dans le code GNASH [Art88]. La disposition suivante est assumée:  $\lim_{e \rightarrow 0} a(E) = a_0$ , où  $E$  est l'énergie d'excitation et le paramètre  $a_0$  de la densité de niveau est obtenu par Gilbert et Cameron [Gil65]. Pour le modèle d'évaporation, une valeur constante est prise à une énergie d'excitation proche de l'excitation la plus probable du noyau après le processus d'évaporation. Les autres options sont le modèle initialement utilisé dans le modèle d'évaporation de HETC [Dre62] et une alternative dépendante de masse (Jülich) plus récemment développée pour usage dans HETC [Clo83].

Le modèle de fragmentation de Fermi [Bre81] a substitué le modèle d'EVAP pour la désintégration des noyaux légers ( $A \leq 17$ ). Il traite les processus de désexcitation comme désassemblages simultanés du noyau et des transitions de désexcitation d'un nucléon. N'importe quel noyau instable produit est sujet à dissociation ultérieure. La probabilité pour un canal de désintégration donné est principalement déterminée à partir de l'espace de phase disponible, avec des probabilités pour des canaux de deux-corps modifiés par la barrière coulombienne, le moment angulaire, et les facteurs d'isospin. Dans la mise en place de LAHET, seules des voies de désintégration à deux-corps et à trois-corps sont considérées.

LAHET diffère du code de HETC dans l'utilisation des énergies de coupure des particules s'échappant du noyau pendant INC. Pour l'un ou l'autre modèle d'INC, l'énergie de coupure de neutron est uniformément distribuée entre zéro et deux fois l'énergie moyenne de liaison. La barrière coulombienne est aléatoirement distribuée sous une forme simulant une probabilité de transmission de barrière coulombienne; le maximum de la barrière coulombienne et de la coupure de neutron est alors utilisé comme énergie de coupure pour les protons. L'échantillonnage des énergies de coupure est exécuté une fois pour chaque interaction projectile-cible; les barrières définies ainsi sont alors appliquées à chaque émission de particules dans la cascade résultante. Ce procédé, évidemment artificiel, a pour effet d'empêcher une discontinuité dans le spectre d'émission de particules, tout en préservant bien l'émission moyenne de particules. Un autre petit ajout au procédé d'INC est appliqué aux réactions (p,n) et (n,p). Dans ce cas-ci, l'énergie de particules émises est corrigée par la différence d'énergie de liaison dans les canaux d'entrée et de sortie. La modification améliore considérablement le réalisme dans le spectre d'émission de haute énergie et améliore de manière significative le bilan énergétique global dans l'INC [Pra89].

Nous reviendrons à quelques exemples importants de benchmark du système de LCS dans le prochain Chapitre. En outre, nous renvoyons le lecteur aux Références [Pra89, Pra93, Pra94], où les calculs des différentes options de physique de LAHET et des codes ultérieurs de post-traitement ont été comparés intensivement à des données expérimentales pour une multitude de matériaux de cible, de projectiles et à des énergies variables, et pour des géométries différentes.

## 1.3 Le Système de Code MCNP

Comme nous l'avons déjà mentionné ci-dessus, pour les éjectiles d'énergie de  $E_n \leq 20\text{MeV}$  le transport de neutrons est exécuté en utilisant le code de MCNP [Bri93] et les bibliothèques de sections efficaces basées sur ENDF/B. LAHET utilise le même système de géométrie que MCNP. Ce dernier code a été repris de l'OECD/NEA – Banque de Données à Paris [Sar97]. MCNP est un code de Monte Carlo à N-Particules d'usage universel qui peut être utilisé pour le neutron, le photon, l'électron ou le transport couplé de neutrons, photons et électrons, et a la capacité de calculer des valeurs propres pour les systèmes critiques. La gamme d'énergie de neutrons est comprise entre  $10^{-11}\text{MeV}$  et  $20\text{MeV}$ , et les régimes d'énergie de photons et d'électrons sont de  $1\text{keV}$  à  $1\text{GeV}$ . Le code traite une configuration tridimensionnelle arbitraire de matériaux en cellules géométriques. Le calcul suit l'historique de chaque neutron individuellement. Toutes les réactions, dont les sections efficaces pour les neutrons, sont contenues dans une base de données telle que ENDF/B-V [Kin79], ENDF/B-VI [Hen94], sont prises en considération. Des neutrons thermiques sont décrits par les modèles de gaz libre et de données de neutrons thermiques de type  $S(\alpha,\beta)$  [Bri93].

Le module de code MCNP ne possède pas de tables nucléaires de données associées. Les huit classes des tables de données nucléaires qui existent pour MCNP [Bri93, Hen94] sont : (1) les données d'interaction de neutrons d'énergie continue, (2) les données d'interaction de neutrons de réactions discrètes, (3) les données d'interaction de photons, (4) les sections efficaces de dosimétrie de neutrons, (5) les données de neutrons thermiques  $S(\alpha,\beta)$ , (6) les neutrons de multigroupe, le couplage neutron-photon, et le "masquerading" de particules chargées comme neutrons, (7) les photons de multigroupe, et enfin (8) les données d'interaction d'électrons.

Notons que les données de photons et d'électrons sont des données atomiques plutôt que nucléaires. Dans les problèmes de mode de neutrons, une table d'énergie continue ou d'énergie discrète d'interaction de neutrons est exigée pour chaque isotope ou élément. De même, une table d'interaction de photons est exigée pour chaque élément dans le problème de mode de photons, et une table d'interaction d'électrons est exigée pour chaque élément dans le problème de mode d'électron. Plus de 500 tables d'interactions de neutrons sont disponibles pour approximativement 100 isotopes et éléments différents. De nouvelles tables d'interaction de neutrons sont constamment ajoutées chaque fois que de nouvelles évaluations sont disponibles. Des données de production de photons induites par un neutron sont données dans les tables d'interactions de neutrons quand de telles données sont incluses dans les évaluations.

### 1.3.1 Transport et interactions de neutrons

La physique des interactions du neutron, du photon, et de l'électron est l'essence même de MCNP. Puisque dans nos simulations combinées de LAHET+MCNP le code de MCNP a été utilisé uniquement pour des problèmes neutroniques, nous rappelons ici, brièvement, seule la physique liée aux neutrons. Quand un neutron

heurte un noyau, la séquence suivante est effectuée par le code [Bri93] : 1. le nucléide de collision est identifié ; 2. soit le traitement de la dispersion thermique  $S(\alpha,\beta)$  est utilisé soit la vitesse du noyau de cible est échantillonnée pour les neutrons de basse énergie ; 3. des photons sont produits en option pour le transport postérieur ; 4. la capture de neutron (c'est-à-dire, disparition de neutron par tout processus) est modélisée ; 5. si le traitement  $S(\alpha,\beta)$  n'est pas disponible, la diffusion élastique ou une réaction inélastique est choisie, et la nouvelle énergie et direction des traces sortantes sont déterminées ; 6. si l'énergie du neutron est assez basse et la table appropriée de  $S(\alpha,\beta)$  disponible, la collision est modélisée par le traitement de  $S(\alpha,\beta)$  à la place l'étape 5.

La Figure 1.2 représente un historique aléatoire simplifié de neutron incident sur une galette de matière fissile qui peut subir la fission [Bri93]. Des tirages aléa-

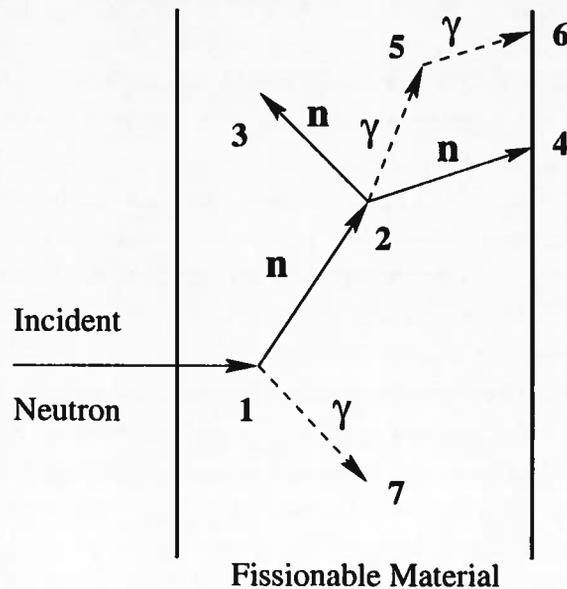


FIG. 1.2 – L'historique aléatoire d'un neutron sur une galette de matière fissile. (voir le texte pour une discussion plus détaillée).

toires déterminent quels types d'interaction a lieu et à quel endroit. Ce choix est basé sur les règles (physique) et les probabilités (données de transport) régissant les processus et les matériaux impliqués. Dans cet exemple particulier, une collision se produit à l'événement 1. Le neutron est diffusé dans la direction indiquée, qui est choisie aléatoirement à partir de la distribution physique de dispersion. Un photon est également produit et est temporairement enregistré pour l'analyse postérieure. À l'événement 2, la fission se produit, ayant pour résultat l'arrêt du neutron entrant et la naissance de deux neutrons sortants et d'un photon. Un neutron et le photon sont enregistrés pour l'analyse postérieure. Le premier neutron de fission est capturé à l'événement 3 et son historique est terminé. Le neutron enregistré est maintenant recherché et, par échantillonnage aléatoire, fuit hors de la galette à l'événement 4. Le photon produit par fission a une collision à l'événement 5 et s'échappe à l'événement

6. Le photon restant, produit à l'événement 1, est maintenant suivi avec un événement 7 de capture. Notez que MCNP recherche les particules enregistrées de façon que la dernière particule enregistrée à la banque soit la première particule traitée. L'historique de ce neutron est maintenant complet. Avec un nombre croissant de tels historiques les distributions des neutrons et des photons deviennent mieux connues. Les quantités d'intérêt (quelques soient les demandes de l'utilisateur) sont calculées ainsi que des évaluations de la précision statistique (incertitude) des résultats. En fait, MCNP permet le traitement exact des géométries les plus compliquées ; la seule limitation étant la statistique et le temps de calcul.

### 1.3.2 Problème de criticité

La criticité nucléaire, la capacité de soutenir une réaction en chaîne par des neutrons de fission, se caractérise par  $k_{eff}$ , la valeur propre à l'équation de transport de neutron. Dans la théorie des réacteurs,  $k_{eff}$  est le nombre moyen de neutrons dans les générations successives de fission pendant le transport d'un neutron dans le système [Gla95]. Pour les systèmes critiques,  $k_{eff}=1$ , la réaction en chaîne s'auto-entretient. Pour les systèmes sous-critiques,  $k_{eff}<1$ , la réaction en chaîne s'interrompt. Pour les systèmes supercritiques,  $k_{eff}>1$ , le nombre de fissions dans les réactions en chaîne augmentera avec le temps.

Le calcul de  $k_{eff}$  se compose de l'estimation du nombre moyen de neutrons produits par fission dans une génération de fission donnée. Une génération est le temps de vie d'un neutron, de sa naissance dans la fission, à sa mort par capture, ou absorption menant à une nouvelle fission. Dans MCNP, l'équivalent de calcul d'une génération de fission est un cycle de  $k_{eff}$ , c.-à-d. une évaluation calculée d'une génération réelle de fission. Des processus comme (n,2n) et (n,3n) sont considérés internes à un cycle et n'agissent pas en tant qu'arrêt du cycle. Puisque des neutrons de fission sont enregistrés à chaque cycle pour fournir la source de fission pour le prochain cycle, un historique simple peut être visualisé comme continuant de cycle en cycle. L'effet des neutrons retardés est inclus en utilisant le nombre total moyen de neutrons. On suppose que le spectre des neutrons retardés est identique à celui des neutrons de fission prompte.

La valeur propre de criticité et les vies promptes de neutrons, avec leurs déviations standard, sont automatiquement estimées dans chaque calcul de criticité en plus de tous les comptages demandés par l'utilisateur. Le coefficient  $k_{eff}$  et les durées de vies sont estimés pour chaque cycle actif ainsi que leur moyenne sur tous les cycles actifs. MCNP utilise trois estimateurs différents pour  $k_{eff}$ , à savoir des estimateurs de collision, des estimateurs d'absorption et des estimateurs de longueur de piste [Urb93]. Ces évaluations sont combinées en utilisant des corrélations statistiques observées pour fournir l'évaluation de  $k_{eff}$  final et sa déviation standard.

Le résultat d'un calcul de criticité de Monte Carlo (comme tout autre type de calcul de Monte Carlo) fournit un intervalle de confiance. Pour la criticité, ceci signifie que le résultat n'est pas simplement  $k_{eff}$ , mais  $k_{eff}$  plus-moins un certain nombre de la déviation standard. En règle générale, l'intervalle de confiance basé sur les trois estimateurs de  $k_{eff}$  combinés statistiquement est celui qu'il est recommandé

d'utiliser. De cette façon toute l'information disponible a été utilisée dans le résultat final.

## 1.4 Le Système de Code CINDER

CINDER'90 est un code d'inventaire de transmutation ayant une bibliothèque de sections efficaces de 63 groupes et n'exigeant aucune préparation de bibliothèque avant l'exécution [Wil98]. Comme d'autres codes simulant l'environnement de rayonnement, CINDER'90 a été employé pour décrire des inventaires de nucléide dans une variété d'applications. CINDER a été obtenu à partir du LANL [Wil98].

Les concentrations temporelles des nucléides dans des matériaux soumis à l'irradiation sont décrites par un grand ensemble d'équations couplées. La concentration de chaque nucléide est déterminée par un historique des gains des réactions d'absorption de neutrons (spallation, fission,  $(n,\gamma)$ ,  $(n,2n)$ , etc...), de la décroissance radioactive des nucléides parents, et des pertes de sa propre décroissance ou absorption. La solution pour ces concentrations de nucléides a été simplifiée avec le code de CINDER, qui a résolu les couplages de chaînes compliqués de nucléides linéaires, chaque chaîne représentant une seule voie d'accès de nucléide à nucléide, ayant pour résultat de petits ensembles indépendants d'équations décrivant le changement des concentrations partielles des nucléides dans chaque chaîne. La solution de grands ensembles d'équations est ainsi réduite à la solution d'un certain nombre de petits ensembles d'équations, chacune caractérisée par une forme généralisée. En raison de la nature linéaire de la chaîne (un résultat de processus de Markov), les équations généralisées peuvent être résolues séquentiellement pour la concentration partielle de chaque nucléide linéaire dans la chaîne. Des concentrations de nucléide sont alors obtenues en additionnant des concentrations partielles (voir le [Wil98] pour une description plus détaillée).

Les versions précédentes de CINDER ont exigé le développement d'une bibliothèque des chaînes de transmutation avant le calcul. Le code actuel utilise une bibliothèque basée sur des données nucléaires pour tracer toutes les voies d'accès possibles de transmutation, déterminant la concentration partielle et l'activité associée de chaque nucléide linéaire aussi bien que la transmutation intégrée de chaque nucléide linéaire pendant un incrément de temps. La transmutation intégrée linéaire d'un nucléide, appelée le passby, indique la somme de concentrations partielles résultantes dans les chaînes partant du nucléide. La concentration linéaire partielle, l'activité et passby de chaque nucléide sont examinés pour déterminer si une chaîne doit être terminée selon des critères de signification d'entrée.

Dans la Figure 1.3 on voit que CINDER dépend des entrées d'autres codes pour décrire l'environnement de rayonnement; de même, un certain nombre de codes sont exigés pour la présentation ordonnée des résultats. CINDER calcule seulement la densité d'atome, densité d'activité, densité de production de neutron retardé, et la description cumulative des événements de fission induits par neutron  $(n,f)$  pour chaque nucléide et à chaque intervalle de temps. Le code de CINDER exige la description du flux de particules et des probabilités de production des nucléides pour

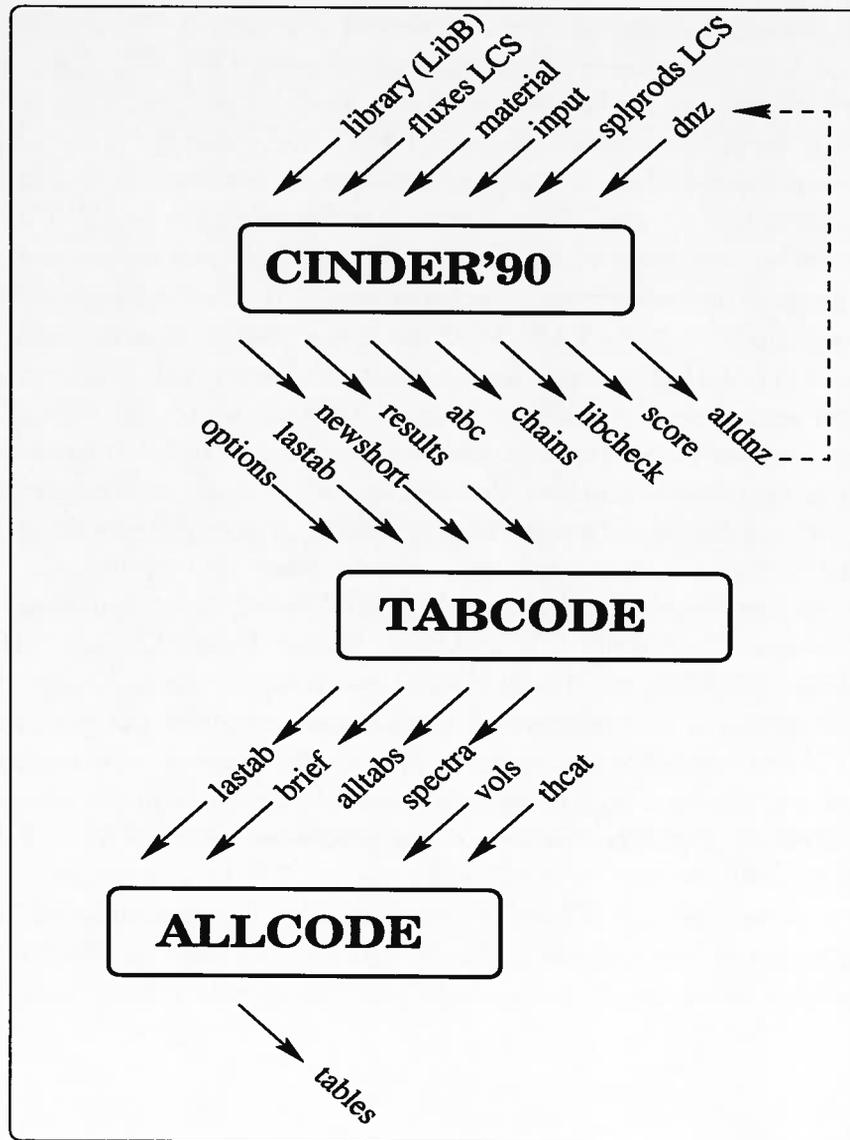


FIG. 1.3 – CINDER'90 et codes associés comme de [Wil99].

des réactions en dehors de la particule et du domaine d'énergie définis par les bibliothèques. Ce qui est compatible avec LAHET [Pra89], qui rapporte les produits de spallation induits par des projectiles légers (grâce au fichier *splprods LCS*). Ceux-ci, ainsi que le flux associé de neutrons de basse énergie avec  $E_n \leq 20\text{MeV}$  (disponible dans le fichier *fluxes LCS*) à partir d'un calcul avec HMCNP [Bri93], peuvent être utilisés par CINDER'90 pour un calcul final. CINDER est employé pour décrire l'inventaire temporel des nucléides dans la région(s) irradiée d'une géométrie homogénéisée. Une région irradiée exige les densités initiales d'atome des nucléides dans un matériel homogénéisé, indiquées dans le fichier *material*. Alternativement, un calcul de CINDER peut commencer par un inventaire de nucléide, lu à partir d'un fichier facultatif *dnz* produit comme *alldnz* (voir la Figure 1.3) dans un calcul précédent retraçant l'historique de l'irradiation du matériel dans un environnement

antérieur et peut-être différent. Nous renvoyons le lecteur à Ref. [Wil98] pour plus de détails sur les informations d'entrées pour exécuter CINDER. Un fichier *results* des résultats calculés et un fichier concentré *newshort* de bibliothèque de données d'un problème spécifique sont passés vers TABCODE (voir la Figure 1.3). C'est un programme auxiliaire qui lit la densité, l'activité, et les taux de fission calculés et produit 43 tableaux sélectionnés en combinant les résultats de CINDER avec des bases des données nucléaires et des limites des nucléides pris en compte.

Dans l'analyse de géométries complexes, ayant un flux unique, les inventaires produits pour des calculs de TABCODE pour les régions séparées sont maintenus et passés vers ALLCODE comme le représente la Figure 1.3. C'est un autre code auxiliaire qui accumule des quantités significatives de toutes les régions et fournit les tableaux commodes décrivant la géométrie complète, qui doit être décrite dans un fichier simple (*vols*) énumérant le volume, le nom et d'autres paramètres des différentes régions. La bibliothèque des données nucléaires (*library LibB*) employées par CINDER décrit maintenant 3400 nucléides dans l'intervalle  $1 \leq Z \leq 103$ . CINDER'90 utilise ces données, par exemple ENDF/B-VI, Joint European Data File (JEF-1), European Activation File (EAF-3), Master Decay Library (MDL), résultats de code de GNASH, etc. [Wil98]. Le développement de la bibliothèque LibC, s'étendant de 20MeV à 150MeV pour la transmutation induite par proton et neutron limitée à  $1 \leq Z \leq 84$  est prévu au prochain produit de données pour des applications de CINDER; on s'attend également à ce que cette bibliothèque comporte des définitions isomériques d'état conforme à celles proposées pour LAHET/PHT [Pra89] et MCNPX [Cha99], la plus récente version de MCNP. La production d'une bibliothèque LibD s'étendant de 20MeV à 150MeV pour la transmutation induite par proton et neutron de tous les nucléides de  $1 \leq Z \leq 103$  exigera un effort considérable pour l'évaluation des rendements produits par fission induite par proton et neutron à 150MeV.

## 1.5 Conclusion

Les codes LAHET, MCNP et CINDER et les efforts relatifs de développement de données ont suivi un itinéraire erratique en raison de la variété et de l'historique des programmes auxquels ils ont été associés. Par le passé, ils ont été appliqués largement à des systèmes pilotés par accélérateur (Accelerator Driven Systems – ADS) tels que la production du tritium par accélérateur (Accelerator Production of Tritium – APT), des technologies pilotées par accélérateur pour la transmutation (Accelerator Driven Transmutation Technologies – ADTT), de la production de faisceau d'ions radioactifs (Radioactive Ion Beams – RIBs) et de la source de neutrons de spallation (Neutron Spallation Source – NSS). Dans ce contexte le système de code de LAHET (LCS) est utilisé pour des calculs de plus en plus difficiles. Les calculs de benchmark aux énergies inférieures à 200MeV et le développement des modèles associés sont nécessaires car cette région d'énergie n'est pas tout à fait dans les limites de validité des modèles utilisés. Des modèles améliorés pour la fission des subactinides ont pu être développés, mais des données étendues à 500MeV et plus

seraient nécessaires. Le calcul de benchmark de la distribution résiduelle de nucléides est fortement souhaitable.

L'intérêt grandissant pour des calculs d'activation et de dosimétrie implique également le besoin de mesurer les limitations des méthodes employées. Dans la plupart des applications d'ADS, les protons ou les neutrons (ou les deux) ont été considérés comme des particules incidentes ou comme particules de transport. À notre connaissance, aucun calcul de benchmark avec le LCS n'a été effectué pour des réactions induites par les particules légères chargées comme des deutérons, tritons,  $^3\text{He}$  et alphas.

Des bibliothèques de données de transport ont été produites pour les nucléides limités en utilisant des données évaluées pour le transport couplé, de  $n-\gamma$  d'énergie continue et pour le transport couplé, du multigroupe de  $n-p-\gamma$ , permettant l'interface au niveau des neutrons entre LAHET et MCNP. Ces bibliothèques devraient être étendues de 20MeV à 150MeV pour beaucoup de problématiques. Dans le code MCNPX [Cha99], actuellement en cours de développement pour combiner les dispositifs de LAHET et de MCNP, des bibliothèques de données élargissant la gamme d'énergie seront soit disponibles, soit évaluées en ligne à l'aide des modèles. De même, les données des sections efficaces pour CINDER doivent donc être étendues de 20MeV à 150MeV pour tous les nucléides de sa bibliothèque. À cet égard, une grande quantité de travail, expérimental et théorique, est nécessaire pour réaliser un fichier de données évaluées, pour des neutrons et des protons, entre 20MeV et 150MeV. Nous rappelons au lecteur que c'est exactement la région d'énergie où l'énergie de transition entre les calculs d'INC et d'EVAP ne peut pas être spécifiée rigoureusement (voir le paragraphe 1.2 de ce chapitre).

Finalement, nous ajoutons que les données de réaction de neutrons et de protons qui s'étendent jusqu'à 150MeV ont été récemment évaluées en utilisant les calculs des modèles nucléaires et les données expérimentales [Cha99]. Ces évaluations tabulent les sections efficaces de spectres d'émission pour des neutrons, des rayons gamma, et des particules légères chargées et peuvent, en conséquence, être utilisées pour des calculs de transport. Dans des applications qui impliquent des énergies supérieures à 150MeV, un code de transport de rayonnement de MCNPX [Cha99] peut utiliser des méthodes intranucléaires de physique de cascade au-dessus de 150MeV et être commuté pour utiliser ces bibliothèques de données pour les particules dont l'énergie est inférieure à 150MeV. Ces nouvelles sections efficaces de 150MeV ont été évaluées, collectivement et désignées sous le nom de bibliothèque LA150. Cette bibliothèque est disponible par l'intermédiaire de l'Internet à <http://t2.lanl.gov/data/>. En outre, elles ont été incluses dans la bibliothèque d'ENDF/B-VI, comme version 6, et sont fournies par National Nuclear Data Center à <http://www.nndc.bnl.gov/>.



# Chapitre 2

## Calculs de benchmark

### 2.1 Introduction

La comparaison récente de codes internationaux de données nucléaires d'énergie intermédiaire organisées par NEA/OECD à Paris [Mic97] a prouvé que le LCS a généralement une meilleure puissance prédictive pour des réactions de spallation que les autres modèles disponibles. On a également noté que les spectres de neutrons aux angles avant pour les réactions induites par protons étaient des tests particulièrement sensibles pour les codes examinés. Le groupe de SATURNE a récemment effectué une étude de cette observable [Led98, Ler99b]. Les données ont été comparées aux calculs en utilisant les modèles d'INC de Bertini et de Cugnon. On a en conclu que l'INC de Cugnon est plus performant que celui de Bertini. Des comparaisons et des résultats semblables ont été faits par le groupe de Los Alamos [Pra94]. Là encore, on a observé une amélioration en utilisant l'INC plus moderne d'ISABEL par rapport à celui de Bertini.

Dans le cas des réactions induites par deutérons, une comparaison semblable du modèle d'INC de Cugnon [Cug87, Cug97] avec des données expérimentales a été effectuée par Martinez [Mar97a]. Là encore, des spectres de neutrons aux angles avant ont été examinés. Comme représente la Figure 2.1, le pic étroit caractéristique des sections efficaces de neutrons émis à grandes énergies, vue clairement aux angles vers l'avant et qui diminue lorsque l'angle de diffusion augmente, n'est pas correctement reproduit par l'INC de Cugnon [Cug97] pour des deutérons et des cibles lourdes. Le pic est sous-estimé en valeur absolue d'un ordre de grandeur. Dans ce cas, les auteurs déclarent clairement que leur modèle néglige la dissociation directe du deutéron incident [Mar97a, Cug97].

On s'attend à ce que ce processus, essentiellement dû aux forces coulombiennes, accroisse la production de neutrons de haute énergie émis aux angles très vers l'avant. Nous notons que la découverte récente [Tan85] des noyaux à halo très étendus avec un centre dense et chargé et avec un, ou parfois deux, neutrons de valence très peu liés, a relancé l'intérêt pour les méthodes de calculs de ce mécanisme de dissociation coulombienne. Cette voie est considérée comme étant importante lors de la diffusion de tels noyaux sur une cible lourde. En plus du pic dû au breakup direct du deutéron,

le code de Cugnon ne reproduit pas les spectres de neutrons aux énergies très basses comme le montre la Figure 2.1 ; dans ce cas, on pense que des neutrons proviennent principalement de processus d'évaporation.

En outre, très récemment le groupe de SATURNE nous a informé [Ler99a] qu'il y a quelques doutes au sujet de la fiabilité des données de SATURNE pour des réactions induites par deutéron [Mar97a]. En bref, l'étalonnage de l'intensité du

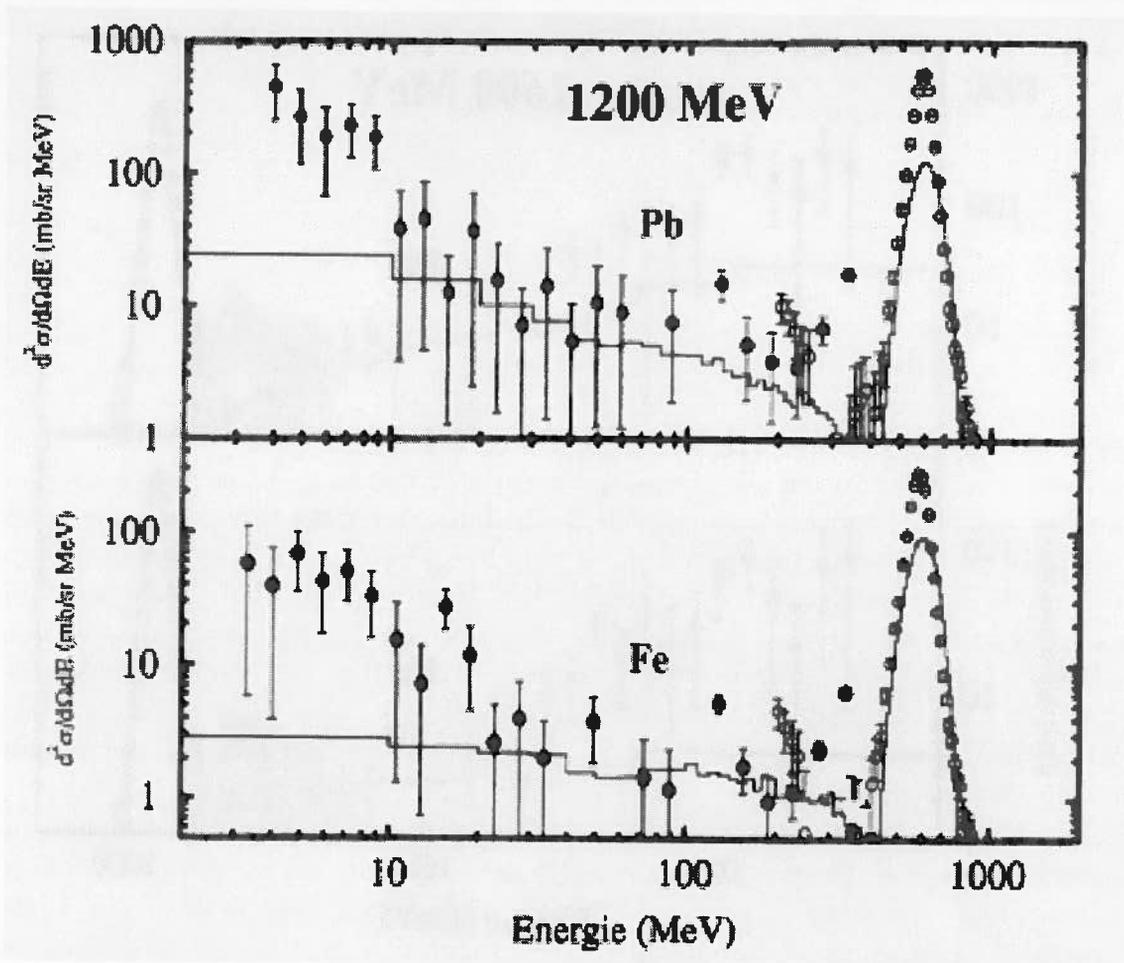


FIG. 2.1 - Spectres en énergie de neutrons à  $\theta_n = 0^\circ$  pour les réactions  $d(1200\text{MeV})+\text{Pb}$  (partie supérieure) et  $d(1200\text{MeV})+\text{Fe}$  (partie inférieure) ; les histogrammes représentent les simulations par l'utilisation du code d'INC de Cugnon (de [Mar97a]).

faisceau a été obtenu par la mesure de l'activation d'une feuille de carbone placée loin en amont de la cible. Comme on l'a réalisé plus tard, il y a eu quelques pertes de faisceau entre cette feuille et la cible. Ceci a eu pour conséquence une sous-estimation des valeurs de 30-50% [Ler99a]. Dans ce cas, les données expérimentales, présentées dans la Figure 2.1, devraient être multipliées par un facteur de 1.2-1.5. Par conséquent, la sous-estimation des données par les prévisions théoriques serait encore plus grande qu'elle ne l'est maintenant (voir la Figure 2.1).

Dans ce chapitre nous examinons des distributions en énergie des neutrons pro-

duits dans des réactions induites par deutérons sur une cible mince mesurées expérimentalement [Mar97a] et calculées en utilisant le système de code LAHET (LCS) [Pra89]. Dans [Rid99c] nous avons également suggéré une solution possible afin de résoudre les problèmes mentionnés ci-dessus, elle sera discutée en détails dans le prochain paragraphe.

Une autre caractéristique très importante des réactions de spallation est la nature des résidus lourds provenant des deux processus de spallation à hautes énergies et de fission. Ceci a également une conséquence sur l'émission des particules légères et détermine la radiotoxicité des déchets de réactions de spallation. La prévision de la production des radio-isotopes se fonde encore fortement sur des codes existants, et il est essentiel de comparer les résultats aux données expérimentales.

Une étude systématique sur les capacités prédictives des sections efficaces de production des nucléides résiduels par des protons d'énergie intermédiaire peut être obtenue à partir d'une comparaison récente de modèles et de codes internationaux pour un grand nombre de modèles et de codes [Mic97]. Cependant, une telle comparaison ne peut servir d'analyse détaillée pour un code particulier. Dans ce Chapitre nous comparons donc en détails les données expérimentales aux prévisions théoriques en utilisant le code LAHET (présenté dans le Chapitre précédent) afin d'examiner ses capacités prédictives.

## 2.2 Modèle de cascade intranucléaire

### 2.2.1 Production de nucléons dans le code LCS

En 1947 [Ser47a] Serber a proposé une image à deux étapes des réactions de spallation. Lors de la première étape (rapide) la particule incidente perd une partie de son énergie lors de collisions nucléon-nucléon. Dans la deuxième étape (lente), l'énergie d'excitation de la cible est libérée par évaporation. La composante des spectres de particules comprise entre la bosse d'évaporation et le pic quasi-in-élastique est alors dû aux collisions multiples de cette description. Dans le même travail Serber a également identifié plusieurs processus différents par lesquels des nucléons de grande énergie sont éjectés quand une cible est bombardée par des deutérons de haute énergie. D'abord, un deutéron passant même à de grande distance d'un noyau atomique peut être désagrégé par son champs coulombien [Dan47]. En second lieu, quand un deutéron frôle le bord du noyau, le proton peut interagir et être diffusé par le noyau, alors que le neutron continue avec approximativement la moitié de l'énergie du deutéron incident [Ser47a, Gla55]. Finalement, des ejectiles d'énergie élevé peuvent être produits par collision directe entre un des nucléons du deutéron et les nucléons de la cible [Ser47b]. L'importance des deux premiers processus provient principalement du fait que le deutéron est un système très peu lié, le proton et neutron passant beaucoup de leur temps en dehors de l'intervalle de leur interaction mutuelle.

Dans cette partie, en utilisant le code LCS [Pra89], nous considérons en détails uniquement la première étape (rapide), souvent référée comme une cascade intranucléaire (INC) (voir, par exemple, les Refs. [Ber63, Wat73, Cug87] pour plus de

détails).

En bref, l'INC traite du processus de collision nucléaire en tant que collisions binaires baryon-baryon, se produisant comme dans un espace libre. La cible est vue comme un support continu qui présente un parcours libre  $\lambda = (\rho\sigma)^{-1}$  en moyenne aux particules. Après avoir parcouru cette distance, on s'attend à ce que la particule diffuse sur un nucléon, qui rejoint le continuum. Les mouvements de Fermi des nucléons de la cible et du projectile, le principe de Pauli des collisions menant aux états déjà occupés, les collisions non élastiques et la production de pions, et les effets du champ moyen de la cible sont inclus. Ainsi les particules actives se propagent par petites étapes, et leurs collisions sont décrites stochastiquement. L'énergie, le moment, le nombre de baryons et la charge sont également conservés dans le code LCS (voir le Ref. [Pra89] pour plus de détails).

L'image est presque la même pour des deutérons, mais le projectile doit maintenant être construit en choisissant au hasard les coordonnées et le moment relatifs du neutron et du proton. Ceux-ci sont pris en tant que distributions gaussiennes, dont les largeurs sont conformes aux propriétés connues du deutéron. Le centre de la masse du projectile est alors affecté de la vitesse et du paramètre d'impact appropriés [Yar79, Yar81].

Pour des projectiles avec  $A=2$  (ou 3) le code LCS utilise la véritable énergie moyenne de liaison par nucléon. Pour des noyaux plus lourds il utilise l'énergie de liaison moyenne de protons et de neutrons [Pra98, Yar99]. Ainsi, en principe, la nature faiblement liée du deutéron,  $E_s=2.23\text{MeV}$ , est correctement prise en considération. Cependant, le problème principal avec les noyaux légers, pourrait être qu'aucune disposition spécifique aux isotopes n'est prise pour les distributions de densité nucléaire du projectile. Celles du projectile et de la cible sont décrites toutes deux en fonction d' $A$  qui est approprié seulement pour les masses plus lourdes [Pra98, Yar99]. Les particules de cascade, dans la région de superposition entre le projectile et la cible, sont suivies jusqu'à ce qu'elles quittent cette région - indépendamment de leur énergie cinétique. En dehors de la région de superposition, elles sont encore suivies soit jusqu'à ce qu'elles quittent le volume du projectile et de la cible, soit jusqu'à ce que leur énergie chute en-dessous d'une énergie d'échappement [Pra98, Yar99]. L'énergie de coupure du neutron est uniformément distribuée entre zéro et deux fois l'énergie de liaison moyenne. La barrière coulombienne est aléatoirement distribuée sous une forme simulant une probabilité de transmission de barrière coulombienne, le maximum de la barrière coulombienne et la coupure de neutron, est alors utilisée comme énergie de coupure de proton [Pra89].

Puisque le modèle d'INC traite seulement des réactions à deux corps, selon la superposition spatiale, un ou deux nucléons de projectile peuvent interagir avec un nucléon de la cible. Ainsi il y a une probabilité de « stripping » ou de « pickup » avec un deutéron. Toutefois il n'y a aucun mécanisme spécial inclus à l'état fondamental, et le projectile et la cible subissent habituellement une désintégration supplémentaire [Pra98, Yar99]. Ce n'est pas le cas pour la réaction de breakup élastique  $A(d,np)A_{g.s.}$  dans laquelle la dissociation du deutéron a lieu par l'intermédiaire du champ coulombien, laissant les noyaux de la cible dans l'état fondamental. Nous présentons brièvement notre traitement du processus de dissociation coulombienne

dans le paragraphe suivant.

### 2.2.2 Dissociation coulombienne élastique du deutéron

Pour le calcul des sections efficaces de la désintégration coulombienne du deutéron nous nous servons du modèle adiabatique proposé dans [Tos98a] et examiné entièrement dans [Tos98b]. Le modèle théorique utilisé suppose la seule approximation que les énergies relatives des neutrons et des protons excités par l'interaction coulombienne de la cible sont petites en comparaison de l'énergie incidente du deutéron - également désignée sous le nom de "sudden approximation". La théorie que nous vous présentons brièvement ci-dessous est entièrement quantique et également non perturbative [Tos98a, Tos98b].

Considérons la dissociation coulombienne d'un deutéron par un noyau de la cible de masse  $m_t$  et de la charge  $Z_t$ . Le projectile se compose d'un proton ( $m_p, Z_p = 1$ ) et d'un neutron ( $m_n, Z_n = 0$ ) liés par un potentiel  $V_{np}$ . Il est bien connu que le deutéron possède un unique état lié. Nous adoptons le système des coordonnées montré dans la Figure 2.2 et assumons seulement une interaction coulombienne  $V_{pt}$  entre le proton du deutéron et le noyau de la cible.

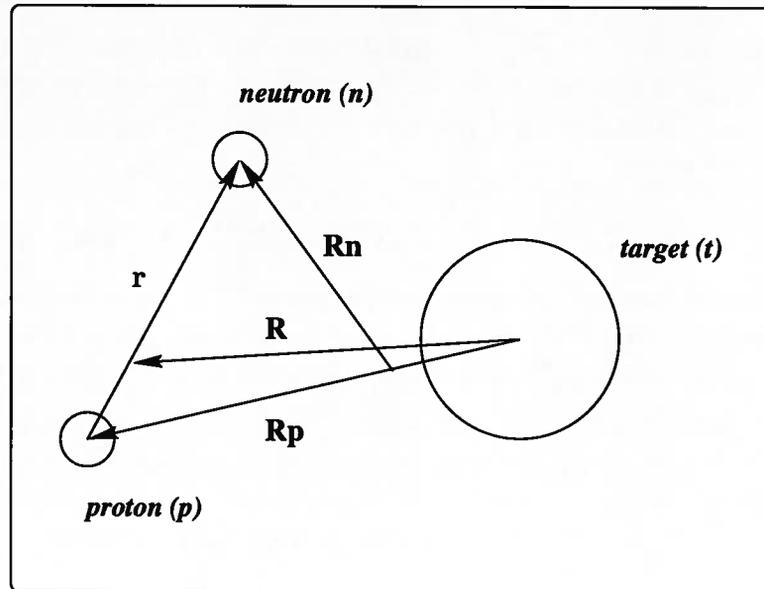


FIG. 2.2 - Définition du système des coordonnées adopté pour le proton (p), le neutron (n) et la cible (t), s.-t.-d. le système de trois corps comme de [Tos98b].

L'équation de Schrödinger satisfaite par la fonction d'onde de diffusion de ce système à trois corps (n+p+t) quand le deutéron est incident avec le moment  $\mathbf{k}_d$  dans le système C.M. est :

$$[T_{\mathbf{R}} + V_{pt}(\mathbf{R} - \gamma_{np}\mathbf{r}) + H_{np} - E]\Psi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = 0. \quad (2.1)$$

Ici  $H_{np} = T_{\mathbf{r}} + V_{np}(\mathbf{r})$  est l'hamiltonien interne pour le deutéron avec la coordonnée relative  $\mathbf{r}$ ,  $T_{\mathbf{r}}$  étant l'opérateur de mouvement cinétique relatif et  $V_{np}(\mathbf{r})$  son potentiel

de liaison. La quantité  $\mathbf{R}_p = \mathbf{R} - \gamma_{np}\mathbf{r}$  avec  $\gamma_{np} = m_n/(m_n + m_p)$  est la distance entre la cible et le proton (voir également la Figure 2.2). La fonction d'onde  $\Psi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{R})$  satisfait les conditions aux limites :

$$\Psi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \psi_0(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{R}} + \text{ondes sortantes}, \quad (2.2)$$

où, pour un deutéron avec un état lié unique, les ondes sortantes peuvent inclure seulement les voies élastiques et celles du breakup élastique. La fonction d'onde d'état fondamental de projectile  $\psi_0(\mathbf{r})$  satisfait l'équation suivante :

$$H_{np}\psi_0(\mathbf{r}) = -\epsilon_0\psi_0(\mathbf{r}). \quad (2.3)$$

L'étape essentielle dans l'analyse actuelle, comme nous l'avons déjà mentionné dans ce paragraphe, est de supposer que les configurations de breakup fortement couplées dans l'équation 2.1 à trois corps ont des énergies relatives proton-neutron  $\epsilon \ll E$ ,  $E$  étant l'énergie du deutéron incident. Le spectre des états de breakup sera défini par les propriétés de l'interaction coulombienne de longue portée  $V_{pt}$ , qui peut agir à plusieurs reprises, à un ordre supérieur, mais étant donné sa variation spatiale lente, les éléments de matrice  $V_{pt}$  favorisent le couplage avec des états proches en énergie. En supposant que  $\epsilon \ll E$ , peu d'erreur sera faite par la substitution dans l'Equation 2.1 de  $H_{np}$  par  $-\epsilon_0$ . Ceci garantira également que l'équation approximative à trois corps résultante satisfait les conditions limites correctes de la fonction d'onde incidente et que la voie élastique dominante a l'énergie correcte. Dans cette limite physique on a :

$$[T_{\mathbf{R}} + V_{pt}(\mathbf{R} - \gamma_{np}\mathbf{r}) - E_0]\bar{\Psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = 0, \quad (2.4)$$

où  $\mathbf{r}$  entre maintenant simplement comme paramètre,  $E_0 = E + \epsilon_0 = \hbar^2 k_d^2 / 2\mu_d$  est l'énergie cinétique incidente du C.M. avec  $\mu_d = m_d m_t / (m_d + m_t)$ . Maintenant, la solution la plus générale  $\bar{\Psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  de cette Equation 2.4 approximative à trois corps prend la forme du produit de la fonction  $F(\mathbf{r})\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{R})$ . Dans le contexte présent  $\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  est une fonction d'onde perturbée coulombienne tridimensionnelle et décrit la diffusion du projectile de masse  $\mu_d$ , considéré comme point, par l'interaction coulombienne  $V_{pt}$ , c.-à-d.  $\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  satisfait l'équation de Schrödinger suivante :

$$[T_{\mathbf{R}} + V_{pt}(\mathbf{R}) - E_0]\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{R}) = 0. \quad (2.5)$$

Le facteur de forme  $F(\mathbf{r})$  définit la séparation proton-neutron et doit être choisi de sorte que la solution particulière  $\bar{\Psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)} = F(\mathbf{r})\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{R})$  satisfasse les conditions limites incidentes données par l'équation 2.2 aussi bien que par l'équation 2.4. Dans [Joh97] on montre qu'une solution exacte à l'équation 2.4 est donnée par

$$\bar{\Psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \psi_0(\mathbf{r})e^{i\gamma_{np}\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}}\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{R}_p), \quad (2.6)$$

qui comprend des composantes de breakup par sa dépendance complexe à  $\mathbf{r}$ , dans  $\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  et dans l'exponentiel  $e^{i\gamma_{np}\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}}$ . Nous notons que maintenant  $\chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  est évalué à

la coordonnée  $\mathbf{R}_p$ , position de proton. Dans la dissociation coulombienne, le fait que l'interaction coulombienne agisse sur le proton chargé, et non pas au C.M. du deutéron, est absolument critique et exige la considération soigneuse des déviations de  $\mathbf{R}_p$  par rapport à  $\mathbf{R}$  [Tos98b].

L'approximation de l'amplitude de transition de dissociation coulombienne, de l'état initial de projectile  $\mathbf{k}_d$  à l'état final avec un proton d'impulsion  $\mathbf{k}_p$  et un neutron d'impulsion  $\mathbf{k}_n$  dans le système C.M. doit donc utiliser  $\bar{\psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  comme approximation de  $\psi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  dans l'amplitude exacte de dissociation

$$T(\mathbf{k}_p, \mathbf{k}_n, \mathbf{k}_d) = \int d\mathbf{R} \int d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{R}_n} \chi_{\mathbf{k}_p}^{(-)*}(\mathbf{R}_p) V_{np}(\mathbf{r}) \Psi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{R}), \quad (2.7)$$

où  $\chi_{\mathbf{k}_p}^{(-)*}$  est une fonction d'onde perturbée coulombienne d'entrée pour le fragment de proton. En raison de  $V_{np}$ , les intégrales de l'équation 2.7 impliquent seulement un petit  $|\mathbf{r}|$  et n'exigent pas la fonction d'onde à trois corps dans les régions où la fonction d'onde approximative  $\bar{\psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  peut être imprécise. En opérant la substitution de  $\psi_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  par  $\bar{\psi}_{\mathbf{k}_d}^{(+)}$  ainsi qu'un changement de variable d'intégration de  $\mathbf{R}$  à  $\mathbf{R}_p$  et en notant que  $\mathbf{R}_n = \gamma_{tp}\mathbf{R} + \mathbf{r}$ , avec  $\gamma_{tp} = m_t/(m_t + m_p)$ , l'amplitude de dissociation se factorise exactement [Tos98b] comme

$$T(\mathbf{k}_p, \mathbf{k}_n, \mathbf{k}_d) = \langle \mathbf{P}_n | V_{np} | \psi_0 \rangle \langle \mathbf{Q}_n, \chi_{\mathbf{k}_p}^{(-)} | \chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)} \rangle, \quad (2.8)$$

où  $\mathbf{P}_n = k_n d e - \gamma_{np} \mathbf{k}_d$  et  $\mathbf{Q}_n = \gamma_{tp} \mathbf{k}_n$ .

La superposition des trois fonctions du continuum  $\langle \mathbf{Q}_n, \chi_{\mathbf{k}_p}^{(-)} | \chi_{\mathbf{k}_d}^{(+)} \rangle$  peut être évaluée de façon similaire en termes d'intégrales de bremsstrahlung [Bau72]. La fonction vertex du deutéron  $\langle \mathbf{P}_n | V_{np} | \psi_0 \rangle$  est également simplement évaluée par un modèle de structure du deutéron.

Par conséquent, sans autres approximations, l'équation 2.8 inclut entièrement un traitement de l'intervalle fini de l'interaction neutron-proton  $V_{np}$  et des contributions de dissociation coulombienne de tous les multipoles et de tous les moments angulaires relatifs entre le neutron et le proton. La description de l'intervalle fini de Hulthén est prise de [Bau72]. Les calculs théoriques sont entièrement sans paramètres libres.

L'avantage de ce modèle, dans le contexte actuel, est qu'il mène à une expression très proche de l'amplitude quantique de transition de dissociation coulombienne qui peut être calculée de façon très efficace. Avec ces calculs, il a été obtenu [Tos98a, Tos98b] un très bon accord quantitatif avec les données expérimentales [Oka98] pour la dissociation élastique du deutéron, à 56MeV, 140MeV et 270MeV, mesurées dans une géométrie d'angles très vers l'avant, où l'on s'attend à ce que le mécanisme de dissociation coulombienne soit dominant. L'accord avec l'expérience est satisfaisant quels que soient les énergies de sortie des protons et pour des cibles de  $^{12}\text{C}$  à  $^{208}\text{Pb}$  comme représenté dans la Figure 2.3. Les erreurs notées dans la Figure 2.3 sont uniquement statistiques. Les lignes solides montrent les sections efficaces de la dissociation élastique coulombienne du deutéron, en fonction de l'énergie de proton détecté. Dans l'ensemble, les résultats sont conformes à une image dans laquelle la dissociation coulombienne est le mécanisme dominant. Il y a, cependant,

des indications d'une contribution manquante qui peut interférer, en particulier pour les cibles légères, provenant probablement de plus petites contributions nucléaires de breakup élastique qui n'ont pas été prises en considération ici.

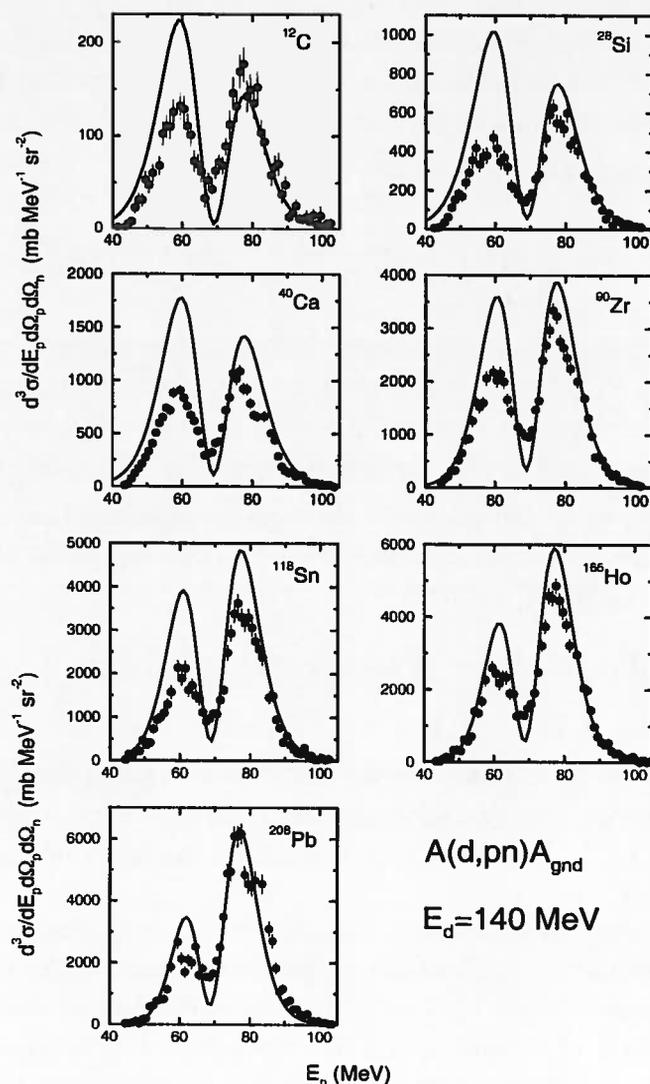


FIG. 2.3 – Les sections efficaces différentielles triples expérimentales ainsi calculées pour la dissociation coulombienne du deutéron de  $140\text{MeV}$  à  $\theta_p = \theta_n = 0^\circ$  dans le système du laboratoire (de [Tos98b]).

Puisque le modèle de dissociation coulombienne examiné ci-dessus calcule la section efficace triple différentielle élémentaire, par rapport aux deux angles solides des nucléons et par rapport à l'énergie d'un des nucléons, par la suite ces sections efficaces différentielles triples doivent être intégrées sur les angles du neutron et/ou du proton et/ou sur l'énergie correspondante pour les comparer avec des données plus inclusives. Clairement, aux grands angles des nucléons émergents, les sections efficaces seront également affectées par des déformations nucléaires. Les parties nucléaires des interactions seront prises en considération par le code LCS standard et

seront traitées dans le prochain paragraphe. Avec le modèle présenté ci-dessus nous calculons les sections efficaces supplémentaires pour la dissociation coulombienne pure en l'absence des interactions nucléaires et en cinématique non-relativiste.

### 2.2.3 Production de nucléons induites par deutérons aux angles vers l'avant

Les neutrons et les protons provenant du processus de dissociation coulombienne élastique  $A(d,np)A_{g.s.}$  sont éjectés dans une région angulaire et d'énergie fortement confinée, c.-à-d. aux angles très vers l'avant et approximativement avec la moitié d'énergie incidente du deutéron. Par conséquent, pour étudier l'importance de ce processus dans le LCS, nous comparons les spectres en énergie des neutrons calculés et mesurés à zéro degré. L'expérience [Mar97a] a été réalisée au synchrotron du Laboratoire National Saturne (LNS). La structure en temps du faisceau fourni par le synchrotron n'a pas permis des mesures conventionnelles du temps de vol (TOF), ainsi, les spectres en énergie des neutrons ont été mesurés en utilisant deux techniques différentes, décrites en détail dans [Bor97, Mar97b]. Les neutrons de basse énergie ( $E_n \leq 400\text{MeV}$ ; représenté par des diamants dans les figures suivantes) ont été mesurés en utilisant le TOF entre les particules du faisceau et les neutrons détectés dans un scintillateur épais liquide. Les neutrons de haute énergie ( $E_n \geq 200\text{MeV}$ ; représenté par des carrés dans les figures suivantes) ont été mesurés avec un convertisseur d'hydrogène liquide, c.-à-d. par l'intermédiaire de la diffusion (n,p), et d'un spectromètre magnétique. Il est à noter que les deux techniques expérimentales sont indépendantes et, dans l'intervalle 200-400MeV où elles se superposent, elles sont en accord à 20%.

Les Figures 2.4 et 2.5 représentent les spectres en énergie des neutrons à zéro degrés dans le système du laboratoire, avec un faisceau de deutérons de 1200MeV interagissant avec des cibles de Pb et de Fe. Dans le cas de la cible de Pb (voir la Figure 2.4 et sa partie inférieure en particulier), au niveau du pic vers 600MeV de la distribution en énergie 600MeV, la section efficace coulombienne (d,np) calculée (courbe pointillée) et la section efficace donnée par LAHET (étoiles) ont une amplitude très semblable. Le pic mesuré expérimentalement est d'environ un facteur deux fois plus grand (carrés). Nous rappelons au lecteur que dans le cas du modèle d'INC de Cugnon ce pic a été sous estimé par presque un facteur 10 comme le montre la Figure 2.1. En additionnant les termes de dissociation coulombienne à LAHET, on obtient (courbe pleine) un excellent accord avec les données expérimentales (carrés et des diamants), et ceci à la fois pour les neutrons de basse et haute énergie. Dans le cas de la cible de Fe (voir la Figure 2.5 et sa partie inférieure en particulier) la section efficace de désintégration élastique coulombienne est naturellement plus petite, en raison de la charge plus petite de la cible, et la contribution de LAHET (les étoiles) seule donne une description raisonnable des données. Finalement, nous notons que les points expérimentaux sont légèrement décalés à l'énergie inférieure (voir les parties inférieures des Figures 2.4 et 2.5 en particulier) puisqu'ils ne sont pas corrigés par rapport aux pertes d'énergie du deutéron et des nucléons à l'intérieur

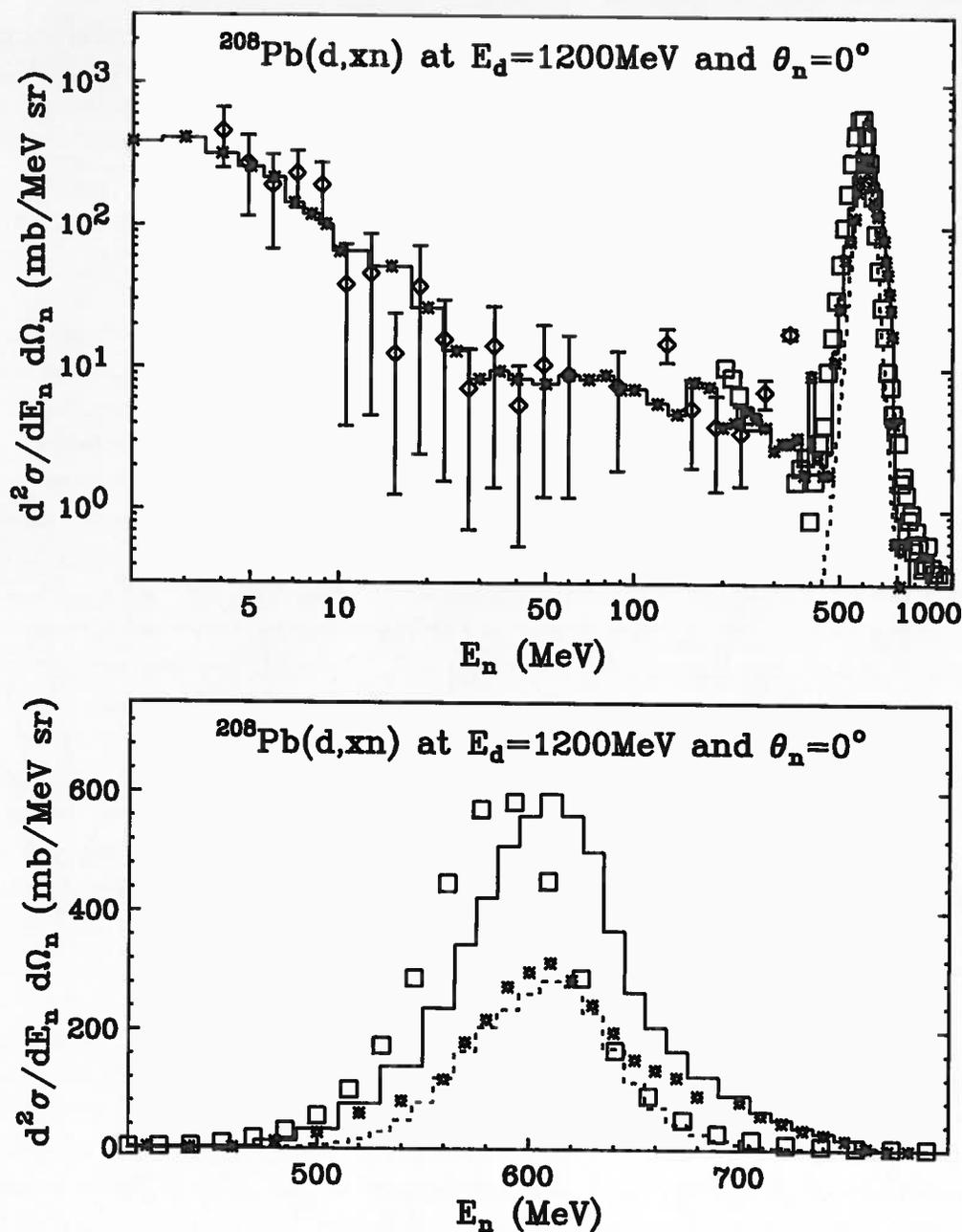


FIG. 2.4 – Distribution en énergie de neutrons à zéro degré dans le système du laboratoire pour les deutérons de 1200MeV interagissant avec une cible de plomb (partie supérieure) ainsi que son pic caractéristique pour de grandes énergies des neutrons émis (partie inférieure) dans une échelle linéaire. Les étoiles et les lignes pointillées représentent les distributions de la production de neutrons calculée avec le code LCS et la production de neutrons calculée à partir de la dissociation coulombienne du deuteron, laissant le noyau de cible dans son état fondamental. La ligne solide est la somme des contributions coulombienne et LCS. Les données expérimentales (des carrés et des diamants) sont de [Mar97a].

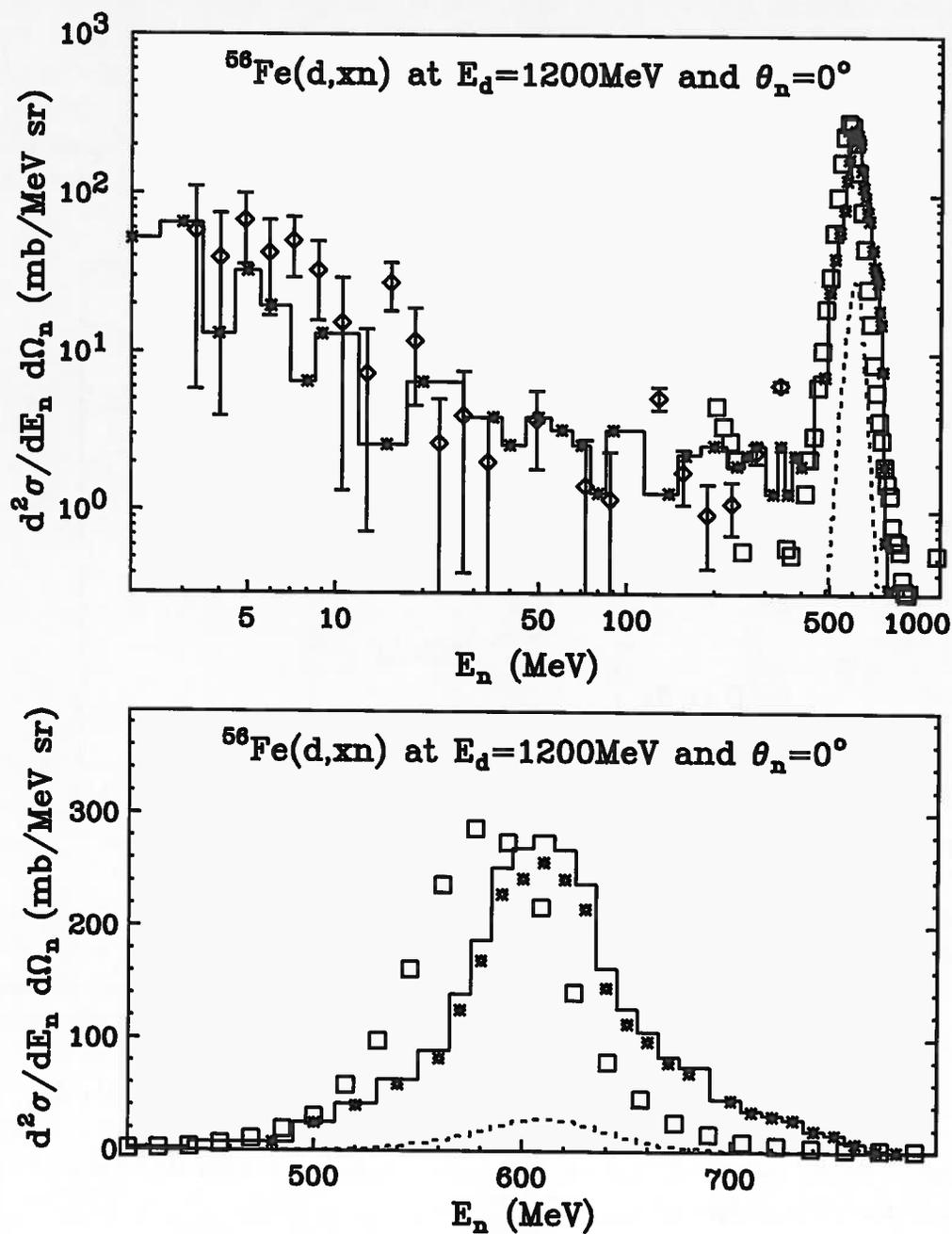


FIG. 2.5 – Comme dans la Figure 2.4 mais pour les deutérons de 1200 MeV interagissant avec la cible de fer.

de la cible [Mar97a].

Afin de clarifier jusqu'à quels angles la dissociation coulombienne du deuteron est importante pour le calcul du taux de production total de neutrons, dans la Figure 2.6 nous traçons des spectres angulaires de neutrons pour les mêmes énergies de deutérons et les mêmes cibles que ci-dessus. La dissociation coulombienne (ligne pointillée) pour la cible de Pb (deux courbes supérieures) donne une contribution comparable à celle de LAHET (en trait plein) pour des angles de  $0^\circ$ - $8^\circ$  dans le système du laboratoire. Comme prévu, pour la cible de Fe (deux courbes inférieures),

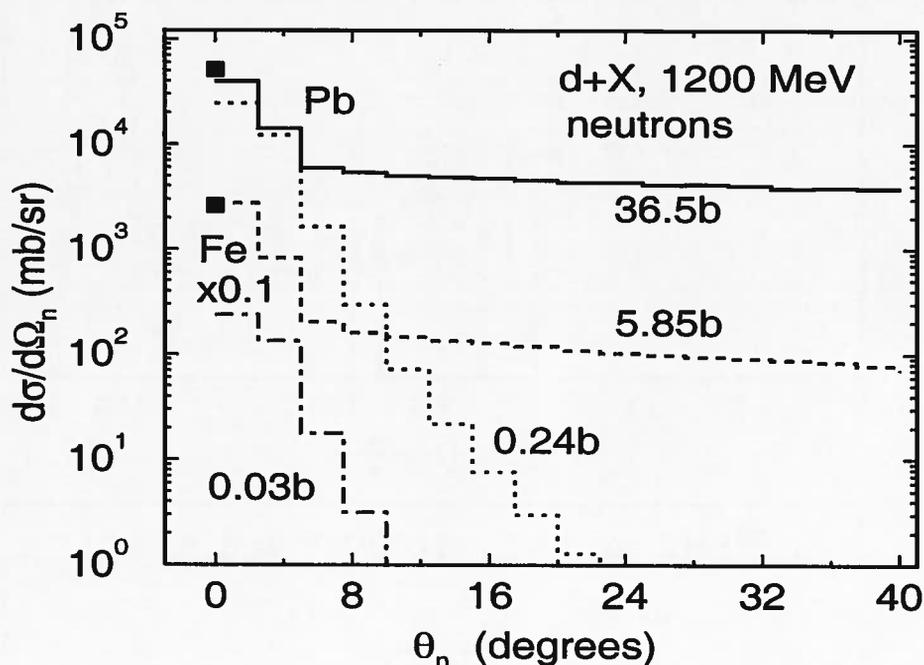


FIG. 2.6 – Les sections efficaces de neutrons intégrés en énergie pour des deutérons de 1200MeV interagissant avec une cible de Pb (deux courbes supérieures) et une cible de Fe (deux courbes inférieures, multipliées par 0.1). Les courbes pleines et à tiret représentent les distributions de la production de neutrons totale calculée avec le code LCS. Les courbes pointillées et point-à tiret montrent les distributions de la production de neutrons à partir de la dissociation coulombienne du deuteron, laissant le noyau de la cible dans son état fondamental. Les données expérimentales (carrées) sont de [Mar97a]. Les sections efficaces de production de neutrons totale sont données dans chaque cas.

déjà à  $0^\circ$ , le calcul de LAHET (en ligne pleine) donne un bon accord avec l'expérience et la contribution de la dissociation coulombienne (ligne point-tiret) est d'importance mineure. Pour les cibles de Fe et de Pb, il est à noter que la section efficace de production de neutrons totale  $\sigma(\text{lahet})$ , estimée en utilisant le code LCS, est plus grande de 2 ordres de grandeur que la section efficace de dissociation élastique coulombienne de deuteron intégrée  $\sigma(\text{n-elastic})$ . Les valeurs sont donnés explicitement dans la Figure 2.6. Ceci souligne la nature très localisée, dans l'intervalle angulaire et d'énergie, de la contribution coulombienne.

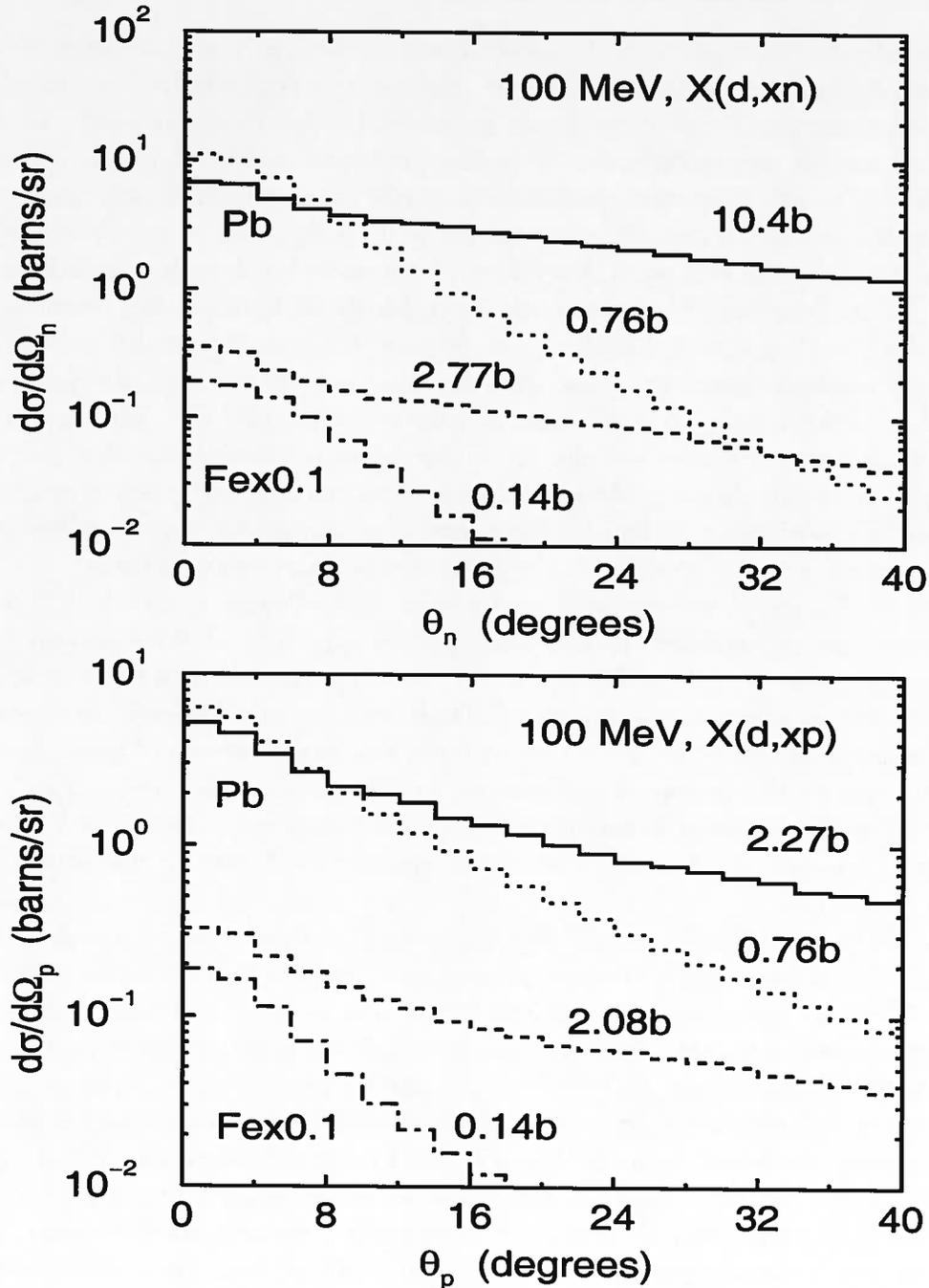


FIG. 2.7 – Les sections efficaces de neutrons (partie supérieure) et de protons (partie inférieure) intégrés en énergie pour des deutérons de 100MeV interagissant avec une cible de Pb (deux courbes supérieures) et une cible de Fe (deux courbes inférieures, multipliées par 0.1). Les courbes pleines et à tiret représentent les distributions de la production de neutrons et de protons totales calculées avec le code LCS. Les courbes pointillées et point-à-tiret montrent les distributions de la production de neutrons et protons à partir de la dissociation coulombienne du deutéron, laissant le noyau de cible dans son état fondamental. Les sections efficaces de production totale des neutrons sont données dans chaque cas.

En l'absence de données, la discussion ci-dessus devient plus qualitative quand on abaisse l'énergie des deutérons incidents, et lorsqu'on compare les sections efficaces pour la production de protons d'une façon semblable. Premièrement, nos calculs prouvent que les sections efficaces de production de neutrons et protons à partir des réactions  $(d, xn)$  et  $(d, xp)$  diminuent avec l'énergie des deutérons tandis que la section efficace de dissociation coulombienne intégrée  $A(d, np)A_{g.s.}$  augmente. Ceci indiquerait que ce dernier processus est relativement plus important dans la production totale de nucléons. Deuxièmement, aux énergies incidentes inférieures, les neutrons et les protons de la désintégration de deutéron ont une plus grande probabilité de subir des collisions multiples avant de quitter la cible, qui est maintenant moins transparente. Les distributions angulaires des nucléons émis deviennent ainsi plus larges (pour des protons en particulier à cause de l'interaction coulombienne). Ce phénomène est très important du point de vue expérimental puisque les mesures des spectres en énergie des protons deviennent beaucoup plus compliquées aux angles très vers l'avant (comme étudié dans la Partie 2 (Expérimentale) de cette thèse).

Dans la Figure 2.7 nous présentons des résultats analogues à ceux de la Figure 2.6. Des distributions angulaires de neutrons (parties supérieures) et de protons (parties inférieures), pour des cibles de Fe et de Pb, aux énergies des deutérons incidents de 100MeV sont montrés dans la Figure 2.7. Dans cet intervalle d'énergie, la dissociation coulombienne du deutéron devient importante aux angles très vers l'avant également pour la cible de Fe (comparez les lignes en tiret et en point- et -tiret). D'autre part, ce processus contribue pour moins de 5% pour les neutrons et moins de 7% pour les protons, comparé aux sections efficaces de production totale de nucléons estimées par le code LCS.

Dans le cas d'une cible lourde (Pb), cependant, la dissociation coulombienne peut dominer aux angles très vers l'avant, le montre la Figure 2.7. D'ailleurs, elle contribue entre 7% (dans le cas des neutrons) et 34% (dans le cas des protons) aux sections efficaces correspondantes de production totale de nucléons calculées en utilisant le code LCS. La discussion ci-dessus, et en particulier le dernier exemple, suggère que les sections efficaces significatives de la dissociation coulombienne élastique du deutéron sur des cibles de métal lourd ( $Z \gtrsim 26$ ) pourraient être absentes du modèle du code LCS. Par conséquent, des données de bonne qualité sur la production de nucléons aux angles vers l'avant dans l'intervalle d'énergie des deutérons de 100-200MeV sont nécessaires pour confirmer nos estimations. Nous étudierons ce nouveau type de données ainsi que les calculs de LCS dans la Partie 2 (Expérimentale) de cette thèse. D'un autre côté, le modèle d'INC ISABEL et le modèle d'EVAP du code LCS semblent bien décrire les spectres de neutrons dans la région de basse énergie.

## 2.3 Production des isotopes

Il est à noter que le modèle d'INC/EVAP a été créé pour des applications du type générateur de particules pour des codes de transport de haute énergie. Néanmoins, il a l'avantage de conserver l'énergie, le moment, la charge et le nombre de baryons même dans le cas des noyaux résiduels. Bien que l'on puisse se demander si les

calculs de cascade intranucléaire donnent des prévisions précises pour des énergies de particules incidentes inférieures à 100MeV, certains aspects de la production d'isotopes peuvent être compris, au moins qualitativement, en termes de cascade nucléaire prompte suivie par l'évaporation de particules.

Dans nos calculs du taux de production d'isotopes [Rid98b], nous avons exploré deux modèles d'INC : "isabel" [Yar79, Yar81] et "bertini" [Ber63, Ber69]. L'option donnée "par défaut" représente le modèle de fission-évaporation de RAL [Atc80], tandis que dans les autres cas, le modèle de fission-évaporation de ORNL [Bar81] est utilisé. Ce choix du modèle de pré-équilibre à plusieurs étapes (MPM) [Pra88] est défini par une carte d'entrée d'"ipreq" (comme nous allons l'expliquer ci-dessous).

Les sections efficaces observées pour la production des noyaux de Rb et de Cs à partir des réactions induites par protons de 50MeV [Tra72] et de 156MeV [Cha70] sur une cible mince d' $^{238}\text{U}$  sont tracées dans les Figures 2.8-2.10 avec les calculs correspondants aux divers modèles. Nous avons constaté que le code de LAHET peut décrire raisonnablement les tendances des données observées et ceci à la fois en valeurs absolues et en distributions isotopiques [Rid98b, Rid99f]. Assez étonnamment, les prévisions sont tout à fait bonnes même avec des protons incidents de 50MeV. Cependant, nous voudrions faire remarquer que le modèle de fission doit être choisi très soigneusement. Le modèle de fission ORNL, qui a une probabilité de fission différente de zéro uniquement pour les noyaux résiduels (après l'étape d'INC) avec  $Z \geq 91$ , est vivement recommandé dans le cas de la cible d'uranium. Le modèle de fission RAL, donné "par défaut" comme entrée dans le code LAHET, donne des distributions isotopiques trop larges pour tous les cas considérés ; il sous-estime (d'un facteur de 2-4) les sections efficaces près du pic de la distribution mais surestime ceux sur les côtés (d'un facteur de 10-100). La fission d'uranium dépend des sous-programmes de fission de subactinides dans le modèle de RAL, qui sont beaucoup moins fiables que le traitement de fission d'actinides dans l'ORNL.

Dans tous les cas, le choix du modèle d'INC ("bertini" ou "isabel") n'affecte pas considérablement les sections efficaces calculées, et il est plutôt difficile de dire quel est le plus précis à cet égard (voir les courbes dans les Figures 2.8-2.9). Nous choisirons le modèle "isabel" plus tard puisqu'il permet également d'utiliser des deutérons comme projectiles incidents. Une remarque doit être faite au sujet de l'option du modèle de pré-équilibre (MPM). On s'attend à ce que le modèle de pré-équilibre fournisse la perte de charge et d'énergie d'excitation avant que le modèle de fission ne soit appelé et réduise la probabilité de fission à des énergies plus élevées. Cet effet est clairement observé si on compare les trois courbes avec "ipreq=1" (le MPM continue de l'état final de l'INC), avec "ipreq=0" (le MPM n'est pas utilisé), et avec "ipreq=3" (le MPM procède à partir du noyau composé constitué par absorption et l'INC est employé pour déterminer seulement qu'une interaction s'est produite). Au cas où le MPM n'est pas utilisé, la production des isotopes déficients en neutrons est augmentée et un meilleur accord global avec des données est obtenu. Cependant, il s'avère que les isotopes plus déficients en neutrons sont produits réellement avec de plus grandes probabilités que prévu pour les deux énergies.

On observe la même tendance après des calculs des distributions isotopiques de Rb d'une cible épaisse de Nb avec les protons 600MeV comme le montre la Fi-

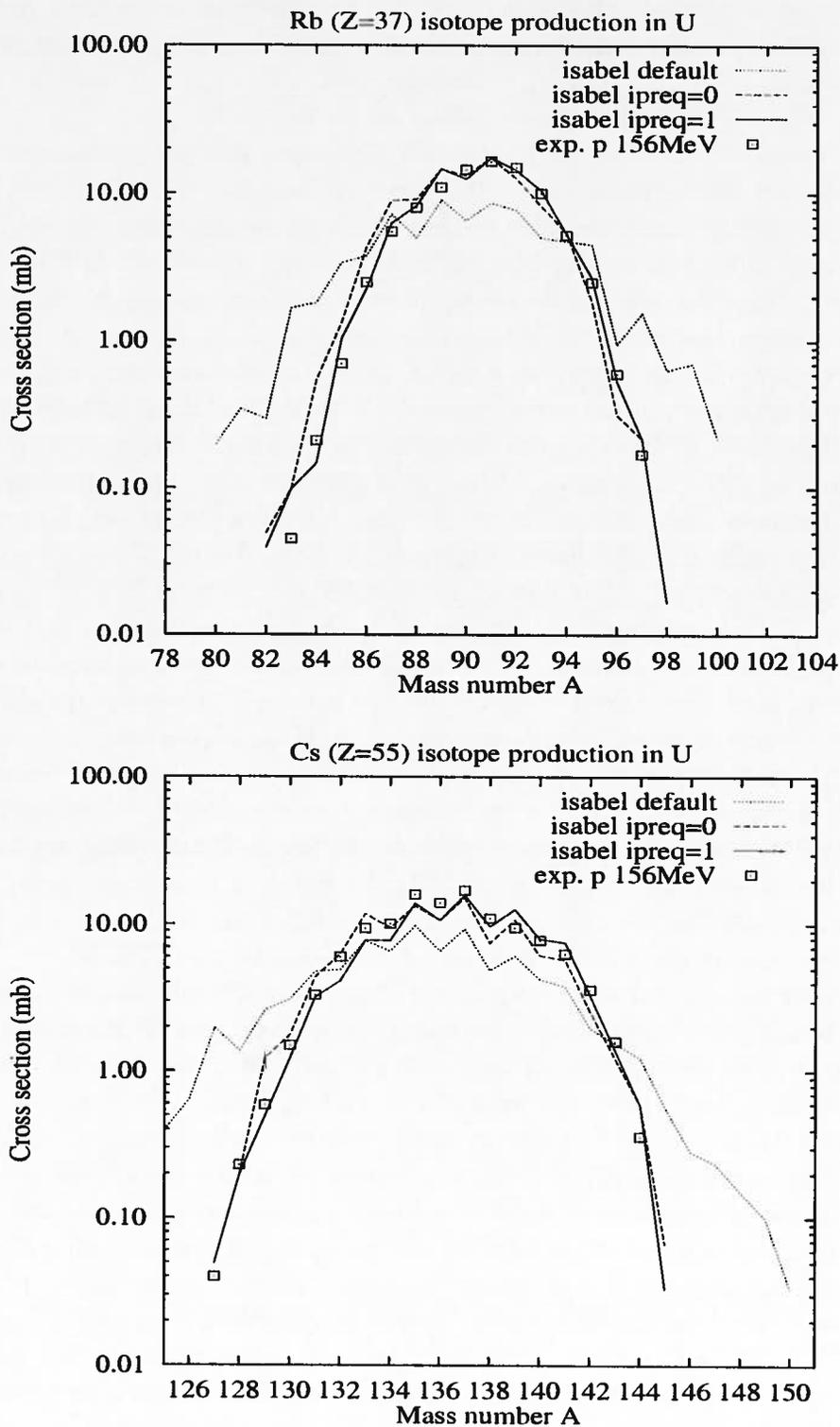


FIG. 2.8 – Les distributions isotopiques de Rb et de Cs dans le système de  $p(156\text{MeV}) + {}^{238}\text{U}$  avec le modèle d'INC ISABEL.

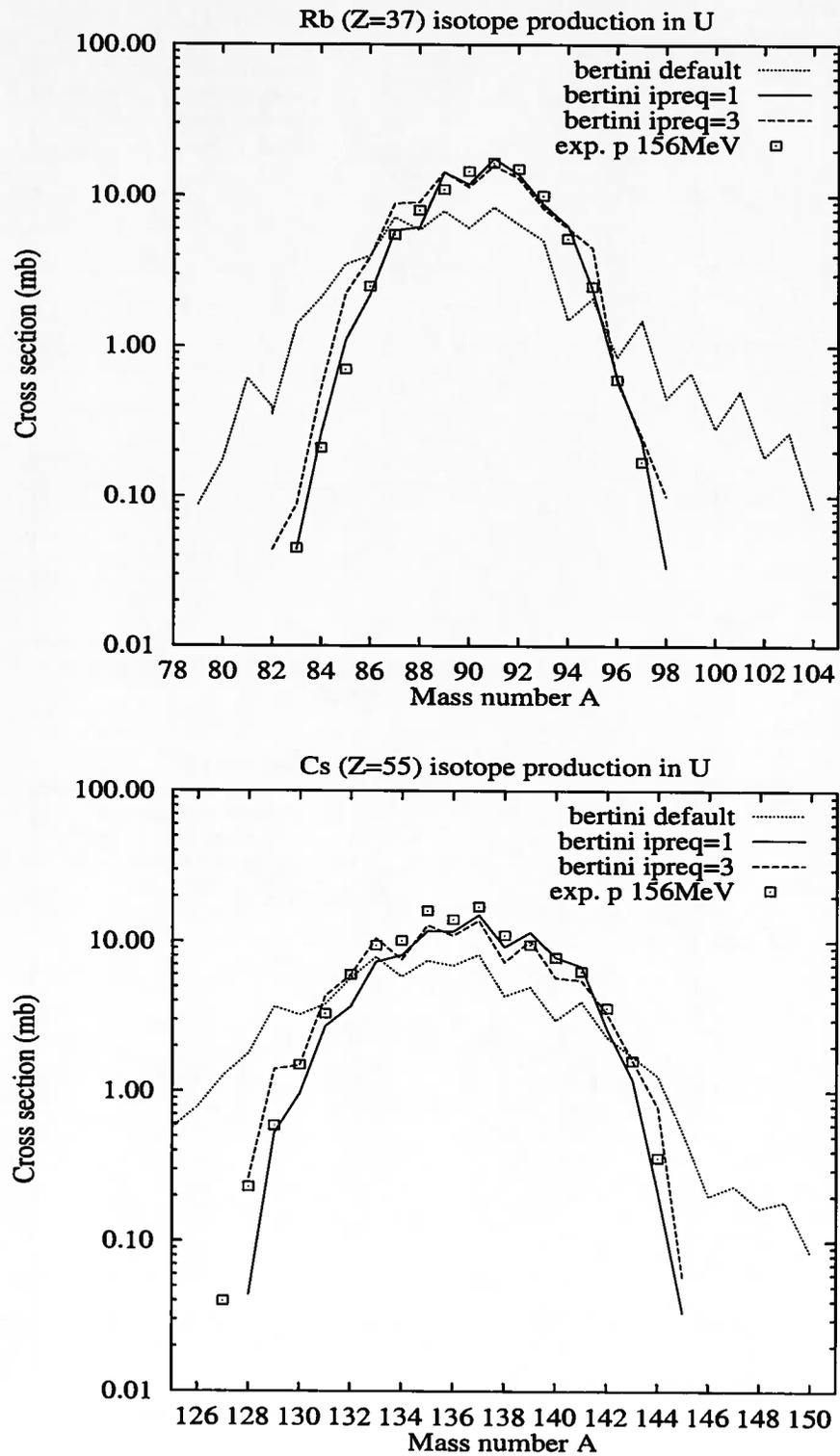


FIG. 2.9 – Les distributions isotopiques de Rb et de Cs dans le système de  $p(156\text{MeV})+^{238}\text{U}$  avec le modèle d'INC BERTINI.

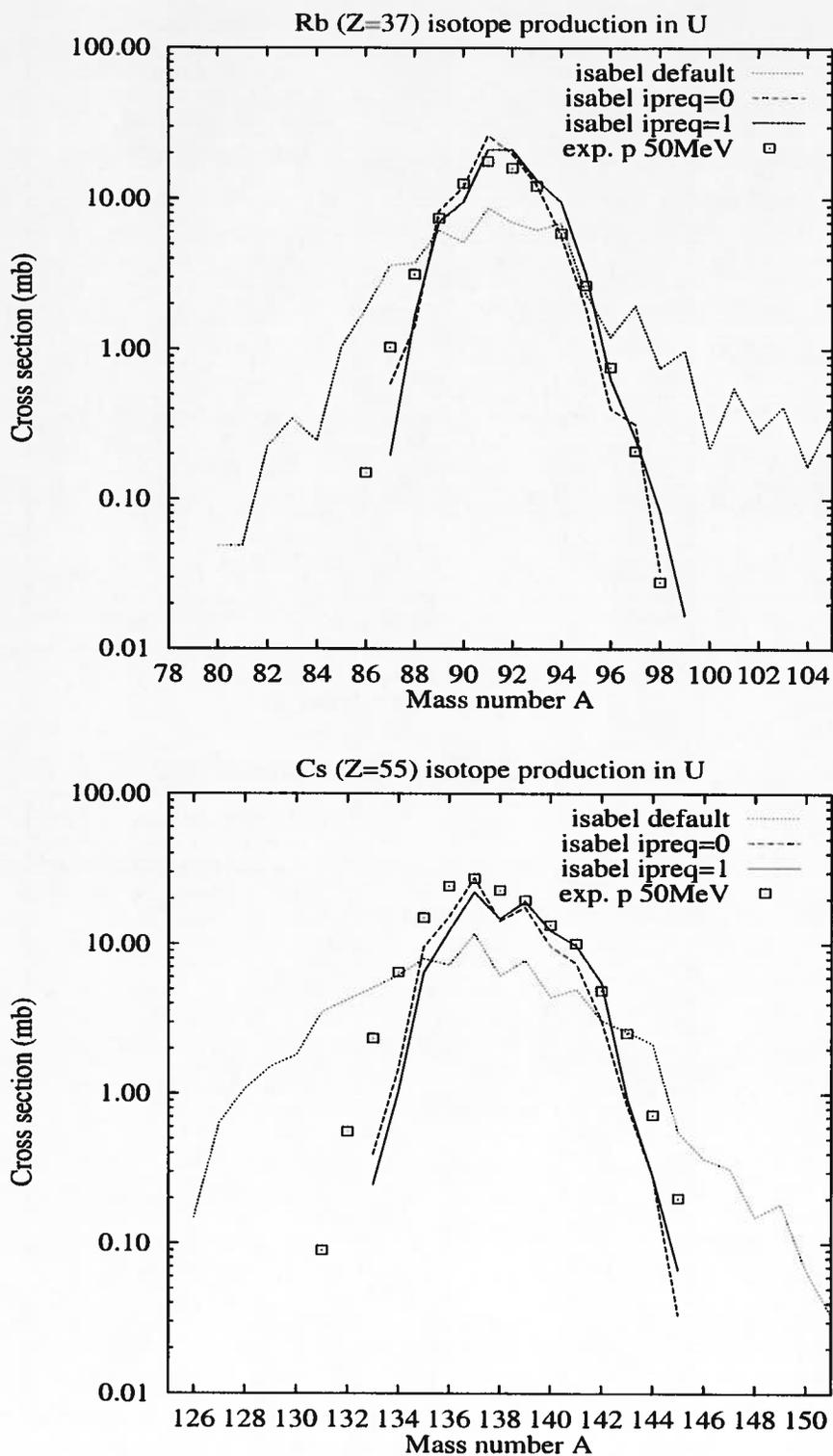


FIG. 2.10 – Les distributions isotopiques de Rb et de Cs dans le système de  $p(50\text{MeV})+^{238}\text{U}$  avec le modèle d'INC ISABEL.

gure 2.11. Puisque LAHET est un code Monte Carlo, une bonne précision statistique a été réalisée avec le temps de machine disponible uniquement pour une production  $\geq 10^8$  (atoms/s  $\mu$ A p); de plus petits rendements existent au delà de cette limite et peuvent être estimés à partir de l'extrapolation des valeurs calculées. Cependant, pour le cas où la très faible production dans les ailes de la distribution est de grande importance, seules des valeurs expérimentales devraient être utilisées à l'heure actuelle. À notre avis, aucun modèle ou extrapolation ne donnera actuellement des valeurs fiables si la production descend, par exemple, de plus de trois ordres de grandeur par rapport au maximum.

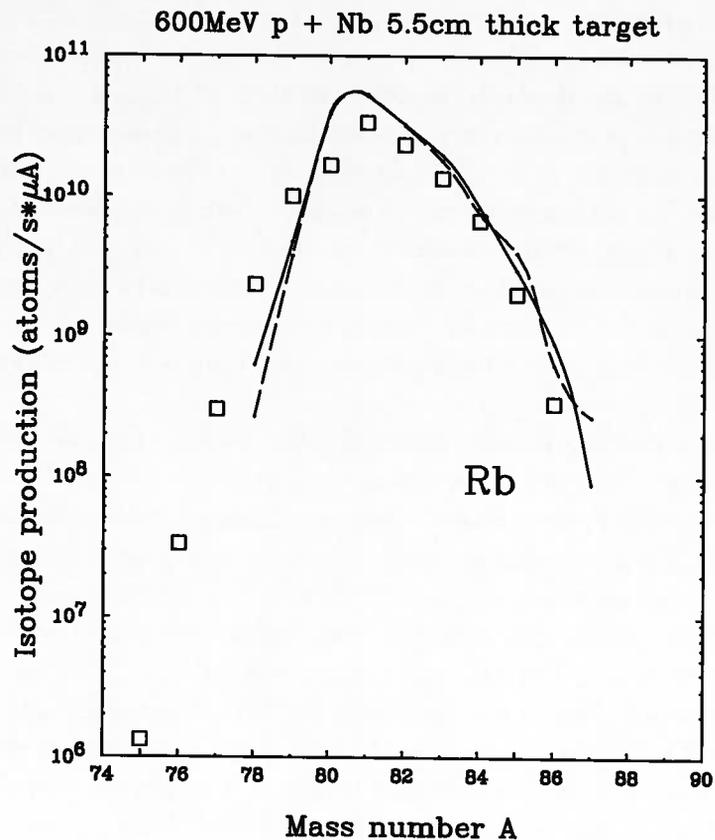


FIG. 2.11 – La comparaison de la production des isotopes de Rb mesurés [Rav94] et évalués pour les protons de 600MeV interagissant avec une cible épaisse (5.5cm) de Nb. La courbe à tiret correspond aux options "défaut" pour la cascade intranucléaire ISABEL sans modèle de pré-équilibre (MPM), alors que la courbe pleine représente les calculs de modèle d'INC ISABEL avec MPM.

## 2.4 Conclusion

Dans [Rid99c] nous avons présenté une brève étude des calculs de production de nucléons pour des réactions induites par deutéron dans l'intervalle de 100-1200

MeV. Nous avons prouvé qu'un pic étroit caractéristique dans la distribution d'énergie pour des nucléons émis avec des grandes énergies, observé clairement dans les données à zéro degré, n'est pas correctement reproduite par des calculs utilisant le système de code LAHET (LCS) dans le cas des cibles de métal lourd. A notre avis dans le LCS la dissociation coulombienne du deutéron incident n'est pas prise en considération correctement, et ce processus augmente le rendement de nucléons de haute énergie aux angles très vers l'avant. En ajoutant la section efficace de dissociation coulombienne à celle calculée utilisant le LCS, nous obtenons un excellent accord avec les données disponibles pour tout le spectre en énergie des neutrons émis.

Nous estimons que la dissociation coulombienne contribue jusqu'à 7% de la section efficace dans le cas de la production de neutrons et jusqu'à 34% dans le cas de la production de protons, selon la cible et l'énergie du deutéron incident. Pour confirmer ces prévisions et pour clarifier jusqu'à quels angles le processus est important pour des calculs de la production de nucléons totale, des données de l'angle vers l'avant de bonne qualité sont nécessaires. Nous notons séparément que les prévisions fiables de ces nucléons de haute énergie et piqués aux petits angles sont extrêmement importantes pour les problèmes associées à la radioprotection, des évaluations de la fatigue des matériaux à cause de l'irradiation ainsi que pour certaines applications où des sources de neutrons non-isotropiques sont utilisées dans des géométries compactes.

Dans [Rid98b, Rid99e, Rid99f] nous avons examiné le code LCS pour la production des isotopes de réactions induites par protons sur la cible d'U mince et la cible de Nb épaisse dans la région d'énergie de 50-600MeV. Nous concluons que le code LAHET donne un accord raisonnable avec les tendances des données, observées avec les valeurs absolues et avec les distributions isotopiques. Cependant, nous devons noter que le modèle de fission doit être choisi très soigneusement. Le modèle de fission ORNL, qui a une probabilité différente de zéro de fission seulement pour les noyaux résiduels avec  $Z \geq 91$ , est vivement recommandé dans le cas de la cible d'uranium. Le modèle de fission de RAL, donné comme un "défaut" dans l'entrée de LCS, donne des distributions isotopiques trop larges pour tous les cas considérés; il sous-estime (d'un facteur de 2-4) les sections efficaces près du pic de la distribution mais surestime celles dans les ailes (d'un facteur de 10-100). La fission d'uranium dépend des sous-programmes de fission de subactinide dans le modèle de RAL, qui sont beaucoup moins fiables que le traitement de fission d'actinides dans l'ORNL. Ces conclusions sont valables également pour des réactions induites par neutrons dans la même région d'énergie et pour les cibles fissibles avec  $Z \geq 91$ . Dans tous les cas considérés [Rid98b, Rid99f], le choix du modèle d'INC ("bertini" ou "isabel") [Pra89] ou le choix du modèle de pré-équilibre (MPM) ("ipreq=0 ou ipreq=1") [Pra89] n'a pas affecté considérablement les sections efficaces calculées, et il est plutôt difficile de dire quelle est le choix le plus favorable à cet égard.

Nous devons de plus ajouter à ce sujet que dans les deux [Con95] et [Ric98], où le LCS a été utilisé pour les calculs de la production d'isotopes, le modèle de fission de RAL par défaut a été utilisé dans le cas des cibles d'uranium minces et épaisses. Par conséquent, les prévisions présentées dans ces rapports ont été sous-estimées d'un

facteur 2-4 près du maximum de la distribution et surestimées dans les ailes d'un facteur 10-100. Ceci, naturellement, a conduit les auteurs à quelques conclusions erronées. De même, les utilisateurs du système de code FLUKA [Fas93] ont utilisé le modèle de fission RAL par défaut pour des interactions des protons et neutrons avec des matériaux avec  $Z \geq 91$ , et exactement la même erreur que ci-dessus peut être notée dans certaines évaluations des fragments de fission d'énergie élevée, par exemple [Ric98]. Ces exemples particuliers nous amènent à conclure que des étapes intermédiaires très soigneuses de contre-vérification sont indispensables au début de tous les calculs modèles afin de valider des prévisions plus complexes et plus longues.



# Chapitre 3

## Production de neutrons

### 3.1 Introduction

Ces dernières années, tirant profit du progrès des technologies associées aux accélérateurs, la vieille idée d'un générateur intense de neutrons a ressurgi pour être exploitée dans de nombreux domaines : analyse de structures de semi-conducteurs et matériaux, pour lesquels une source de neutrons continue est en construction à PSI (SINQ) [Bau96], une source de neutrons de haute intensité est un projet européen (projet d'ESS) [Eur99] ainsi qu'aux USA (projet de SNS) [Spa99].

Le flux intense de neutrons peut également être utilisé pour produire des isotopes pour la médecine ou pour la production de tritium (projet d'APT, USA) [Bro96]. Son application, la transmutation des déchets radioactifs et/ou du plutonium et la génération d'énergie nucléaire dans des réacteurs hybrides sous-critiques, a été un moteur dominant dans le regain d'intérêt récent pour la production de neutrons.

Jusqu'ici, en ce qui concerne les systèmes hybrides, seuls des protons d'énergie moyenne (0.8 – 1.6 GeV) frappant une cible lourde (U, Th, Pb) ont été étudiés [Bow92, Rub95, Muk88, Par98, Sal99]. Cette situation résulte principalement du fait que la production de neutrons a été le critère le plus important (souvent le seul) pour le choix des projectiles incidents et du matériel d'une cible de spallation. L'utilisation des projectiles telles que des deutérons et des cibles légères (Li, Be) comme convertisseurs pour créer les neutrons peut avoir des propriétés compétitives et même plus efficaces [Rid98a]. Cette possibilité a déjà été suggérée par E.O. Lawrence en 1947 après les toutes premières expériences au cyclotron de 184 pouces nouvellement installé à Berkeley. Il est amusant de constater qu'il a été également observé très tôt que des réactions de spallation induites par deutéron pouvaient être utilisées pour produire  $^{239}\text{Pu}$  à partir d'uranium depleté, et aussi comme source extérieure de neutrons pour des réacteurs de fission (concept très proche de l'amplificateur d'énergie!) [Sta54].

Si une cible de spallation est entourée par un environnement sous-critique, en principe, il devrait être plus que trivial de distinguer la source et les neutrons secondaires. Dans ce cas, les neutrons de source sont ceux qui sortent de la cible de spallation et qui pénètrent dans l'environnement sous-critique. Cependant, même

dans ce cas simple, les neutrons peuvent provenir de l'environnement sous-critique, pénétrer dans le support de source et être dispersés de l'environnement sous-critique. En outre, des neutrons de plus haute énergie pénétrant dans l'environnement sous-critique auront des propriétés différentes de multiplication par rapport aux neutrons secondaires "moyens" : par exemple, ils peuvent produire plus de réactions  $(n, xn)$ , et, en cas d'événements de fission, mener aux fissions avec les multiplicités de neutrons plus haute que la moyenne. Une autre caractéristique non moins importante des neutrons partant de la cible de spallation est leur distribution angulaire. Par conséquent, nous pensons que le rendement de neutrons n'est pas le seul critère dans le contexte suivant – détermination de la manière la plus efficace de convertir l'énergie primaire du faisceau en neutrons et utilisation de ces neutrons pour diverses applications.

## 3.2 Taux total de neutrons

Nous avons examiné le système LCS avec les mesures existantes de sections efficaces et les multiplicités de production de neutrons (voir, par exemple, 50MeV  $\text{Be}(d, xn)$  [Meu75], 190MeV  $\text{U}(d, xn)$  [Sta54], 188MeV  $\text{Pb}(d, xn)$  et 197MeV  $\text{Pb}(p, xn)$  [Lot98], 475MeV  $\text{Au}, \text{U}(p, xn)$  [Pie94], 540MeV  $\text{Be}, \text{Pb}, \text{U}(p, xn)$  [Mar97a]). Pour des multiplicités de neutrons mesurés nous avons obtenu un accord raisonnable (à moins de 10-15%) comparé aux valeurs prévues par le code LCS.

Nous devons noter que les multiplicités de neutrons récemment calculées par J. Cugnon *et al.* [Cug97] ne peuvent pas être directement comparées à nos valeurs calculées. Les auteurs de cet article ont exécuté les calculs pour des cibles infiniment minces sans transport de particules en matériaux. Cela signifie que seules des interactions élémentaires par les cascades intranucléaires et les évaporations sont prises en considération, et les multiplicités finales de neutrons ne dépendent pas de la géométrie de cible [Vol98], ce qui n'est pas le cas dans nos calculs. Le nombre total de neutrons (estimés en moyenne et normalisés par projectile incident), lançant tous les deux des réactions primaires comme  $(\text{proj.}, xn)$ ,  $(\text{proj.}, f)$ ,... et des réactions secondaires comme  $(n, xn)$ ,  $(n, f)$ ... jusqu'à ce que les particules transportées atteignent des énergies minimales  $E_{min}$ , est référé ci-après comme rendement total de neutrons ou multiplicité moyenne de neutrons  $\langle M_n \rangle$ . Dans l'application actuelle, un calcul de transport est exécuté par LAHET pour des protons, des deutérons et des alphas au-dessus de 1MeV et de ces neutrons au-dessus de 20MeV. Des neutrons apparaissant au-dessous de 20MeV sont enregistrés sur un fichier d'interface pour le transport ultérieur avec le code MCNP jusqu'à des énergies minimales de  $10^{-11}$  MeV. De cette façon, le nombre total des fissions  $N_{fiss}$  qui ont lieu dans la matière fissible pendant ce transport de particules peut-être assez bien estimé.

Un deutéron portant déjà un neutron, semble être plus efficace pour la production de neutrons qu'un proton. Par conséquent, une particule  $\alpha$ , avec deux neutrons et deux protons, serait plus favorable dans le même contexte. En fait, la situation est bien plus compliquée.

Dans la Figure 3.1 nous montrons les multiplicités moyennes de neutrons cal-

culées et normalisées par particule incident pour des protons, des deutérons et des particules  $\alpha$  à l'énergie incidente de 100MeV/nucleon sur différents matériaux de cible. Au moment où le noyau est bombardé par les deutérons de 200MeV, ou par

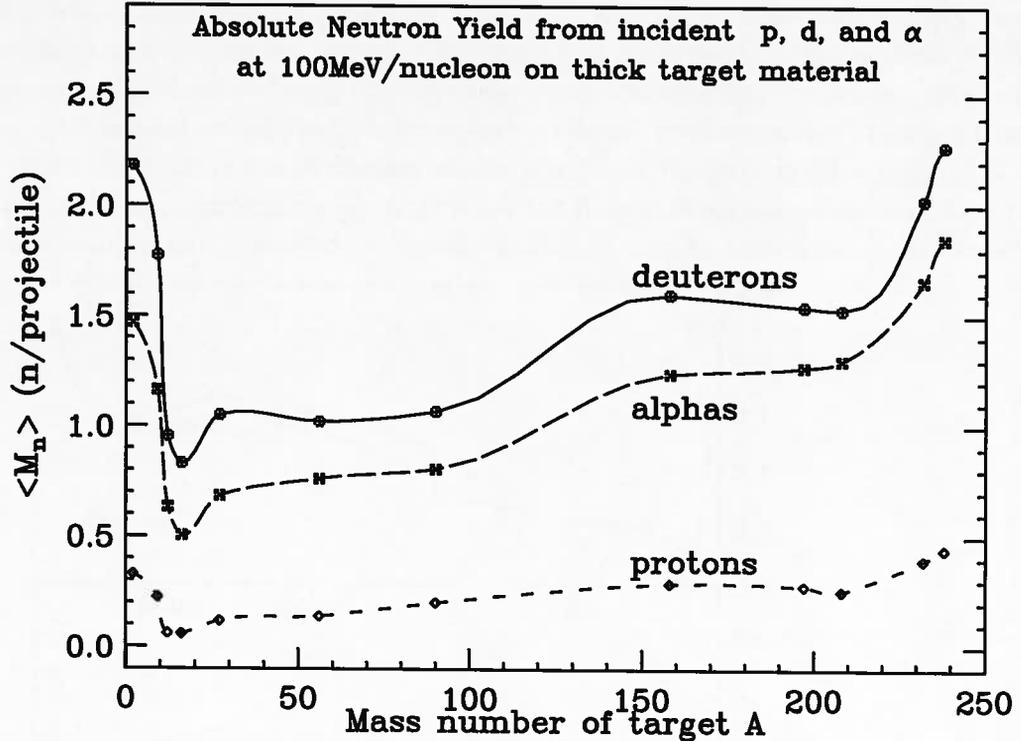


FIG. 3.1 – Multiplicités de neutrons ( $M_n$ ) calculées en fonction d'un matériel épais de cible de masse  $A$  (5 intervalles d'arrêt pour des deutérons) pour des  $p$ ,  $d$  et particules  $\alpha$  à 100MeV par nucléon. Voir également le Tableau 3.1.

les particules d' $\alpha$  de 400MeV, l'effet principal de l'énergie de liaison des nucléons incidents est de créer une corrélation spatiale entre eux, et ce qui se produit peut être considérée comme un bombardement simultané par différents nucléons. Leurs

E (MeV)	${}^9\text{Be}$	${}^{56}\text{Fe}$	${}^{238}\text{U}$
80	3.4	1.0	0.6
200	17.2	4.8	3.0
500	77.0	21.0	12.7
1000	215.0	60.0	35.0

TAB. 3.1 – Intervalles d'arrêt pour des protons (en cm) en fonction de l'énergie incidente et du matériel de cible. L'équation suivante est utilisée pour l'évaluation ces intervalles pour les deutérons:  $R_d(E) = 2R_p(\frac{1}{2}E)$ , où  $E$  est l'énergie totale de projectile.

caractéristiques dépendent principalement du fait que le deutéron est un système très peu lié avec le proton et le neutron passant réellement la majeure partie de

son temps en dehors de la portée de leurs interactions mutuelles. Au contraire, la particule  $\alpha$  est liée plus fortement d'un ordre de grandeur comparé au deutéron. Il est également clair que la production de neutrons par des protons dans cette image est inférieure à la production de neutrons par des deutérons ou des  $\alpha$  avec la même énergie par nucléon. La dépendance du rendement de neutrons en fonction de la cible (ici nous nous référons à la forme des courbes) est tout à fait semblable pour tous les projectiles : la production de neutrons est plus favorable pour les matériaux très légers (lithium ou béryllium) ou très lourds (thorium ou uranium).

L'énergie totale est un des paramètres essentiels qui définit les coûts effectifs d'accélération de particules, et il est préférable de comparer la production de neutrons par des protons et par des deutérons à de mêmes énergies incidentes. Dans

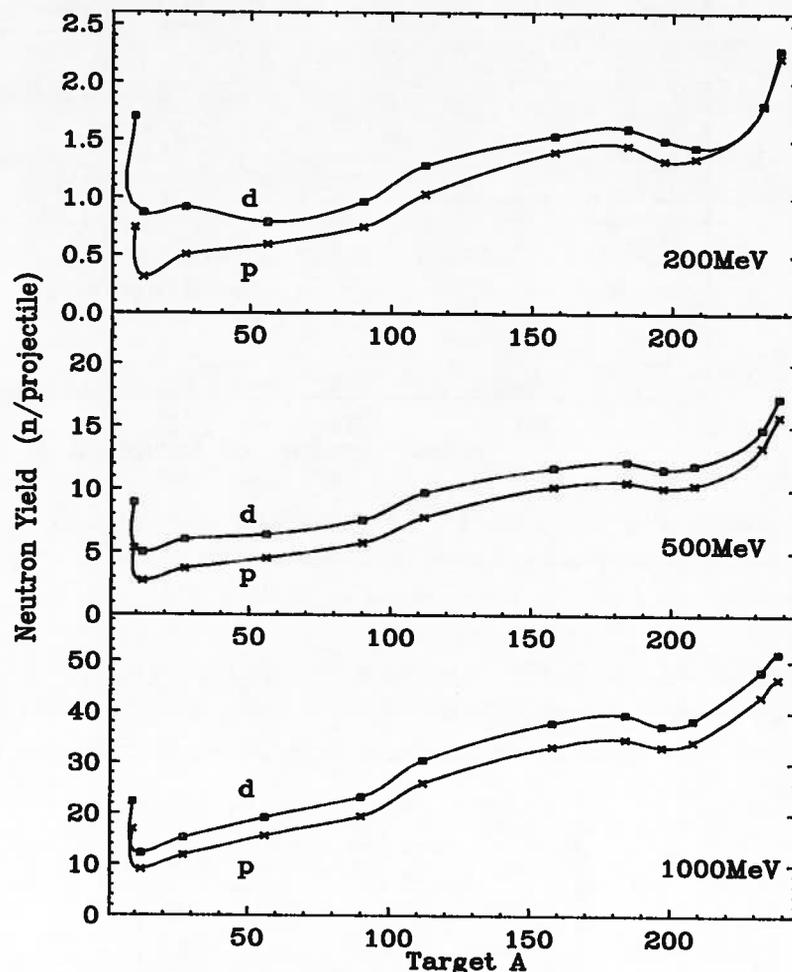


FIG. 3.2 – Évaluation de production de neutrons par des protons et par des deutérons avec des énergies totales incidentes de 80 MeV, 200 MeV et 500 MeV. La cible épaisse est un cylindre avec le diamètre et la longueur égale, donnée par 2 intervalles d'arrêt pour des protons selon l'énergie incidente. Voir également le Tableau 3.1.

[Rid98a] nous avons montré que les deutérons semblent être des projectiles plus efficaces pour la production de neutrons pour tous les matériaux de cible si on les compare aux protons aux mêmes énergies incidentes. Il y a une explication simple à

cela; la production de neutrons augmentera avec un certain nombre d'interactions, ceci augmentant avec l'intervalle  $R \sim \frac{E^2}{MZ^2}$  suivant la relation de perte d'énergie. Pour une énergie donnée  $E$  cette relation favorise des protons avec le minimum  $MZ^2=1$ . Cependant, un neutron supplémentaire très peu lié dans le projectile, et la contribution correspondante de réactions  $(n,xn)$  et  $(n,f)$  dans une géométrie de cible épaisse compense facilement cet effet pour des deutérons.

La Figure 3.2 représente le rendement total de neutrons des réactions induites par deutéron (d) et par proton (p) en fonction de trois énergies incidentes et d'un certain nombre de matériaux de cible épaisse. On voit clairement que la dépendance du

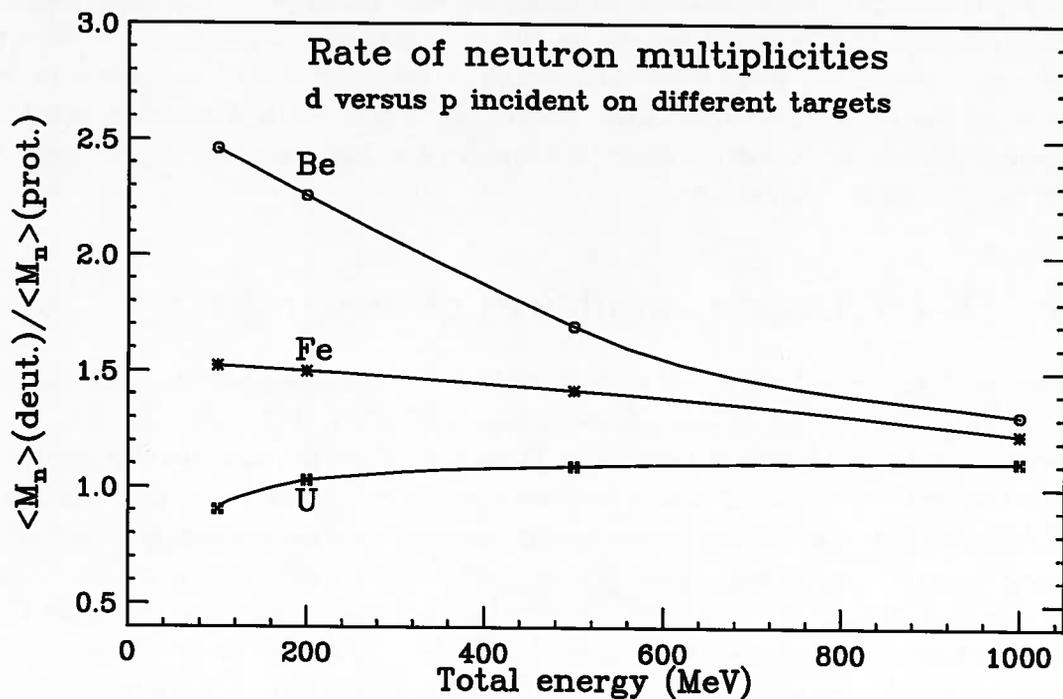


FIG. 3.3 – Taux de multiplicités de neutrons calculé pour des réactions induites par deutéron sur celles des réactions induites par proton sur différents matériaux de cible en fonction de l'énergie incidente totale des projectiles. La cible épaisse est un cylindre avec un diamètre et une longueur égaux, donnée par 2 intervalles d'arrêt pour des protons selon l'énergie incidente. Voir également le Tableau 3.1.

rendement de neutrons de la cible est tout à fait semblable pour tous les projectiles : la production de neutrons est plus favorable pour les matériaux de cible très légers (lithium ou béryllium) et très lourds (thorium ou uranium). Dans ce dernier cas, la production de neutrons est augmentée en raison de la contribution supplémentaire des fissions. Pour toutes les énergies, les deutérons sont beaucoup plus efficaces que des protons dans la production de neutrons si on choisit les cibles très légères. Dans le cas de Be, le rendement de neutrons est plus grand pour des deutérons d'un facteur 1.3-2.5 selon l'énergie comme le montre la Figure 3.3. Cependant, ce n'est pas le cas des cibles lourdes à 200MeV ; la production de neutrons par des protons et des deutérons est presque identique. Une mesure expérimentale récente [Lot98]

des multiplicités de neutrons dans le cas des protons et des deutérons à 200MeV confirme que, pour une cible épaisse du plomb, les deux projectiles sont également prolifique pour la production de neutrons. L'augmentation de l'énergie du projectile rend des deutérons plus efficaces de 10% seulement pour U, par exemple, comparé aux protons. Au contraire, les multiplicités de neutrons prévues pour des protons et des deutérons de 100MeV sont plus grands pour des protons (voir la courbe "U" dans la Figure 3.3).

Nous avons constaté qu'à ces énergies presque aucun neutron secondaire (neutrons produits par d'autres particules que des particules incidentes, par le processus  $(n, xn)$ , par exemple) n'est produit, et la production primaire de neutrons par des protons est plus efficace. Il est également très important de noter que le rendement de neutrons des cibles légères est comparable à celui des cibles lourdes pour les réactions induites par deutérons, alors que les protons produisent toujours considérablement plus de neutrons sur les cibles lourdes que sur les cibles légères (voir la partie supérieure de Figure 3.2).

### 3.3 Distributions angulaires de neutrons

Si nous comparons les courbes de la distribution angulaire pour la production de neutrons par des protons et par des deutérons à 200MeV dans la Figure 3.4, nous observons une caractéristique commune. Dans le cas des protons, les distributions angulaires sont relativement plates (la partie supérieure), alors que pour les réactions induites par le deutéron, la production de neutrons est davantage concentrée aux angles avant (partie inférieure). D'autre part, les deux réactions  $(p, xn)$  et  $(d, xn)$  montrent une dépendance angulaire semblable à des angles plus grands; la section efficace diminue considérablement avec l'angle dans le cas de Be et Fe, alors que pour la cible d'U, les neutrons sont émis dans toute la région angulaire. La diffusion multiple de nucléons et la production secondaire de neutrons pendant l'étape d'évaporation contribuent la plupart du temps.

Cette différence observée dans les distributions angulaires des neutrons pourrait jouer un rôle très important dans d'autres recherches sur la production de neutrons dans les systèmes hybrides sous-critiques, où l'utilisation des cibles légères ou lourdes, à notre avis, est toujours une question ouverte. On pourrait penser au système combiné, par exemple, avec une cible légère (convertisseur) afin de créer les neutrons (qui nous l'avons montré sont la plupart du temps émis aux angles vers l'avant pour les cibles légères) et une cible lourde (placée bien après la cible légère) pour augmenter encore le flux de neutrons [Rid98b]. Dans ce contexte la réaction  $(d, xn)$  est beaucoup plus favorable pour deux raisons bien établies. Tout d'abord, la production de neutrons en valeur absolue est plus haute pour les cibles légères si on utilise des deutérons comme nous l'avons montré dans le paragraphe précédent. Deuxièmement, une grande partie des neutrons créés par des deutérons dans une cible légère sont produits aux angles vers l'avant comparé à la réaction de proton; ainsi ces neutrons pourraient être utilisés plus efficacement pour la production de neutrons secondaires dans une cible lourde en termes de sections efficaces de

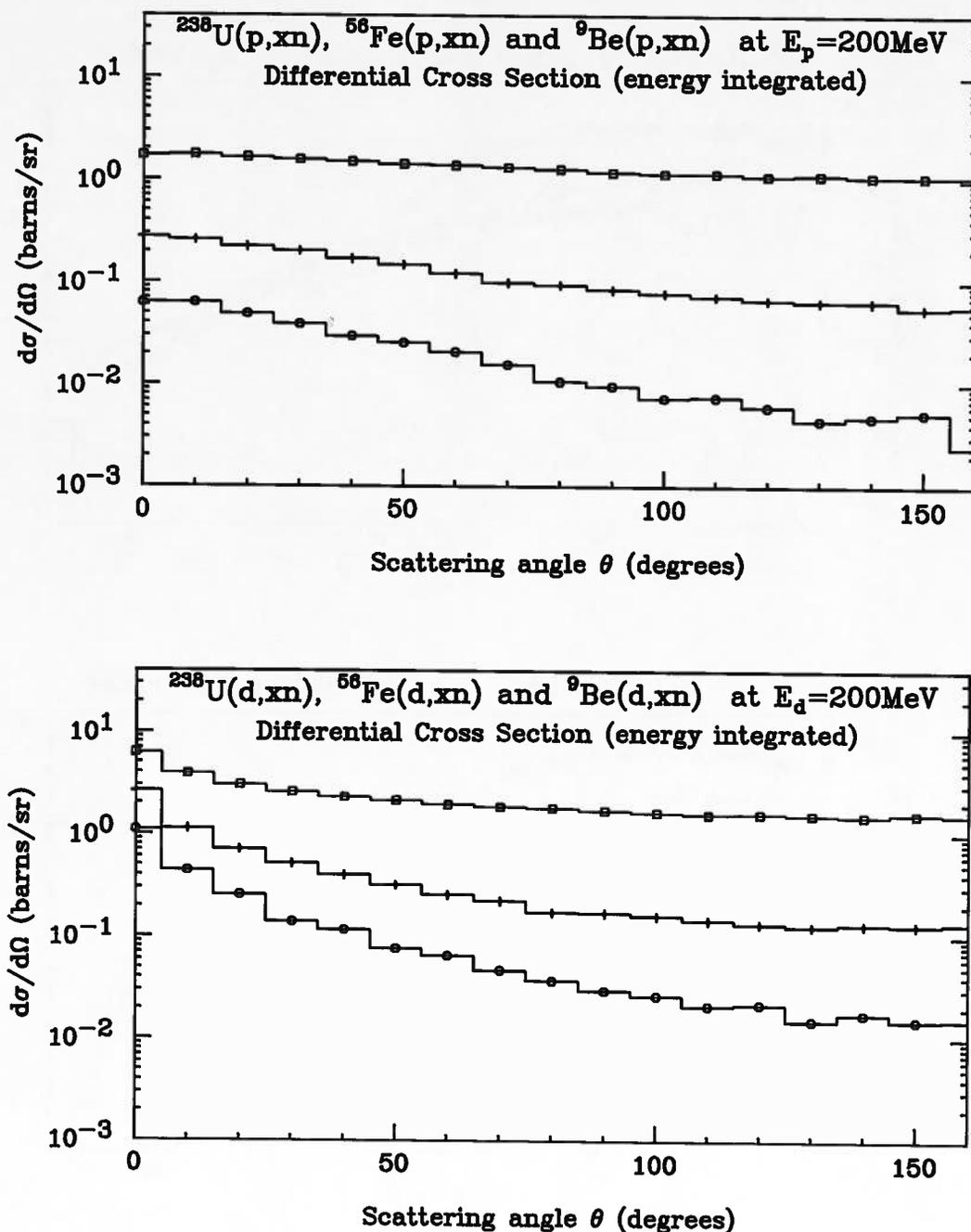


FIG. 3.4 – Distributions angulaires des sections efficaces de production de neutrons pour des protons (partie supérieure) et des deutérons (partie inférieure) incidents sur trois cibles, U (carrées), Fe (croix) et Be (cercles). L'énergie incidente totale est 200MeV pour les deux projectiles.

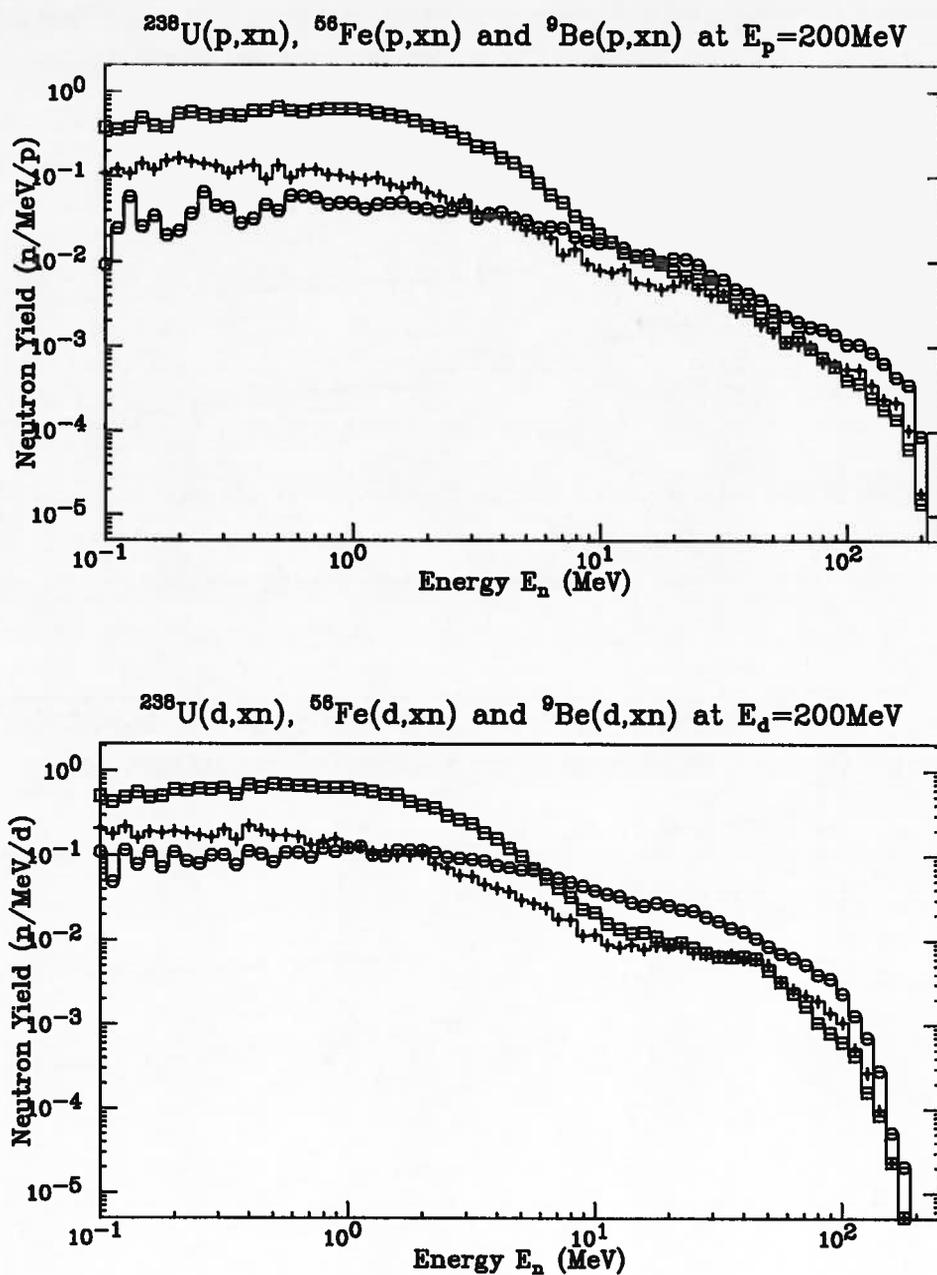


FIG. 3.5 – Les distributions en énergie de neutrons prévues pour des protons (ci-dessus) et des deutérons (ci-dessous) incidents sur trois cibles, U (carrés), Fe (croix) et Be (cercles) respectivement. L'énergie incidente totale est 200MeV pour les deux projectiles. La cible épaisse est un cylindre avec un diamètre et une longueur égaux, donnée par 2 intervalles d'arrêt pour des protons. Voir également le Tableau 3.1.

production plus élevées et de géométries plus simples.

### 3.4 Distributions en énergie de neutrons

Une remarque de plus doit être ajoutée à la discussion sur la production de neutrons; on voit clairement sur la Figure 3.5, où les distributions en énergie des neutrons émis lors de réactions (d,xn) et (p,xn) à 200MeV sont représentées, que les cibles légères produisent des neutrons beaucoup plus énergétiques que les cibles lourdes. Le lecteur peut trouver utile les nombres donnés explicitement dans le Tableau 3.2. La plus grande partie des neutrons (80%) d'U est produite dans l'intervalle d'énergie de 0 à 5MeV, alors que plus de 55% de neutrons de Be sont émis avec des énergies plus hautes que 10MeV. D'ailleurs, les deutérons (comparés aux protons)

	<sup>9</sup> Be		<sup>56</sup> Fe		<sup>238</sup> U	
$E_n$ (MeV)	p	d	p	d	p	d
$\geq 0$	0.737	1.700	0.594	0.898	2.216	2.283
$\geq 5$	0.525	1.233	0.282	0.475	0.490	0.585
$\geq 10$	0.420	0.980	0.216	0.388	0.276	0.399
$\geq 25$	0.243	0.575	0.129	0.263	0.131	0.233
$\geq 50$	0.131	0.250	0.062	0.110	0.054	0.082
$\geq 100$	0.051	0.031	0.021	0.012	0.015	0.009

TAB. 3.2 – Les multiplicités de neutrons ( $M_n$ ) prévus pour les réactions (d,xn) et (p,xn) respectivement pour différents matériaux de cible épaisse et différentes énergies des neutrons émis. L'énergie totale incidente est 200MeV pour les deux projectiles. Une cible épaisse a une géométrie de cylindre avec le diamètre et la longueur égale, donnée par 2 intervalles d'arrêt pour des protons. Voir également le Tableau 3.1.

dans la cible légère et lourde produisent deux fois plus de neutrons énergétiques en valeur absolue (par exemple, la ligne avec  $E_n \geq 25$ MeV ou  $E_n \geq 50$ MeV dans le Tableau 3.2). D'autre part, aux énergies de neutrons  $E_n \geq 100$ MeV, les protons dépassant les deutérons. Ici, nous devons rappeler que les deutérons ont une énergie incidente de 100MeV/nucleon tandis que ce nombre est 200MeV/nucleon pour les protons. Malgré un pourcentage très faible des ces neutrons « super-énergétiques » produits (7% pour des protons et seulement 2% pour des deutérons à comparer à la production totale dans le cas du Be). Ces nombres pourraient être cruciaux du point de vue de la radioprotection. Ici les deutérons, produisant moins de neutrons « super-énergétiques », sont encore en meilleure position.

### 3.5 Conclusion

Nous avons essayé de résoudre la question suivante: les réactions induites par proton ou par deutéron sont elles plus efficaces dans la production de neutrons

en utilisant le code LCS?. L'optimisation complète de l'efficacité de production de neutrons implique trois paramètres principaux intéressants : a) les spectres en énergie des neutrons ; b) les distributions angulaires des neutrons ; c) les multiplicités moyennes des neutrons. Chacun de ces paramètres pourrait être considéré en fonction du projectile, de son énergie incidente totale et du matériel de cible, ce qui complique beaucoup notre tâche initiale.

Nous avons constaté que la production de neutrons par des deutérons est plus grande d'un facteur de 1.3-2.5 (selon l'énergie incidente) pour une cible légère comme Be comparée aux réactions induites par protons. Dans le cas des cibles intermédiaires comme Fe, les deutérons sont plus favorables d'un facteur de 1.2-1.5. Cependant, pour la cible lourde les matériaux comme U, les deux projectiles sont également efficaces, environ 10% en faveur des deutérons.

Une combinaison des deutérons avec un matériel de cible léger donne le spectre en énergie des neutrons le plus dur. D'ailleurs, pour toutes les cibles, les deutérons donnent un rendement des neutrons énergétiques plus grand par rapport aux réactions induites par protons. La distribution angulaire des neutrons la plus isotropique est obtenue dans la réaction  $p+U$ , alors que la réaction  $d+Be$  produit plus de neutrons aux angles plus vers l'avant.

Ces résultats devraient fournir des caractéristiques utiles pour le choix de la cible de spallation (métal lourd/léger) et de la particule incidente (proton/deutéron) dans les applications où une source de neutrons efficace joue le rôle principal. Aux Chapitres 4 et 5 suivants nous évaluerons deux systèmes pilotés par un accélérateur, à savoir i) l'amplificateur d'énergie piloté par un accélérateur, et ii) la production de RIBs piloté par un accélérateur par l'intermédiaire de fissions induites par neutrons.

# Chapitre 4

## Amplificateur d'énergie piloté par accélérateur

### 4.1 Introduction

La compréhension des amplificateurs d'énergie exige la connaissance de l'interaction des particules de haute énergie avec la matière ainsi que de la physique de la multiplication de neutrons dans les assemblages. Dans le paragraphe suivant nous traiterons ces deux sujets avec une brève comparaison aux réacteurs nucléaires conventionnels.

Dans les réacteurs actuels, l'énergie de fission nucléaire est basée sur une réaction en chaîne dans un coeur du réacteur où il y a équilibre entre le nombre de neutrons absorbés et le nombre de neutrons de la prochaine génération, le coefficient de multiplication  $k$  étant égal à 1. La divergence du système se produit quand  $k > 1$ . Chaque fission d'un noyau (essentiellement  $^{235}\text{U}$ ) produit deux fragments de fission et en moyenne  $\sim 2.5$  neutrons sont émis spontanément. Ces neutrons vont induire des nouvelles fissions dans le système. Ce processus auto-entretenu s'appelle une réaction en chaîne. Après un certain temps une petite fraction (moins que 1%) de neutrons retardés est émise par les fragments de fission.

En pratique, le réacteur nucléaire critique est commandé à l'aide de ces neutrons retardés. Le retard de l'émission d'une fraction des neutrons est indispensable pour réagir à temps, à l'aide d'un système de commande, au changement possible de réactivité du réacteur critique. Cette régulation permet de corriger les différences entre  $k$  étant légèrement en-dessous de 1 (par exemple, 0.999) (appelé le medium "de multiplication"), et  $k$  étant temporairement légèrement au-dessus de 1 (par exemple, 1.001) (appelé le medium "de divergence").

Ce réglage fin est important pour éviter des excursions de réactivité, c.-à-d. fluctuations de la valeur  $k$ , qui, dans un cas extrême, peuvent entraîner des accidents. L'idée, alors, est de contrôler le réacteur avec une source extérieure de neutrons qui peuvent être obtenus par l'interaction des particules de haute énergie (des protons ou des deutérons) avec un matériel de cible décrit dans la Figure 4.1. Quand les particules incidentes d'énergie suffisamment haute ( $\sim 1-10\text{GeV}$ ) interagissent avec une

cible de métal lourd (Pb, par exemple), elles peuvent créer un flux de 20-70 neutrons par particule incidente. Dans la littérature de physique nucléaire, ce processus est connu sous le nom de réaction de spallation. Les neutrons produits dans la cible de spallation arrivent dans le medium "de multiplication", où ont lieu les fissions du combustible nucléaire, qui n'a pas besoin d'être enrichi.

Dans ce cas, si la source extérieure de neutron est assez forte, le medium "de multiplication" peut être très sous-critique avec  $k$  très inférieur à 1, par exemple 0.95. Ceci mène au concept du réacteur hybride piloté par accélérateur ou de l'amplificateur d'énergie (EA). Théoriquement, si l'accélérateur est coupé, l'EA sous-critique s'arrêtera immédiatement [Rub95].

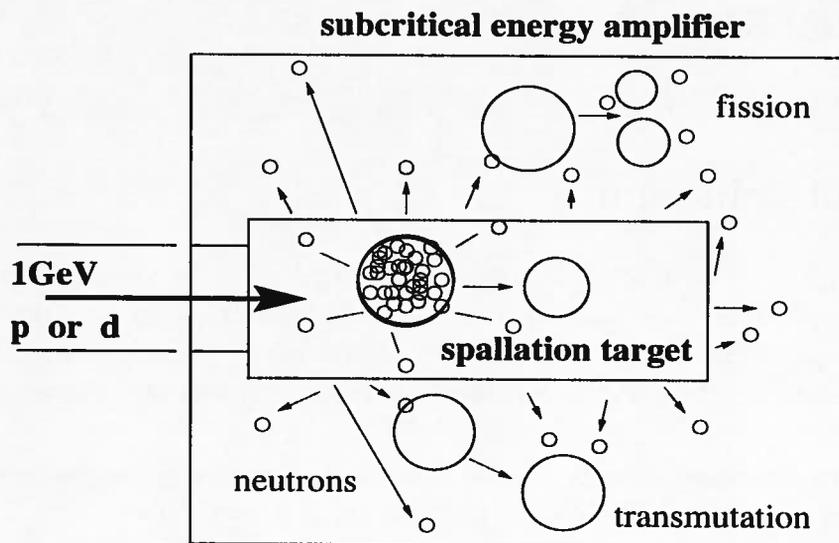


FIG. 4.1 – Schéma d'une usine hybride. Un faisceau intense de proton ou de deuteron d'un accélérateur frappe une cible massive (Pb, Hg...) et produit les neutrons rapides. Dans une couverture environnante (uranium ou thorium naturel), les neutrons sont en quelque sorte ralentis et pilotent un amplificateur d'énergie sous-critique.

Si le système hybride vise principalement la production d'énergie, l'utilisation de l'EA piloté par accélérateur permet de se libérer d'un certain nombre de contraintes imposées aux systèmes critiques. Il serait, par exemple, possible de produire l'énergie avec un système refroidi d'eau légère et un combustible de thorium naturel [Nif99], c.-à-d. que le combustible nucléaire enrichi ne serait pas nécessaire (ce qui n'est pas possible dans un réacteur critique). Ce cycle nucléaire basé sur le combustible naturel ( $^{232}\text{Th}$ ) est particulièrement intéressant puisqu'il réduit au minimum la production des éléments transuraniens et autres déchets de l'inventaire [Bow92, Rub95, Nif99]. La valeur du coefficient de multiplication  $k$  devrait être assez petite pour exclure toute possibilité que le système ne devienne critique. Le résultat de l'expérience au CERN [And95] a montré qu'une valeur de  $k=0.98$  correspondrait à un gain d'énergie de 150, c.-à-d. un proton d'1 GeV produirait 150 GeV dans le medium "de multiplication", alors moins de 10% de toute l'énergie produite est nécessaire pour

faire marcher un accélérateur. Avec un gain de 150 et une puissance d'accélérateur de 10MW, une puissance thermique totale de 1500MW et une puissance électrique de 600MW seraient obtenues avec une efficacité réaliste de 40%.

Ce nouveau concept de la génération d'énergie nucléaire produit-il des déchets radioactifs? La réponse est « oui », mais l'EA offre des possibilités très intéressantes de servir comme brûleur efficace de déchets nucléaires, comme nous le verrons ci-dessous. En règle générale, les déchets radioactifs sont la conséquence de la production d'énergie nucléaire ou du démantèlement d'armes nucléaires. Le combustible usé d'un réacteur à eau sous pression (PWR), se compose de 96% d'uranium, de 1% de plutonium, de 3% d'actinides mineurs et de produits de fission. Certains de ces matériaux ont un temps de vie de très longue durée, présentant potentiellement des risques radiologiques à très long terme. La solution la plus souvent étudiée pour l'élimination de déchets de vie longue est le dépôt dans des sites souterrains, géologiquement stables et profonds [Nif99]. Cependant, cette solution a quelques inconvénients: elle n'est pas d'une sûreté absolue à très long terme, il peut y avoir une perte de mémoire de ces sites sur une durée de centaines de milliers d'années, et, surtout, l'opinion publique est assez négative. C'est pourquoi on étudie maintenant la possibilité de séparer et de transmuter des déchets radioactifs de longue vie dans des isotopes stables ou de courte durée de vie qui pourraient être alors placés dans des sites souterrains.

A cette fin, principalement deux réactions nucléaires peuvent être utilisées: la capture de neutrons ou la fission induite par neutrons, les deux processus se produisant dans un flux de neutrons de type de réacteur (voir la Figure 4.1). La nécessité d'un grand excès de neutrons pour la transmutation de quantités significatives de déchets a conduit à proposer l'usage de systèmes nucléaires pilotés par accélérateur avec une source extérieure de neutrons. Les neutrons supplémentaires sont fournis par l'accélérateur et la cible de spallation comme le montre la Figure 4.1, et permettent de maintenir la réaction en chaîne tout en brûlant les déchets de longue durée de vie.

La transmutation de déchets nucléaires et la génération d'énergie décrites ci-dessus pourraient être combinées dans le même système hybride (voir Figure 4.2). Par conséquent, un brûleur efficace de déchets nucléaires pourrait en même temps servir de générateur efficace d'énergie nucléaire [Bow92, Rub95, Nif99, Sal99]!

Quel doit être le flux de neutrons pour transmuter efficacement des déchets radioactifs de vie longue? Il est clair que plus le flux de neutrons  $\phi_n$  est élevé, plus le temps  $T_A$  de transmuter un noyau  $A$  par le flux  $\phi_n$  va être court. En d'autres termes,  $T_A \sim (\Phi_n \sigma_A)^{-1}$ ,  $\sigma_A$  étant la section efficace de capture de neutrons pour le noyau  $A$ . Si  $\sigma_A \sim 10\text{b}$  et  $T_A \sim 10\text{ans}$ , alors  $\phi_n$  est de l'ordre de grandeur de  $3 \cdot 10^{15} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ . Des flux semblables de neutrons sont obtenus dans les réacteurs nucléaires conventionnels en service [Nif99]. Nous notons que même des flux beaucoup plus élevés ( $\sim 10^{17} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ ) ont été étudiés dans le cas des combustibles liquides [Bow92].

Dans le chapitre précédent nous avons montré que les deutérons sont aussi efficaces ou plus efficaces dans la production de neutrons comparés aux protons. Nous avons également conclu que les neutrons des réactions induites par deutéron ont des spectres en énergie beaucoup plus durs et leurs distributions angulaires sont

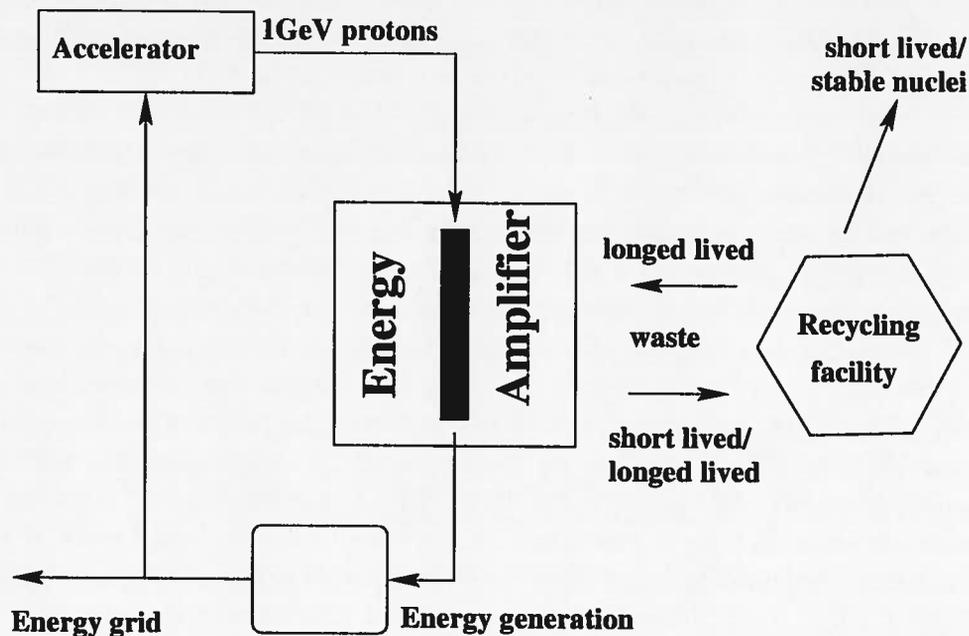


FIG. 4.2 – Concept d'amplificateur d'énergie et brûleur de déchets nucléaires.

piquées vers l'avant, en particulier dans le cas des cibles légères métalliques. Dans le prochain paragraphe nous examinons la façon dont ces différentes caractéristiques des neutrons pourraient être utilisées pour la multiplication de neutrons et l'amplification d'énergie dans un assemblage sous-critique. Les paragraphes suivants aborderont les questions liées à la radiotoxicité de la cible de spallation et les problèmes de l'accélération de particules incidentes d'une façon comparative, c.-à-d. protons comparés aux deutérons et cible de spallation métallique légère comparée à cible de spallation métallique lourde.

## 4.2 Génération d'énergie

Dans une cascade induite par une particule chargée, comme nous l'avons déjà mentionné, on peut distinguer deux régimes physiques qualitatifs : a) une phase de haute énergie et pilotée par spallation et b) un régime dominé par fission et piloté par neutron. Les neutrons de la première phase agissent en tant que « source » pour la deuxième phase, où ils donnent graduellement l'énergie par des collisions et sont multipliés principalement par des fissions et des réactions  $(n, xn)$ . Selon le but final, on doit choisir très soigneusement le projectile incident et les matériaux de cible pour ces régimes physiques. Dans ce chapitre, nous voudrions développer en détail l'idée déjà lancée en 1952 lors des mesures des rendements de neutrons par le bombardement des cibles avec des faisceaux de protons et de deutérons. À ce moment-là, deux conclusions significatives étaient atteintes [Sta54] :

1. « Dans le bombardement direct des cibles d'uranium (de 30cm), le rendement

de neutrons était de 25% à 30% plus grands pour des deutérons que pour des protons de même énergie totale. »

2. « En cas de bombardement de deutérons, la mise en place d'une cible épaisse de Be ou Li (la cible primaire) devant le bloc d'uranium (la cible secondaire) a eu comme conséquence pratiquement le même rendement de neutrons que l'uranium bombardé directement... »

Encouragés par ces résultats et motivés par ceux que nous avons déjà précisé dans les chapitres précédents, une cible sous-critique simplifiée pour la multiplication de neutrons et la production d'énergie par des réactions induites par protons et par deutérons a été prise comme cas d'essai (voir la partie supérieure de la Figure 4.3). Elle se compose d'une cible de spallation (béryllium ou uranium) à l'intérieur d'un combustible. Pour simplifier, un mélange homogène d'eau et d'uranium a été utilisé comme combustible. Le dispositif est entouré par une couverture sphérique d'eau, agissant en tant que « réflecteur ». Les paramètres de la géométrie du système sont donnés dans le Tableau 4.1. Nous notons que notre « réacteur simplifié » peut servir de bonne approximation (aussi longtemps que la géométrie et les matériaux sont concernés) d'un agencement sous-critique fait en tiges d'uranium normal (0.71%  $^{235}\text{U}$ ) et modérateur d'eau comme décrit dans [And95], où un coefficient de multipli-

	Materials	Dimensions
spallation targets (cylinder)	$^9\text{Be}$ or $^{238}\text{U}$	$r_c=3.5\text{cm}$ ; $l=R_p$ or $l=R_d$ $r_c=3.5\text{cm}$ ; $l=80.0\text{cm}$
fuel assembly (cylinder)	$0.373 \text{ U} + 0.627 \text{ H}_2\text{O}$ , where $\text{U} = ^{235}\text{U}(0.95\%) + ^{238}\text{U}(99.05\%)$	$r_c=45.0\text{cm}$ ; $l=110.0\text{cm}$
water blanket (sphere)	$\text{H}_2\text{O}$	$r_s=75.0\text{cm}$

TAB. 4.1 – Paramètres de la cible sous-critique montrée dans la partie supérieure de la Figure 4.3. Ici  $l$  est la longueur d'un cylindre avec son rayon indiqué par  $r_c$  ;  $r_s$  est le rayon d'une sphère,  $R_p$  et  $R_d$  correspondent aux intervalles d'arrêt pour des protons et des deutérons respectivement (voir le Tableau 3.1 pour les intervalles d'arrêt à différentes énergies incidentes). Note :  $l=R_p$  (ou  $l=R_d$ ) s'applique seulement si  $R_p$  (ou  $R_d$ ) est inférieur à 80cm ; autrement,  $l=80\text{cm}$  est utilisé dans le cas de  $^9\text{Be}$ . Dans le cas de la cible de spallation d' $^{238}\text{U}$ ,  $l=80\text{cm}$  est étudié. Voir également le Tableau 3.1.

cation de neutrons  $k=0.895\pm 0.010$  a été mesuré. Dans cette expérience particulière, le faisceau du CERN-PS frappe une cible d'uranium épaisse, laquelle est localisée de manière à centrer approximativement la source des neutrons de spallation dans le dispositif (voir la partie inférieure de Figure 4.3).

Nous avons exécuté les calculs de criticité avec le code MCNP [Bri93] en simulant la source de neutrons placée au milieu de la cible de spallation. Nous avons constaté que la présence d' $^{235}\text{U}$  dans le combustible doit être augmentée de 0.71% à 0.95% afin d'avoir le même coefficient de multiplication  $k$  compte tenu des barres d'erreur expérimentale. Avec cette configuration nous avons obtenu  $k=0.887$ . En remplaçant



la cible de spallation d'uranium par une barre de béryllium nous avons observé une petite augmentation uniquement du coefficient  $k$  (jusqu'à 1%).

Nos résultats numériques obtenus en exécutant les codes LAHET+MCNP [Pra89, Bri93] pour un « réacteur sous-critique » sont notés dans le Tableau 4.2. En plus des multiplicités de neutrons totales  $\langle M_n \rangle$ , normalisées par particule de faisceau incident, nous avons également calculé le nombre de fissions  $N_{fiss}$  qui ont eu lieu dans le combustible ainsi que le facteur  $G$  (ou le gain d'énergie) dans le cas de notre système combiné, c.-à-d. l'énergie produite dans le dispositif divisé par énergie fournie par le faisceau. Après chaque fission successive d' $^{238}\text{U}$  ou  $^{235}\text{U}$ , approximativement 181 MeV d'énergie devient disponible selon leurs valeurs  $Q$  de fission. Par conséquent, le gain d'énergie  $G(N_{fiss})$  peut être estimé par une relation très simple :

$$G(N_{fiss}) = \frac{181 N_{fiss}}{E_{beam}}, \quad (4.1)$$

où  $E_{beam}$  est donné en MeV.

Puisque notre cible de spallation est entourée par un support se multipliant avec son facteur de multiplication  $k$ , le nombre de neutrons après la multiplication est  $\frac{\langle M_n \rangle}{1-k}$  ; et le nombre de neutrons secondaires est donné par  $\frac{k\langle M_n \rangle}{1-k}$ . Effectuant les calculs, nous avons constaté que la plupart des neutrons secondaires sont produits par la fission, qu'elle-même produit  $\nu=2.47$  neutrons en moyenne, alors que la contribution des neutrons secondaires de la réaction  $(n, xn)$  était faible. Par conséquent, une expression approximative associant le nombre de fissions  $N_{fiss}$  et de multiplicités de neutron  $\langle M_n \rangle$  peut être dérivée :

$$N_{fiss} = \frac{k \langle M_n \rangle}{\nu (1 - k)}. \quad (4.2)$$

A partir des équations 4.1 et 4.2 nous pouvons alors obtenir une autre expression pour calculer le facteur  $G$  :

$$G(\langle M_n \rangle) = \frac{181}{E_{beam}} \frac{k \langle M_n \rangle}{\nu (1 - k)}. \quad (4.3)$$

Les deux valeurs  $G(N_{fiss})$  et  $G(\langle M_n \rangle)$  sont indiquées dans le Tableau 4.2 pour comparaison. Nous notons que  $G(N_{fiss})$ , donné par l'équation 4.1, devrait être une détermination plus directe du facteur de gain. La bonne concordance que nous avons obtenue entre les deux façons d'estimer cette observable est quelque peu accidentelle. Dans d'autres géométries, ayant la même criticité  $k$ , nous avons observé des différences beaucoup plus grandes.

Le Tableau 4.2 (partie supérieure), qui correspond à la cible d' $\text{U}+\text{U}$ , confirme nos résultats déjà mentionnés dans le Chapitre 3 ; les protons sont presque également efficaces dans la production de neutrons à même énergie incidente si on choisit la cible de métal lourd comme plomb, thorium ou uranium. La différence selon l'énergie incidente, le matériel de cible choisie et sa géométrie, s'étend de 5% à 15% en faveur des deutérons (voir la colonne  $\langle M_n \rangle$  dans la partie supérieure du Tableau 4.2 pour l'uranium). La petite différence a été trouvée pour un certain nombre de fissions

$N_{fiss}$  dans le matériel multiplicateur. Les résultats sont presque les mêmes pour le facteur de gain d'énergie donné par  $G(\langle M_n \rangle)$  et  $G(N_{fiss})$ , c.-à-d. mois de 10%, le facteur G (ou le nombre de fissions  $N_{fiss}$ ) est plus grand pour des deutérons.

	$\langle M_n \rangle$		$N_{fiss}$		$G(\langle M_n \rangle)$		$G(N_{fiss})$	
$E_{beam}$ (MeV)	p	d	p	d	p	d	p	d
100	0.54	0.51	1.7	1.7	3.0	2.9	3.0	3.0
200	2.72	3.04	8.7	9.1	7.7	8.6	7.9	8.2
300	6.82	7.37	20.6	22.0	12.8	13.8	12.4	13.3
400	11.91	12.69	36.2	38.7	16.8	17.9	16.4	17.5
500	17.72	19.85	55.2	60.5	20.0	22.3	20.0	21.9
600	24.38	26.92	77.2	84.9	22.9	25.2	23.3	25.6
800	37.95	42.09	123.3	134.4	26.7	29.6	27.9	30.4
1000	51.01	56.78	166.9	183.4	28.8	32.0	30.2	33.2
1200	63.06	72.28	208.2	230.7	29.5	33.9	31.4	34.8

	$\langle M_n \rangle$		$N_{fiss}$		$G(\langle M_n \rangle)$		$G(N_{fiss})$	
$E_{beam}$ (MeV)	p	d	p	d	p	d	p	d
100	0.36	0.87	1.3	3.2	2.1	5.2	2.3	5.7
200	1.91	4.03	6.4	14.0	5.7	12.1	5.8	12.7
300	4.49	8.87	14.8	30.8	9.0	17.7	8.9	18.6
400	7.98	14.14	26.1	50.2	12.0	21.2	11.8	22.7
500	12.26	20.67	40.6	70.7	14.7	24.8	14.7	25.6
600	18.11	26.20	56.4	92.8	18.1	26.2	17.0	28.0
800	29.06	37.77	93.7	136.1	21.8	28.3	21.2	30.8
1000	40.68	49.31	132.0	176.8	24.4	29.5	23.9	32.0
1200	50.97	60.09	167.1	215.5	25.5	30.1	25.2	32.5

TAB. 4.2 – Multiplicités totales  $\langle M_n \rangle$ , nombre de fissions  $N_{fiss}$  et facteur du gain d'énergie  $G$  normalisés respectivement par deutéron (d) ou proton (p) incident en fonction de l'énergie totale  $E_{beam}$  pour un dispositif sous-critique avec la cible de spallation d'uranium (partie supérieure) et la cible de spallation de béryllium (une partie plus inférieure) à l'intérieur du carburant (voir également la Figure 4.3 et le Tableau 4.1).

Cependant, la cible de Be+U (voir la partie inférieure du Tableau 4.2) donne des rendements de neutrons beaucoup plus grands pour des deutérons comme projectiles incidents. Dans le cas des deutérons, nous avons obtenu pratiquement les mêmes multiplicités de neutrons que pour l'U+U, en accord avec les mesures de 1952 [Sta54]. Dans le cas des protons, les valeurs de  $\langle M_n \rangle$  diminuent brusquement comparé à celles obtenues en bombardant de la cible de spallation d'U (voir les colonnes de  $\langle M_n \rangle$  respectivement dans les parties inférieures et supérieures du Tableau 4.2). D'ailleurs, la combinaison de cible de Be+U avec des deutérons a pour conséquence une augmentation plus rapide du nombre de fissions  $N_{fiss}$  (par conséquent dans le facteur de gain d'énergie  $G(N_{fiss})$ ), par rapport aux protons bombardant le dispositif

d'U+U (voir les nombres dans les colonnes  $G(N_{fiss})$  du Tableau 4.2 pour protons (partie supérieure) et pour deutérons (partie inférieure)). Pourquoi cette différence? Comme on l'a vu ci-dessus, les neutrons provenant de la cible de métal léger sont beaucoup plus énergétiques. Par conséquent, leur multiplication dans la matière fissile a un nombre de fissions  $N_{fiss}$  (et de gain d'énergie  $G(N_{fiss})$ ) plus élevé par particule incidente jusqu'à ce que les énergies optimales incidentes soient atteintes. Il est important de noter dans ce cas que aux énergies supérieures à 500MeV et 600MeV respectivement pour des protons et des deutérons les particules chargées ne sont pas complètement arrêtés dans la barre de Be, qui a une longueur de 80cm en raison de la taille actuelle du combustible. Le Tableau 3.1 fournit explicitement les intervalles d'arrêt.

La Figure 4.4 montre le gain d'énergie  $G(N_{fiss})$  calculé en fonction de l'éner-

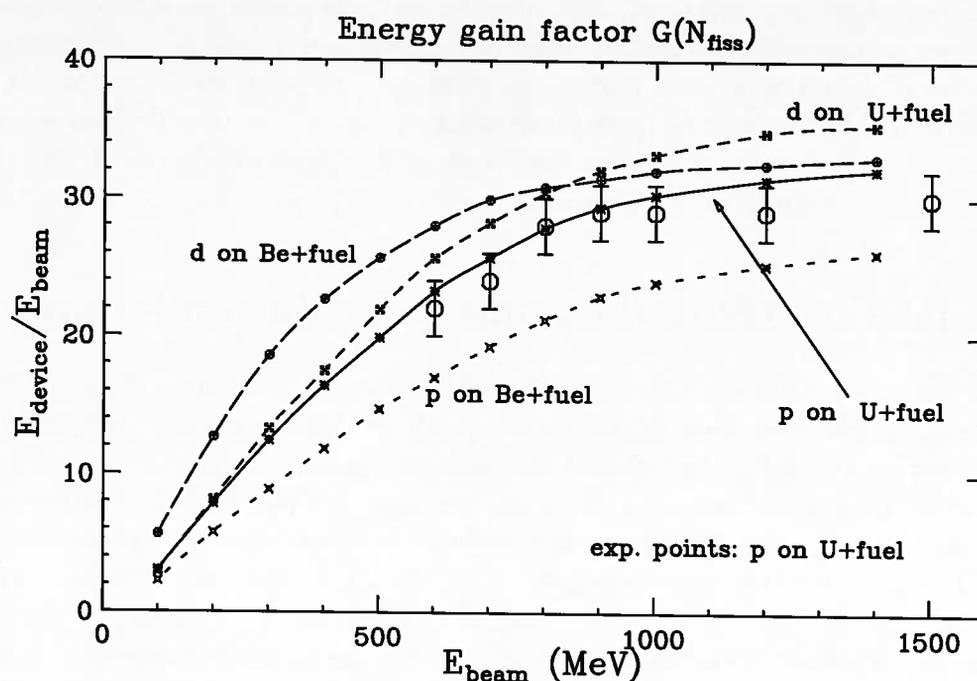


FIG. 4.4 – Gain d'énergie moyen calculé et mesuré [And95], c.-à-d. l'énergie produite par des fissions dans le dispositif divisé par l'énergie fournie par le faisceau, pour des réactions induites par protons (p) et deutérons (d) sur différentes cibles de spallation (Be ou U) à l'intérieur du même combustible (fuel) en fonction de l'énergie incidente totale (voir le texte pour les détails) [Rid98a].

gie du faisceau incident (p ou d) et de deux cibles différentes de spallation (Be ou U) à l'intérieur du même combustible (mélange d'uranium et d'eau). Dans la même figure, nous traçons également les points expérimentaux avec des barres d'erreur de [And95], qui dans notre notation devrait être comparé à la courbe « p sur U+fuel ». Malgré les simplifications faites dans notre géométrie, nous avons obtenu un accord raisonnable avec les données expérimentales ; la surestimation de 5%-10% étant produite probablement parce qu'aucune perte de neutrons dans les matériaux de construction n'a été considéré dans nos calculs. En outre, nos valeurs prévues

pour des deutérons sur la combinaison de cible de Be+fuel (voir la courbe « d sur Be+fuel ») indiquent que l'amplificateur d'énergie pourrait donc être mis en oeuvre avec des énergies de faisceau de deutérons de 400MeV-800MeV, c.-à-d. des énergies incidentes de 400MeV inférieures à celles suggérées dans [And95] pour le faisceau de protons, en donnant toujours un facteur de gain d'énergie comparable.

Il pourrait y avoir davantage de cibles primaires de métal léger par rapport aux cibles de métal lourd. Dans le cas de cible de métal léger + cible de métal lourd, la chaleur est répartie sur une plus grande profondeur, et une grande partie de la puissance de faisceau est reportée dans une cible secondaire par les neutrons de grande énergie. Ces neutrons pénètrent l'assemblage d'uranium avec une efficacité bien meilleure en ayant environ une voie d'accès libre de 10cm en moyenne pour interagir, ainsi la combustion nucléaire du combustible devrait être plus homogène.

Finalement, si on projette de construire un système prototype sous-critique avec une source de neutrons de haute énergie ou un réacteur piloté par accélérateur, la séparation d'une cible en deux parties, en principe indépendantes, à savoir : la cible de spallation et le support de multiplication, pourrait laisser plus de liberté dans le choix d'un matériel pour la cible de spallation et des fenêtres séparant l'assemblage du combustible et du liquide réfrigérant.

### 4.3 Radioactivité dans une cible de spallation

Des quantités substantielles de radionucléides seront produites dans la cible de spallation, en plus des déchets radioactifs produits dans le support multipliant de l'amplificateur d'énergie. Le procédé de spallation a pour conséquence une grande quantité de fragments, produits principalement par les particules d'énergie élevée. Le spectre de masse des fragments de spallation est fortement dépendant d'énergie [Rub95]. Aux basses énergies incidentes ( $\leq 40\text{MeV}$ ), le spectre de masse ( $A,Z$ ) se trouve près du noyau de père. Aux énergies intermédiaires ( $\sim 400\text{MeV}$ ) un dédoublement semblable à la fission se produit, dans laquelle un fragments de la masse très semblable sont formés. Aux énergies très élevées, le spectre de spallation change encore et tous ( $A,Z$ ) sont produits dans une distribution assez plate [Rub95].

La forme liquide de la cible de spallation de métal lourd semble être la plus appropriée, elle est le plus fréquemment utilisée dans les projets d'ADS considérés [Muk88, Bow92, Rub95, Par98, Sal99]. Dans ceux-ci et dans d'autres, la cible de spallation de Pb fondue ou de Pb-Bi liquide est étudiée, et la cible de spallation est directement reliée à la boucle de réfrigérant liquide du système entier.

Dans le paragraphe précédent nous avons prouvé que les cibles de métal léger et de métal lourd peuvent donner des facteurs d'amplification d'énergie comparables. Par conséquent, nous choisissons Pb liquide et Li liquide pour une étude comparative concernant la radioactivité accumulée dans la région de spallation. Nous notons que la réaction  $d+\text{Li}$  est très similaire à  $d+\text{Be}$  en ce qui concerne le rendement de neutrons, les distributions de neutrons angulaires et les distributions de neutrons en énergie [Sta54, Rid98a]. En outre, il a été également démontré récemment par le groupe de fusion d'ANL [Has96] que les grandes pompes de lithium liquide sont

capables de retirer plus de 10 MW de la puissance de faisceau incident ou jusqu'à 100 kW/cm<sup>2</sup> dans le cas des générateurs de neutrons (basées sur les réactions d+Li) pour les cibles de lithium liquide sans fenêtres. Ainsi, en principe, le lithium liquide offre d'intéressantes possibilités et semble être un bon choix pour la cible de spallation et pour le réfrigérant liquide de l'environnement sous-critique de l'EA.

La Figure 4.5 présente nos résultats dans les deux cas considérés, à savoir 1GeV p+Pb et 1GeV d+Li. Le système de codes couplés LAHET-MCNP-CINDER a été utilisé pour ces simulations. Nous calculons la radioactivité totale qui s'accumule dans la cible de spallation pendant l'exécution de l'ADS durant 1 an. Une fois le faisceau coupé, la cible est laissée refroidir jusqu'à 100 ans. Nous notons que dans nos simulations nous n'avons pas tenu compte de l'irradiation de la cible de spallation par le flux de neutrons intense provenant de l'environnement sous-critique d'ADS. Par conséquent, toute la radioactivité accumulée dans la cible de spallation est due seulement à l'interaction du faisceau avec elle même.

En bref, comme cela a été déjà mentionné dans [Rid99e, Rid99f], le scénario avec une cible de métal léger est beaucoup plus favorable. Tout d'abord, après 1 an d'irradiation avec le courant primaire de 10mA, le Pb liquide (considéré comme une cible liquide de spallation et réfrigérant en même temps) aura une radioactivité totale de quelques ordres de grandeurs plus grands que le Li liquide (comparez la ligne tirée épaisse comparée avec la ligne pleine épaisse après la coupure du faisceau dans la Figure 4.5). De plus, 100 ans après que le faisceau soit coupé, la radioactivité totale dans le cas du Pb sera toujours considérablement plus haute et demeurera à ce niveau encore plus longtemps (par exemple  $T_{\frac{1}{2}}(^3\text{H})=12.33$  ans de d+Li contre  $T_{\frac{1}{2}}(^{205}\text{Pb})=1.53 \cdot 10^7$  ans de p+Pb). Enfin (et assez étonnamment), nous avons constaté que la contribution de la radioactivité du tritium <sup>3</sup>H est presque identique pour les deux cas considérés (voir la ligne tirée mince comparée avec la ligne pleine mince dans la même figure).

Des conclusions semblables peuvent être tirées si la période d'irradiation de la cible de spallation est de 10 ans au lieu d'1 an. Nos résultats sont présentés dans la Figure 4.6. Un temps d'irradiation plus long a pour conséquence des niveaux de radioactivité plus élevés dans les deux cibles de spallation examinées. La seule différence remarquable est que le tritium provenant de la réaction de d+Li est maintenant d'un facteur 5 plus grand que dans le cas de p+Pb. Nous notons, que le contenu du matériau initial a changé considérablement en quelques années d'irradiation, et que d'autres canaux de réaction de production et/ou de destruction de tritium deviennent ouverts. D'autre part, le tritium est toujours la seule source de radioactivité d'une longue durée dans le cas de la cible de spallation de métal léger (voir le Tableau 4.3).

Au contraire de la cible de métal léger, il y a un nombre énorme de produits radioactifs de spallation provenant de Pb liquide. Nous détaillons nos prévisions dans les Tableaux 4.4 et 4.5. Ces produits de spallation peuvent être divisés en deux groupes: (a) ceux qui restent à l'intérieur d'une cible fondue de spallation et (b) ceux qui sont des gaz ou qui sont volatils et qui seront localisés dans le gaz remplissant l'équipement principal. Nous notons également que certains des produits

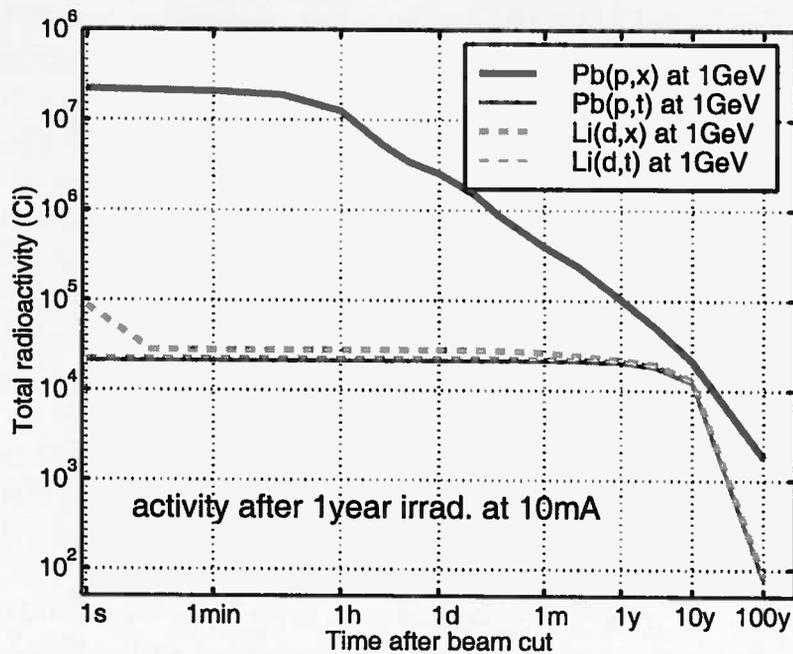


FIG. 4.5 – Le  $^{208}\text{Pb}$  liquide (ou le  $^7\text{Li}$  liquide) est irradié avec le faisceau de 10mA de p (ou d) de 1GeV (10MW) durant 1 année; après la coupure de faisceau, le temps de refroidissement s'étend jusqu'à 100 ans. La cible de spallation est un cylindre, de longueur de 120cm et de diamètre de 46cm, dans les deux cas [Rid99f].

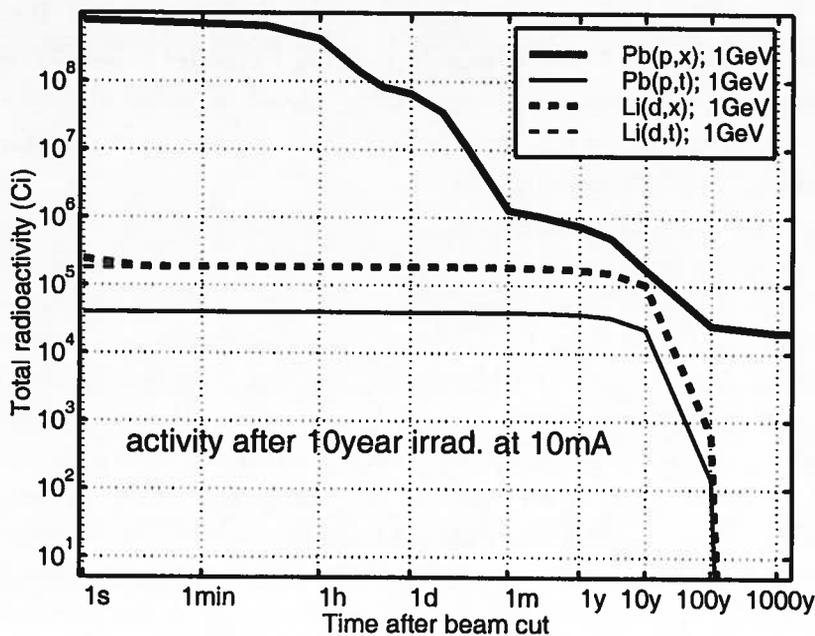


FIG. 4.6 – Le  $^{208}\text{Pb}$  liquide (ou le  $^7\text{Li}$  liquide) est irradié avec le faisceau de 10mA de p (ou d) de 1GeV (10MW) durant 10 années; après la coupure de faisceau, le temps de refroidissement s'étend jusqu'à 1000 ans. La cible de spallation est un cylindre, de longueur de 120cm et de diamètre de 46cm, dans les deux cas.

### 4.3. Radioactivité dans une cible de spallation

Isotope	$T_{1/2}$	Decay Mode	Rem. activ. after 1s	Rem. activ. after 1d	Rem. activ. after 10 <sup>2</sup> y	Rem. activ. after 10 <sup>3</sup> y
<sup>3</sup> H	12.33y	$\beta-$	1.8·10 <sup>5</sup> Ci	1.8·10 <sup>5</sup> Ci	6.5·10 <sup>2</sup> Ci	–
<sup>6</sup> He	0.81s	$\beta-$	6.0·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>8</sup> Li	0.84s	$\beta-, \alpha$	2.7·10 <sup>1</sup> Ci	–	–	–
<sup>7</sup> Be	53.29d	$\epsilon$	5.1·10 <sup>3</sup> Ci	5.1·10 <sup>3</sup> Ci	–	–
total	–	–	2.45·10 <sup>5</sup> Ci	1.85·10 <sup>5</sup> Ci	6.52·10 <sup>2</sup> Ci	–

TAB. 4.3 – Le cylindre de <sup>7</sup>Li liquide, de longueur de 120cm et de diamètre de 46cm, est irradié avec le faisceau de 10mA de  $d$  de 1GeV (10MW) pendant 10 années ; après la coupure de faisceau, un certain nombre de radionucléides est produit résultant de la radioactivité restante après le temps de refroidissement respectivement 1 s, 1 jour, 100 ans et 1000 ans.

de spallation peuvent être « incinérés » par le bombardement de neutrons.

Dans le premier cas (a), un grand nombre d'éléments se formeront avec les composés inter-métallique de Pb. Quelques éléments se combineront chimiquement avec le Pb et demeureront dissous. Plusieurs éléments, principalement les isotopes de Pb, resteront métalliques mais ont une grande solubilité dans Pb, et donc seront conservés. Enfin quelques éléments ont un point de fusion très élevé et vraisemblablement demeureront également emprisonnés à l'intérieur du réfrigérant liquide.

Dans le deuxième cas (b), il y a encore quelques sous-groupes : c'est certainement le cas de : (1) tritium et gaz rares (nobles), à savoir quelques isotopes de *Ar*, *Kr*, *Xe* ; (2) des traces de quelques éléments auront une teneur significative de vapeur à la température de fonctionnement de l'EA, à savoir quelques isotopes *Zn*, *As*, *I*, *Cs* et les éléments principaux que sont les isotopes de *Tl* et de *Hg*.

Dans [Rub95], il est estimé que la radio-toxicité des produits de spallation est négligeable : au début il est d'environ 10<sup>-3</sup> de toute la radio-toxicité produite par l'EA. D'autre part, à l'extrémité du dépôt les effets de <sup>194</sup>Hg produit dans la cible de spallation excéderont toutes autres contributions pendant environ 2000 ans. Nous notons également que, dans la conception actuelle [Rub95], le Pb fondu dans la région de la cible est directement mélangé au grand volume (~1,000m<sup>3</sup>) du Pb fondu qui sert en même temps de réfrigérant liquide principal.

Par conséquent, les éléments qui demeurent à l'intérieur du liquide sont en grande partie dispersés, et ils suivront le destin du Pb au moment du désarmement final de l'installation. Les auteurs de [Rub95] remarquent finalement l'existence d'un autre isotope de Pb, <sup>205</sup>Pb ( $T_{1/2}=1.33 \cdot 10^7$ ans), qui est abondamment produit par capture de neutron par le <sup>204</sup>Pb. En fait, nos prévisions confirment ce résultat comme le montre le Tableau 4.5. Par chance, <sup>205</sup>Pb est plutôt inoffensif, car malgré un temps de vie très long il se détruit par "K-conversion" avec une perte d'énergie de 51 keV la plupart du temps sous forme de neutrinos.

Nous ajoutons que des évaluations plus récentes de la radio-toxicité des cibles liquides du Pb et Pb-Bi mentionnés par Levanov *et al.* [Lev99] ne sont pas aussi optimistes dans le même contexte que ci-dessus. L'irradiation d'une cible de métal

Isotope	$T_{1/2}$	Decay Mode	Rem. activ. after 3d	Rem. activ. after 10 <sup>1</sup> y	Rem. activ. after 10 <sup>2</sup> y	Rem. activ. after 10 <sup>3</sup> y
<sup>3</sup> H	12.33y	$\beta-$	$4.0 \cdot 10^4$ Ci	$2.3 \cdot 10^4$ Ci	$1.4 \cdot 10^2$ Ci	–
<sup>39</sup> Ar	269y	$\beta-$	$1.9 \cdot 10^2$ Ci	$1.4 \cdot 10^2$ Ci	$1.4 \cdot 10^1$ Ci	–
<sup>63</sup> Ni	100.1y	$\beta-$	$3.0 \cdot 10^2$ Ci	$2.8 \cdot 10^2$ Ci	$1.5 \cdot 10^2$ Ci	$2.9 \cdot 10^{-1}$ Ci
<sup>85</sup> Kr	3934.4d	$\beta-$	$3.5 \cdot 10^2$ Ci	$1.8 \cdot 10^2$ Ci	0.5Ci	–
<sup>90</sup> Sr	28.78y	$\beta-$	$2.3 \cdot 10^3$ Ci	$4.5 \cdot 10^2$ Ci	$4.9 \cdot 10^1$ Ci	–
<sup>90</sup> Y	64.1h	$\beta-$	$7.1 \cdot 10^2$ Ci	$4.5 \cdot 10^2$ Ci	$4.9 \cdot 10^1$ Ci	–
<sup>93</sup> Zr	$1.53 \cdot 10^6$ y	$\beta-$	$2.2 \cdot 10^1$ Ci	$2.2 \cdot 10^1$ Ci	$2.2 \cdot 10^1$ Ci	$2.2 \cdot 10^1$ Ci
<sup>95</sup> Zr	64.02d	$\beta-$	$4.3 \cdot 10^4$ Ci	$3.1 \cdot 10^{-1}$ Ci	–	–
<sup>91</sup> Nb	680y	$\epsilon$	$2.1 \cdot 10^2$ Ci	$2.1 \cdot 10^2$ Ci	$1.9 \cdot 10^1$ Ci	7.6Ci
<sup>93</sup> Nb	16.13y	IT	$1.4 \cdot 10^2$ Ci	$1.0 \cdot 10^2$ Ci	$4.5 \cdot 10^1$ Ci	$4.0 \cdot 10^1$ Ci
<sup>93</sup> Mo	4000y	$\epsilon$	$2.7 \cdot 10^1$ Ci	$2.7 \cdot 10^1$ Ci	$2.7 \cdot 10^1$ Ci	$2.2 \cdot 10^1$ Ci
<sup>99</sup> Tc	$2.1 \cdot 10^5$ y	$\beta-$	$2.0 \cdot 10^1$ Ci	$2.0 \cdot 10^1$ Ci	$2.0 \cdot 10^1$ Ci	$1.9 \cdot 10^1$ Ci
<sup>148</sup> Gd	74.6y	$\alpha$	$3.6 \cdot 10^1$ Ci	$3.2 \cdot 10^1$ Ci	$1.4 \cdot 10^1$ Ci	$3.3 \cdot 10^{-3}$ Ci
<sup>157</sup> Tb	99y	$\epsilon$	$1.5 \cdot 10^2$ Ci	$1.4 \cdot 10^2$ Ci	$9.1 \cdot 10^1$ Ci	1.4Ci
<sup>158</sup> Tb	180y	$\epsilon, \beta-$	$1.4 \cdot 10^1$ Ci	$1.4 \cdot 10^1$ Ci	9.0Ci	0.1Ci
<sup>166</sup> Lu	2.65min	$\epsilon$	$1.2 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>168</sup> Lu	5.5min	$\epsilon$	$1.5 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>171</sup> Lu	8.24d	$\epsilon$	$2.0 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>172</sup> Lu	6.7d	$\epsilon$	$2.0 \cdot 10^4$ Ci	$4.7 \cdot 10^2$ Ci	–	–
<sup>173</sup> Lu	1.37y	$\epsilon$	$2.1 \cdot 10^4$ Ci	$1.4 \cdot 10^2$ Ci	–	–
<sup>172</sup> Hf	1.87y	$\epsilon$	$1.9 \cdot 10^4$ Ci	$4.7 \cdot 10^2$ Ci	–	–
<sup>175</sup> Hf	70d	$\epsilon$	$1.9 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>177</sup> Ta	56.56h	$\epsilon$	$1.4 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>178</sup> Ta	9.31min	$\epsilon$	$3.0 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>179</sup> Ta	1.82y	$\epsilon$	$3.1 \cdot 10^4$ Ci	$6.9 \cdot 10^2$ Ci	–	–
<sup>178</sup> W	21.6d	$\epsilon$	$3.0 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>181</sup> W	121.2d	$\epsilon$	$4.1 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>182</sup> Re	64.0h	$\epsilon$	$2.9 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>183</sup> Re	70.0d	$\epsilon$	$4.7 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>185</sup> Os	93.6d	$\epsilon$	$5.1 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>188</sup> Ir	41.5h	$\epsilon$	$3.8 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>189</sup> Ir	13.2d	$\epsilon$	$3.8 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>188</sup> Pt	10.2d	$\epsilon$	$3.2 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–
<sup>191</sup> Pt	2.96d	$\epsilon$	$3.1 \cdot 10^4$ Ci	–	–	–

TAB. 4.4 – Le cylindre de <sup>208</sup>Pb liquide, de longueur de 120cm et diamètre de 46cm, est irradié avec le faisceau de 10mA de p de 1GeV (10MW) pendant 10 années; après la coupure de faisceau, un certain nombre de radionucléides est produit résultant de la radioactivité restante après le temps respectivement de 1 s, 1 jour, 100 ans et 1000 ans de refroidissement. Nous avons choisi les isotopes avec l'activité  $\geq 10^4$  Ci après 3 jours de refroidissement ou avec l'activité  $\geq 10^0$  Ci après 100 ans de refroidissement. Ce Tableau est continué dans le Tableau 4.5.

### 4.3. Radioactivité dans une cible de spallation

Isotope	$T_{1/2}$	Decay Mode	Rem. activ. after 3d	Rem. activ. after 10 <sup>1</sup> y	Rem. activ. after 10 <sup>2</sup> y	Rem. activ. after 10 <sup>3</sup> y
<sup>193</sup> Pt	50y	$\epsilon$	1.2·10 <sup>4</sup> Ci	1.1·10 <sup>4</sup> Ci	3.0·10 <sup>3</sup> Ci	1.2·10 <sup>-2</sup> Ci
<sup>194</sup> Au	38.02h	$\epsilon$	3.2·10 <sup>3</sup> Ci	8.2·10 <sup>2</sup> Ci	7.3·10 <sup>2</sup> Ci	2.2·10 <sup>2</sup> Ci
<sup>195</sup> Au	6.183d	$\epsilon, \beta-$	9.5·10 <sup>4</sup> Ci	1.1·10 <sup>-1</sup> Ci	–	–
<sup>194</sup> Hg	520y	$\epsilon$	8.3·10 <sup>2</sup> Ci	8.2·10 <sup>2</sup> Ci	7.3·10 <sup>2</sup> Ci	2.2·10 <sup>2</sup> Ci
<sup>197</sup> Hg	64.14h	$\epsilon$	2.4·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>203</sup> Hg	46.612d	$\beta-$	3.3·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>200</sup> Tl	21.1h	$\epsilon$	6.1·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>201</sup> Tl	72.9h	$\epsilon$	1.3·10 <sup>5</sup> Ci	–	–	–
<sup>202</sup> Tl	12.23d	$\epsilon$	9.0·10 <sup>4</sup> Ci	4.9·10 <sup>1</sup> Ci	4.9·10 <sup>1</sup> Ci	4.8·10 <sup>1</sup> Ci
<sup>204</sup> Tl	3.78y	$\epsilon, \beta$	6.8·10 <sup>5</sup> Ci	1.1·10 <sup>5</sup> Ci	7.4·10 <sup>-3</sup> Ci	–
<sup>200</sup> Pb	21.5h	$\epsilon$	1.3·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>202</sup> Pb	5.25·10 <sup>3</sup> y	$\epsilon, \alpha$	4.9·10 <sup>1</sup> Ci	4.9·10 <sup>1</sup> Ci	4.9·10 <sup>1</sup> Ci	4.8·10 <sup>1</sup> Ci
<sup>205</sup> Pb	1.53·10 <sup>7</sup> y	$\epsilon$	1.9·10 <sup>4</sup> Ci	1.9·10 <sup>4</sup> Ci	1.9·10 <sup>4</sup> Ci	1.9·10 <sup>4</sup> Ci
<sup>205</sup> Bi	15.31d	$\epsilon$	2.4·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>206</sup> Bi	6.24d	$\epsilon$	1.8·10 <sup>4</sup> Ci	–	–	–
<sup>207</sup> Bi	31.55y	$\epsilon$	7.1·10 <sup>3</sup> Ci	5.7·10 <sup>3</sup> Ci	8.2·10 <sup>2</sup> Ci	3.2·10 <sup>-6</sup> Ci
total	–	–	3.52·10 <sup>7</sup> Ci	1.73·10 <sup>5</sup> Ci	2.58·10 <sup>4</sup> Ci	2.02·10 <sup>4</sup> Ci

TAB. 4.5 – Suite du Tableau 4.4. Le cylindre de <sup>208</sup>Pb liquide, de longueur de 120cm et diamètre de 46cm, est irradié avec le faisceau de 10mA de p de 1GeV (10MW) pendant 10 années ; après la coupure de faisceau, un certain nombre de radionucléides est produits résultant de la radioactivité restante après le temps de respectivement 1 s, 1 jour, 100 ans et 1000 ans de refroidissement. Nous avons choisi les isotopes avec l'activité  $\geq 10^4$  Ci après 3 jours de refroidissement ou avec l'activité  $\geq 10^0$  Ci après 100 ans de refroidissement.

liquide avec des hadrons d'énergie élevée dans l'ADS cause la formation supplémentaire de radionucléides, qui ne sont pas présents dans un réacteur conventionnel. Les auteurs concluent que la radio-toxicité du Pb liquide, et du Pb-Bi liquide en particulier, est comparable à celle provoquée par l'assemblage entier de l'ADS :

a) il est montré qu'après un temps de refroidissement comparativement long ( $> 10$  ans), la radio-toxicité volumétrique d'un réfrigérant liquide d'un circuit de cible est beaucoup plus haute que la radio-toxicité du circuit primaire du réacteur nucléaire ;

b) la contribution de la cible de spallation à la radio-toxicité des radionucléides à la fois gazeux et volatiles est estimée à, au moins, 90% (au cas où la cible et la couverture d'uranium ont le même circuit de refroidissement que Pb-Bi).

En fait, nous obtenons une similitude raisonnable avec les résultats fournis par Yefimov *et al.* [Yef99] (voir le Tableau 4.6). Le plus grand désaccord de nos prévisions est lié à la radioactivité des isotopes de Po. Ceci pourrait s'expliquer par la différence de contenu du matériel initial de cible de spallation, c.-à-d. les cibles fondues de Pb-Bi deviennent beaucoup plus des isotopes de Po comparé aux cibles fondues de Pb

Isotopes	Activity (Ci/kg) Ref.[Yef99]	Activity (Ci/kg) (this work)
Po	1.1	0.03
Hg	35	28
Kr, Xe, Br I, Rb, Cs	3	1.2

TAB. 4.6 – Radioactivité de certains radio-isotopes avec  $T_{1/2} \geq 10$  jours à l'intérieur de la cible de spallation pendant l'exécution de l'EA : la cible liquide de spallation de  $^{208}\text{Pb}$  est irradiée à 1MW avec les protons de 1GeV (ce travail) à comparer à la cible liquide de spallation de Pb-Bi irradiée à 1MW avec les protons de 0.8GeV [Yef99].

pur [Kho99].

En bref, il y a un certain nombre de nouveaux problèmes liés à l'ADS qui n'est pas apparu dans les centrales nucléaires (NPP) avec le liquide réfrigérant fondu de Pb-Bi. Il semble que les impuretés accumulées dans le réfrigérant liquide pendant l'exécution d'ADS peuvent non seulement changer la structure du réfrigérant liquide (ce dont nous discutons ci-dessus), mais influencent également essentiellement les propriétés de rayonnement-chimie de réfrigérant liquide. La radioactivité de réfrigérant liquide dans l'ADS peut excéder l'activité de réfrigérant liquide dans le NPP conventionnel approximativement par un ordre de grandeur [Orl99]. L'activité de gaz de couverture peut être plus grande de plusieurs ordres de grandeur. Ce fait complique extrêmement la réalisation de toutes les expériences sur la technologie de réfrigérant liquide. En fait, il a été impossible de retirer les impuretés électro-positives (Au, Ag, Hg, etc.) du Pb fondu [Orl99]. Ce transfert de telles impuretés du réfrigérant liquide de NPP n'était pas urgent et le développement approprié a commencé à être effectué tout récemment. Jusqu'ici, il y a peu ou pas d'expérience utilisant du réfrigérant de Pb liquide dans des réacteurs (excepté des applications militaires en ex URSS). Par exemple, l'utilisation du Pb fondu exige d'autres études pour pallier à la corrosion.

## 4.4 Conclusion

Les résultats sur des dispositifs de production de neutrons, dont nous avons discuté au chapitre précédent, ont fourni des caractéristiques utiles pour le choix de la cible de spallation (métal lourd ou léger) et de la particule incidente (proton ou deutéron) pour un combustible sous-critique, pour lequel quatre combinaisons ont été étudiées : les protons ou les deutérons bombardant la cible de spallation d'U ou Be placée à l'intérieur du même combustible fissible. Nous avons constaté que le dispositif d'"U+fuel" donne un rendement de neutrons de 5 à 10% plus grand par particule incidente pour des deutérons que pour des protons à même énergie totale. Dans le cas des deutérons, la cible de "Be+fuel" a fourni presque le même rendement de neutrons que l'"U+fuel". Maintenant, la chaleur est répartie sur une profondeur beaucoup plus grande puisque des neutrons plus énergétiques sont produits dans la

cible de spallation de Be. Nous avons également prédit que le gain optimum d'énergie dans le système hybride modelé peut être atteint aux énergies incidentes inférieures si des deutérons sont utilisés au lieu de protons et une cible de métal léger au lieu de métal lourd utilisée comme cible de spallation ("d sur Be+fuel"). Cette énergie inférieure devrait avoir pour conséquence des intensités de faisceau primaire plus élevées, un coût réduit du système et faciliter les problèmes de radioprotection.

En opposition aux projets prévoyant la cible (et le réfrigérant) de métaux lourds, nous avons retenu du Li liquide pour la cible (et le réfrigérant). Le Li avait une radioactivité accumulée de quelques ordres de grandeur inférieure à celle de la cible de Pb. Contrairement aux cibles de métal lourd, aucun produit de spallation ayant des demi vies plus longues que 12.33 ans n'est produit (ici nous nous référons à la production de tritium) dans le cas du lithium aussi, il y a une absence complète de nucléides subissant la radioactivité  $\alpha$  (isotopes Pb et de Po). Nous notons qu'une approche semblable a été récemment étudiée par Khorasanov *et al.* [Kho99], où les auteurs suggèrent le Sn liquide comme cible (et le réfrigérant) qui est plus légère et semble avoir de meilleures propriétés thermiques, physiques, et écologiques que le plomb ou le bismuth liquide [Kho99].

Les conclusions actuelles seront aussi valables, à notre avis, qualitativement pour d'autres configurations; cependant, on toujours doit tenir compte du n dispositif précis pour une optimisation réaliste. En outre, les résultats donnés dans ce travail devraient être confirmés par de nouvelles données expérimentales dans le domaine inférieure à 600MeV pour des protons et de 200MeV jusqu'à 1200MeV pour des deutérons.

Dans la mesure où nous concluons que les deutérons semblent être meilleurs que les protons pour les applications évoquées dans ce travail, nous devons dire quelques mots relatifs à l'accélération des deutérons comparée à celle des protons. Une comparaison plus quantitative dépasse le travail actuel. En général, les cyclotrons seraient moins appropriés pour les deutérons que pour les protons parce que la limite de champ magnétique est 1/2 de l'énergie totale pour les deutérons par rapport aux protons, selon que le cyclotron est conçu initialement pour les p ou d. Par exemple, un aimant de 600MeV consacré au p fournirait seulement 300MeV pour un d comme il découle de la constante  $B\rho = (mv)/Q = \sqrt{2mE}/Q$  et  $m_d = 2m_p$ . Cependant, un linac donne la même énergie totale pour un p ou un d pour une tension donnée de linac. Aussi longtemps que les problèmes d'efficacité de source ou de radioprotection sont concernés, il ne devrait également y avoir aucune différence principale entre p et d aux énergies supérieures à, par exemple, 50MeV. Ceci semble être prouvé avec succès par les équipements déjà en service, qui peuvent accélérer des faisceaux de p et de d d'intensités semblables, par exemple RIKEN (Saitama, Japon), KVI (Gröningen, Pays Bas), NAC (Faure, Afrique du Sud). Fianlement, il a été également démontré récemment par le groupe de fusion d'ANL [Has96] que les générateurs de neutrons (par l'intermédiaire des réactions de d+Li) pourraient fonctionner avec une puissance de faisceau de deutérons jusqu'à 10 MW.



# Chapitre 5

## Production de Faisceaux d'Ions Radioactifs (RIBs)

### 5.1 Introduction

L'augmentation de la puissance disponible pour les faisceaux primaires impose que les nouvelles cibles de RIBs soient conçues pour traiter des densités de puissance élevées. Ce problème est au coeur d'un certain nombre de concepts de production de RIBs dans divers laboratoires. Une solution pertinente à ce problème, proposée par le groupe de recherche d'ANL [No193], est de découpler la dissipation thermique de la production des nucléides et de leur sortie de la cible-source. Ceci peut être réalisé en arrêtant le faisceau primaire dans une cible de conversion pour produire un flux intense de neutrons qui irradie une cible secondaire de production de RIBs située derrière la première [Con95, R&D98]. En bref, cette méthode représente un autre intérêt pour la production de neutrons – la possibilité de produire des faisceaux d'ions radioactifs (RIBs) par fission induite par neutrons [Pia94, Con95, R&D98]. Avant de discuter de cette utilisation particulière des neutrons en détail (dans le prochain paragraphe), nous présentons brièvement ci-dessous différentes méthodes de production des RIBs.

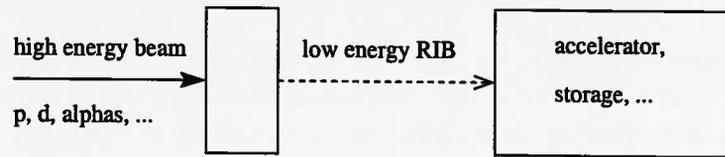
Une augmentation significative des intensités de RIBs ouvrirait un accès à de nouveaux domaines de la physique. On peut considérer qu'il sera possible d'utiliser des faisceaux de plusieurs MW, c.-à-d. 3 ordres de grandeur supérieure à ceux actuellement utilisés ou programmés auprès des différents équipements de RIBs (tous en-dessous de la limite de puissance de 10kW) [Mit98]. Ceci permettrait d'avoir accès à des sections efficaces de réaction, de 10mb à quelques  $\mu\text{b}$ . Les programmes de R&D pour développer les faisceaux de haute intensité (quelques MW) ont démarré. Ils sont en partie stimulés par d'autres projets liés aux systèmes pilotés par accélérateur (ADS) comme les réacteurs hybrides, la production du tritium, etc. Malheureusement, une augmentation de l'intensité primaire du faisceau ne signifie pas nécessairement que l'augmentation de l'intensité du RIB secondaire sera réalisée, comme il est démontré dans [Put97, Ler98]. Les auteurs argumentent que le rendement maximum sera obtenu pour une puissance limitée, et qu'il pourrait y avoir des

limitations importantes dues à la puissance admissible par une cible [Put97, Ler98].

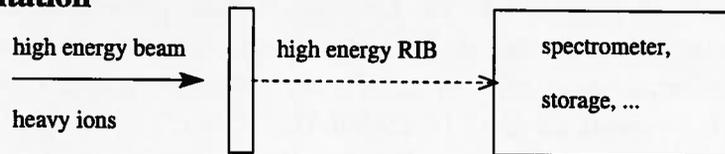
La Figure 5.1 (partie supérieure) illustre différentes méthodes directes pour produire les faisceaux secondaires. La première est la méthode ISOL (Isotope Separation On Line), utilisée pour la première fois à Isolde au CERN. Comme déjà mentionné, il semble difficile de déposer beaucoup plus que 10kW dans la cible. La valeur maximale la plus élevée ( $\sim 24\text{kW}$ ) a été obtenue pour la cible RIST, testée thermiquement avec un chauffage. La deuxième méthode est la production de noyaux exotiques de haute énergie loin de la stabilité par fragmentation de faisceaux d'ions lourds, utilisée pour la première fois par LBNL, et intensivement utilisée avec les faisceaux de haute intensité au GANIL, RIKEN, MSU et GSI. Il est important de mentionner que ces équipements consacrent plus de la moitié de leur temps de faisceau pour la physique des RIBs. Les densités de puissance les plus élevées ont été obtenues au GANIL avec jusqu'à 1kW sur la cible [Mit98], et il semble ne pas y avoir de problème fondamental pour produire des faisceaux de dix kW avec une plus grande focalisation du faisceau et une cible tournante rapide. Cependant, dans ce cas particulier, les limitations principales seront la puissance maximum de faisceau des accélérateurs déjà en service, et par la suite des problèmes de radioprotection. La troisième méthode est basée sur la fission thermique induite par neutron, comme dans le projet PIAFE [Pia94]. Ici les limitations de puissance seront plus ou moins les mêmes que dans le premier cas, mais dans un environnement peut-être plus difficile, la source étant située près du centre d'un réacteur critique de haut flux de neutrons. Néanmoins, la limite supérieure (10kW) correspondrait à  $3 \cdot 10^{14}$  fissions par seconde. Dans le cas le plus favorable où les rapports d'embranchement serait de 3% et l'efficacité de transport des isotopes du réacteur interne à l'accélérateur externe, de 10% (p.e.  $^{91}\text{Kr}$  comme dans [Pia98]), les intensités de RIBs seraient de  $10^{12}$  particules par seconde, taux encore jamais atteint.

La Figure 5.1 (partie inférieure) sert d'exemple de sections efficaces de production des isotopes de Rb par les trois techniques différentes présentées ci-dessus, c.-à-d. par fission d' $^{238}\text{U}$  avec des protons de diverses énergies, avec des ions de  $^{12}\text{C}$  à 77MeV par nucléon et par fission d' $^{235}\text{U}$  avec des neutrons thermiques [Rav94]. On voit que les sections efficaces les plus élevées sont obtenues avec la fission thermique de l'uranium, suivie des réactions d'ions lourds dont les sections efficaces sont plus hautes que celles des réactions induites par protons. Il est à noter, cependant, que les sections efficaces seules sont insuffisantes pour choisir la réaction la mieux adaptée à la production de RIBs, bien que ce soit toujours un bon point de départ. Pour une comparaison plus réaliste des différentes méthodes, il est important de tenir compte de l'efficacité finale de la source d'ions utilisée, qui peut réduire considérablement, de 1 à 3 ordres de grandeur, l'intensité finale des RIBs. L'intensité primaire du faisceau est un autre paramètre essentiel dans ce contexte comme étudié ci-dessous.

## 1) ISOL



## 2) Fragmentation



## 3) Reactors

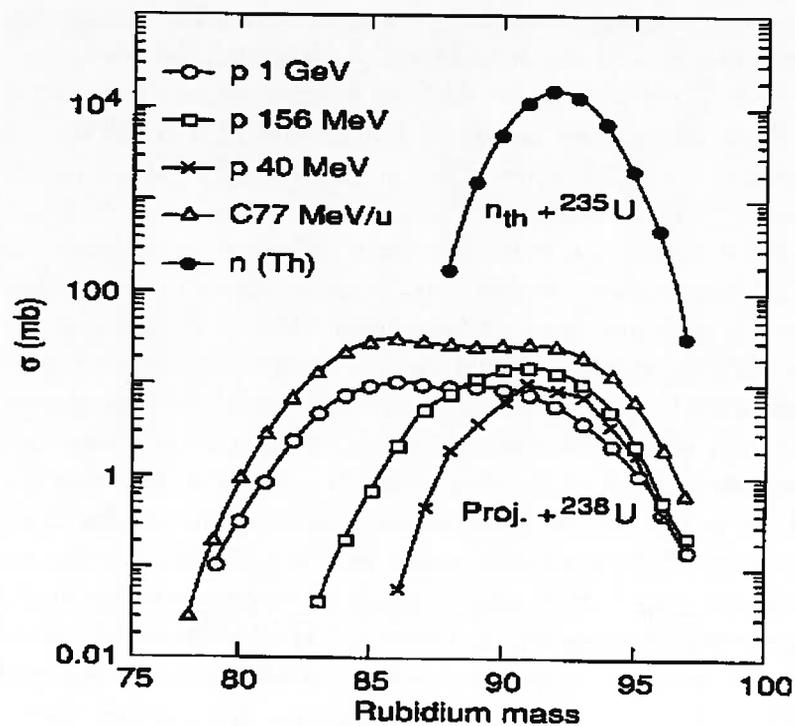
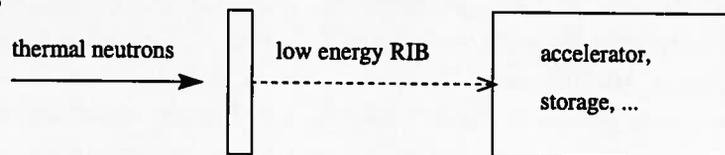


FIG. 5.1 – *Partie supérieure : méthodes directes pour la production de RIBs [Mit98].  
Partie inférieure : sections efficaces de production des isotopes de Rb par diverses réactions nucléaires [Rav94].*

## 5.2 Le projet SPIRAL Phase-II

Les considérations du sous-paragraphe précédent suggèrent qu'il pourrait être prometteur de rechercher des méthodes plus complexes, dans le but principal de découpler la chaleur et/ou la radioactivité produite par le faisceau primaire de la source d'ions qui produit le RIBs. Nous renvoyons le lecteur à la Ref. [Mit98] où quelques unes de ces méthodes sont mentionnées avec une puissance de faisceau primaire prévue allant jusqu'à 100kW. Ci-dessous nous présentons une étude d'un système particulier de production de RIBs comme le propose le groupe d'ANL [Nol93, Con95] et actuellement en étude comme future extension possible des faisceaux fournis par SPIRAL Phase-II au GANIL (SPIRAL-2 ci-après) [R&D98].

Les rendements de fission les plus élevés peuvent être obtenus à partir des réactions de fission de l'uranium. Si les fissions induites par neutrons thermiques, par neutrons du réacteur et par neutrons à 14MeV sont comparées [Rao79], il apparaît que les neutrons plus énergétiques donnent des rendements de fission plus grands d'un facteur 10-100 dans les queues de la distribution de masse des fragments de fission comme présenté dans la Figure 5.2. La section efficace de fission de l'uranium ( $^{238}\text{U}$ ) augmente également rapidement à des énergies de neutrons plus élevées (voir la Figure 5.3). Cependant, une augmentation de l'énergie du neutron incident ne mènerait pas nécessairement à des rendements plus grands de fission des isotopes riches en neutrons, qui sont les plus intéressants ici. Les conclusions suivantes ont été faites récemment par les auteurs de [Gom98], où les taux de production dans une cible mince des produits de fission riches en neutrons ont été estimés pour un intervalle en énergie des neutrons de quelques MeV à 100MeV. Il a été suggéré que les meilleurs taux d'isotopes riches en neutrons des éléments tels que Kr, Rb, Xe et Cs, sont émis de la fission d' $^{238}\text{U}$  induite par neutrons de 2-20MeV. [Gom98]. Il a également été conclu que les faisceaux de neutrons de haute énergie ont des taux intégrés comparables par élément, mais les distributions pointent vers les faibles nombres de neutrons. Ceci est vraisemblablement dû à une évaporation de neutrons plus élevée à l'étape de pré-équilibre et/ou à l'étape de fission du noyau composé.

Dans le système de cible combinée, des énergies incidentes plus élevées sont privilégiées afin de produire considérablement plus de neutrons dans la cible primaire. Car, comme on le montrera ci-dessous, le nombre de neutrons qui atteignent la cible secondaire de production n'est pas du tout une fonction linéaire de l'énergie de particules chargées incidentes. En outre, pendant la fission, induite par des neutrons plus énergétiques, plus de neutrons secondaires seront émis, et ceux-ci provoqueront des fissions secondaires supplémentaires dans la cible épaisse de production. Clairement, cet effet secondaire n'a pas été pris en considération dans [Gom98], où les taux dans une cible mince ont été étudiés. Finalement, nous devons noter que dans [Gom98] les taux induits par les neutrons rapides ont été moyennés à partir d'un spectre de neutrons rapides émis d'un réacteur. Ce n'est pas du tout comme le spectre de neutrons résultant, par exemple, de la réaction de 200MeV  $d+\text{Be}$ . Par conséquent, la contribution aux taux finaux de fission de neutrons rapides a été en quelque sorte sous-estimée dans [Gom98].

En bref, un compromis entre les deux conditions contradictoires, des énergies plus

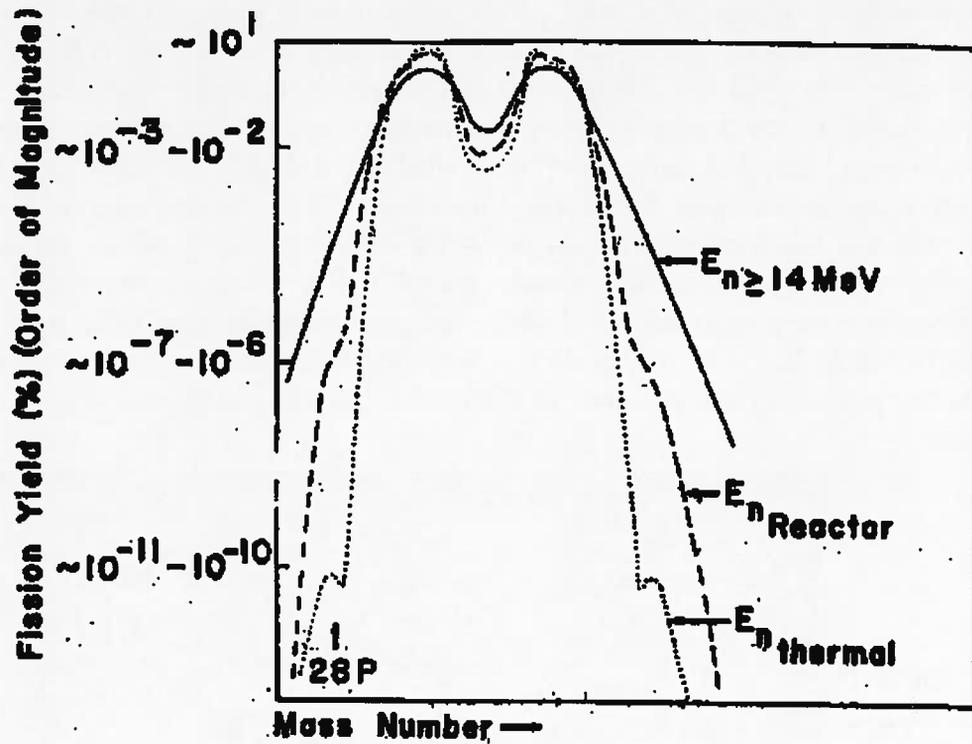


FIG. 5.2 – Effet de l'énergie des neutrons dans la distribution de masse de la fission. Les courbes pointillées, à tiret, et pleines correspondent respectivement, à la fission induite par neutrons thermiques, par neutrons du réacteur et par neutrons à 14 MeV [Rao79].

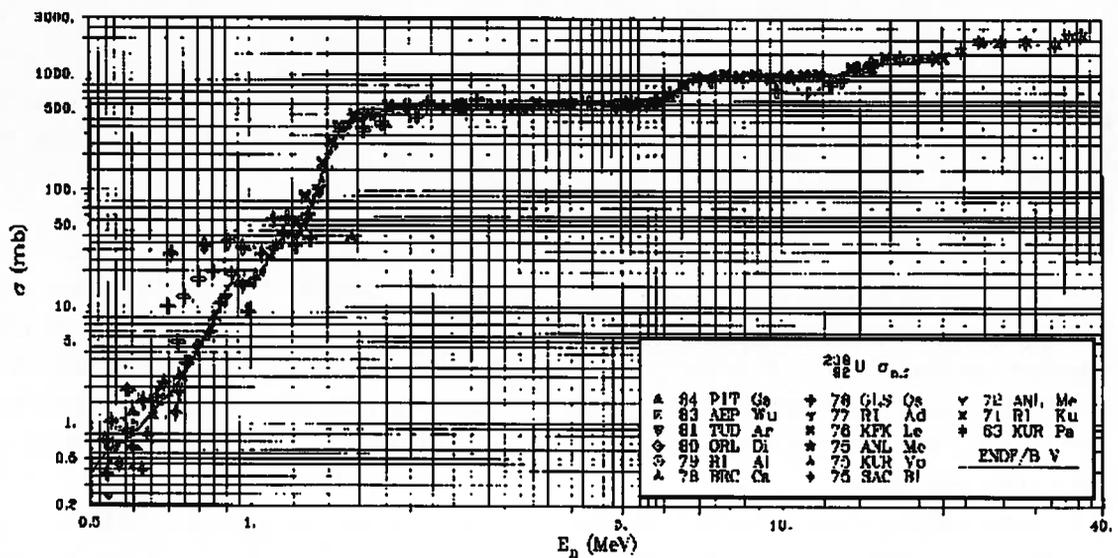


FIG. 5.3 – Sections efficaces de fission de l'uranium  $^{238}\text{U}$  en fonction de l'énergie de neutrons incidents [McI88].

élevées des projectiles primaires pour augmenter le taux de neutrons et des énergies inférieures des neutrons émis pour produire les noyaux les plus riches en neutrons comme discuté ci-dessus, doit être trouvé. Nous choisissons un faisceau primaire de deutérons et une cible de conversion en métal léger afin de créer une source efficace de neutrons de haute énergie (approximativement la moitié de l'énergie du deutéron incident) principalement émis vers l'avant [Rid98a, Rid98b]. (Ici nous nous référons également aux conclusions du Chapitre 3). De cette façon nous pouvons facilement rechercher une énergie optimale du projectile incident pour produire les meilleurs taux d'isotopes riches en neutrons dans une cible de production secondaire.

Le système de production de RIBs simplifié se compose d'un cylindre de béryllium arrêtant le faisceau (source de neutrons) et d'un cylindre d'uranium (cible de production) comme présenté dans la Figure 5.4 [Rid98b, Rid99d]. La géométrie de

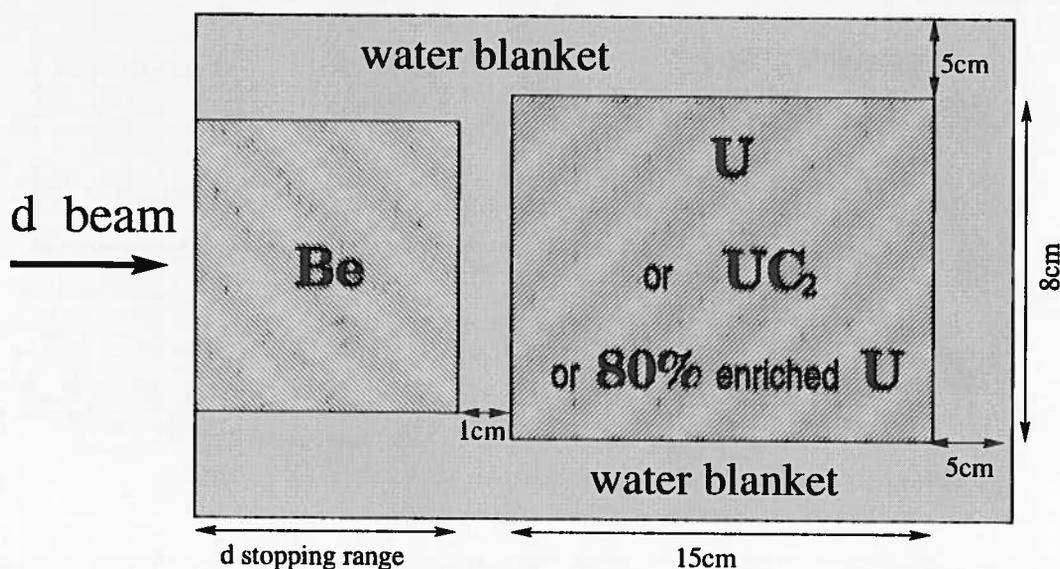


FIG. 5.4 – Une cible combinée pour la multiplication de neutrons et la production d'isotopes avec des deutérons incidents. Les éléments cylindriques de la cible préservent une symétrie le long de l'axe du faisceau.

la cible de production de RIBs a dû être choisie selon les critères contradictoires suivants: a) le volume de cible ne devrait être "pas trop grand" afin de diminuer les pertes de retard des rendements de fission de courte durée, et b) le volume de cible ne devrait être "pas trop petit" afin de diminuer un certain nombre de neutrons de haute énergie sortant de la cible. En d'autres termes, une voie d'accès libre moyenne de ces neutrons énergétiques devrait être, par exemple, 2 ou 3 fois plus petite que la taille de la cible.

Nous notons qu'au GANIL les énergies maximales vont jusqu'à 100MeV par nucléon. D'autre part, la validité des simulations avec LAHET pour des énergies de particules incidentes inférieures à 50MeV est plus qu'incertaine. Par conséquent, nous limitons nos calculs aux énergies de deutérons incidents d' $E_d=50\text{MeV}$ ,  $100\text{MeV}$ , et  $200\text{MeV}$  et changeons la longueur de la cible d'arrêt en béryllium en conséquence,

c.-à-d. la longueur  $l=1\text{cm}$ ,  $3\text{cm}$ , et  $10\text{cm}$ . Afin de réduire au minimum la perte de neutrons du système, et en même temps lui fournir un refroidissement, les cibles sont entourées d'une couverture cylindrique d'eau légère (voir la Figure 5.4). Notons que LAHET a été examiné avec succès contre les taux isotopiques de fission d'uranium dans un intervalle d'énergie semblable à celui indiqué au Chapitre 2 de ce travail ainsi que dans [Rid98b, Rid99f, Rid99e].

Nous simulons un faisceau parallèle de deutérons qui est uniformément distribué sur une ellipse. Les neutrons de basse énergie ( $E_n \leq 20\text{MeV}$ ) sont transportés par HMCNP jusqu'aux énergies thermiques, ainsi que les tables de produits de spallation de haute énergie, résultant du code LCS, qui sont utilisés par le code CINDER'90 pour calculer les taux finaux de la production d'isotopes dans la gamme complète des énergies des neutrons.

La production de neutrons dans la cible de béryllium augmente très brusquement en fonction de l'énergie du deutéron, c.-à-d. un facteur de 2 (ou 4) d'augmentation d'énergie correspond à un facteur 4 (ou 10) d'augmentation du taux total de neutrons comme présenté dans le Tableau 5.1 [Rid98a, Rid98b].

Dans cette région d'énergie, l'intensité du faisceau n'a pas pu compenser la production de neutrons aux basses énergies mais à la même puissance de faisceau. Par conséquent, l'énergie la plus élevée de  $200\text{MeV}$  (actuellement disponible au GANIL) est conseillée [Rid98b]. Dans la cible secondaire, le nombre de neutrons est proportionnel au nombre de neutrons dans la cible primaire; approximativement 35-45% de tous les neutrons produits dans le béryllium traversent la surface avant de la cible secondaire, où le nombre de neutrons est encore amplifié par les réactions  $(n,xn)$  et  $(n,f)$ . Le spectre en énergie des neutrons entrants est encore très important dans ce processus; plus les neutrons sont énergétiques, plus le nombre de fissions et de réactions  $(n,xn)$  est grand (voir la Ref. [Rid98b] pour une analyse plus détaillée).

Target	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	50MeV	100MeV	200MeV
in $^9\text{Be}$	1.848	0.083	0.318	0.993
in $^{238}\text{U}$	18.95	0.032	0.285	0.967
in $\text{UC}_2$	11.28	0.022	0.182	0.612

TAB. 5.1 – Production de neutrons dans une cible combinée ( $\text{Be}+^{238}\text{U}$  ou  $\text{Be}+\text{UC}_2$ ) avec des deutérons incidents de  $50\text{MeV}$ ,  $100\text{MeV}$ , et  $200\text{MeV}$  (voir la Figure 5.4). Les multiplicités de neutrons ( $M_n$ ) sont normalisées par deutéron incident.

Dans la fission d' $^{238}\text{U}$  par des neutrons d'un réacteur, la distribution de masse des produits de fission contient deux pics situés à  $A=85-105$  et à  $A=125-150$  (voir la Figure 5.2 [Rao79]). Entre ces deux pics, entre les masses  $A=105$  et  $A=125$ , la distribution a un minimum local. Pour un examen plus détaillé de la production d'isotopes dans l'uranium par des neutrons provenant de la cible primaire de béryllium, nous avons choisi des isotopes de Rb ( $Z=37$ ), de Cd ( $Z=48$ ) et de Cs ( $Z=55$ ) situés dans chacune des trois régions de la distribution de masse des produits de fission comme mentionné ci-dessus.

Les résultats de la production des isotopes à partir de l' $^{238}\text{U}$  avec trois énergies

différentes des deutérons incidents apparaissent dans la Figure 5.5, où les taux d'isotopes sont normalisés par deuteron incident. Comme prévu, les énergies incidentes

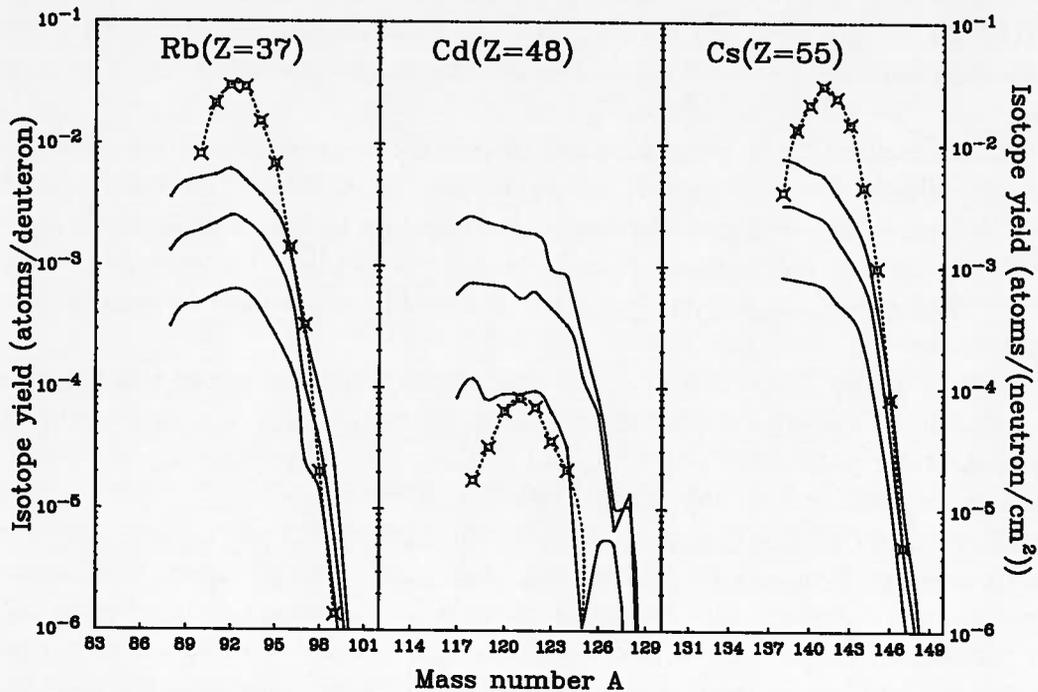


FIG. 5.5 – Distributions isotopiques de la production de Rb, de Cd et de Cs dans un système  $d+Be \rightarrow xn+U$  à 200MeV, à 100MeV et à 50MeV (courbes pleines en atomes par deuteron) (voir également la Figure 5.4), et dans un système  $n_{th}+^{235}U$  (courbes pointillées en atomes par neutron/cm<sup>2</sup>) comme dans [Pia94].

plus élevées génèrent des distributions d'isotopes légèrement plus larges (comparez en particulier les courbes de deutérons à 50MeV et à 200MeV). En même temps, au niveau des pics des distributions, l'augmentation de l'énergie incidente de 50MeV à 100MeV (ou à 200MeV) augmente la production des isotopes d'un facteur 4 (ou 8). Du côté riche (ou déficient) en neutrons ces différences sont semblables si on extrapole à partir des valeurs actuellement calculées. À partir des résultats ci-dessus, on peut conclure que :  $E_d=100\text{MeV}$  semble être une énergie incidente optimale pour la cible de production de RIBs considérée. L'augmentation en énergie de 100MeV à 200MeV, c.-à-d. d'un facteur 2, a donné une augmentation semblable de la production des isotopes. Ceci a pu également être réalisé avec les deutérons de 100MeV au lieu de 200MeV mais avec une intensité primaire de faisceau 2 fois plus élevée, c.-à-d. à la même puissance de faisceau. Au contraire, l'augmentation de l'énergie de 50MeV à 100MeV a eu pour conséquence une production des isotopes plus élevée d'un facteur 4, ce qui ne pourrait pas être compensé à la même puissance de faisceau primaire, p.e., des deutérons à 50MeV d'intensité  $2 \cdot I_0$  par rapport des deutérons à 100MeV d'intensité  $I_0$ .

Pour comparaison, dans la Figure 5.5 nous avons également inclus des distributions de production des isotopes (courbes pointillées) des fissions induites par neutron thermique dans 4g de  $^{235}\text{U}$  dispersé dans une matrice de graphite [Pia94].

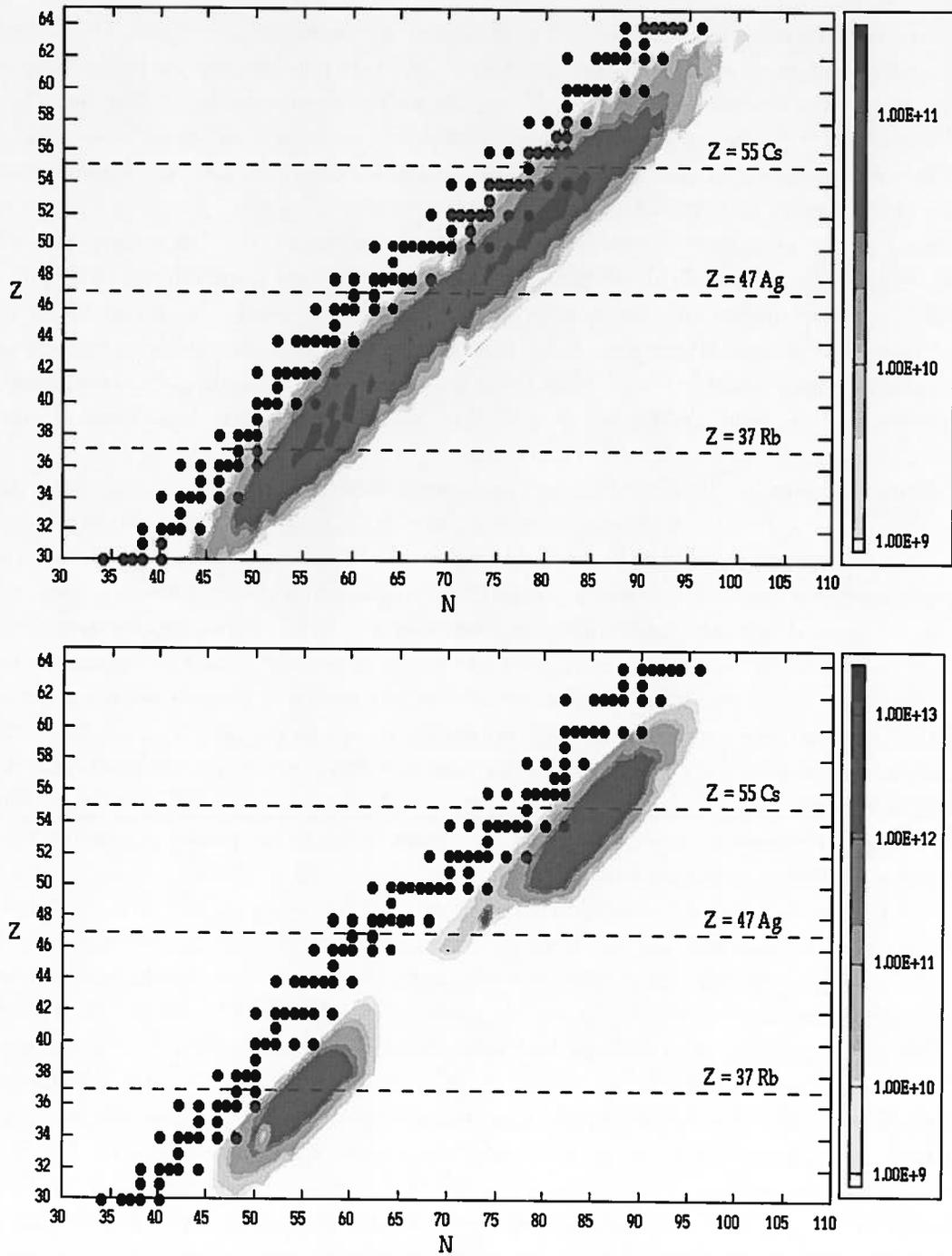


FIG. 5.6 – Comparaison des taux de fission dans le cas  $d+Be \rightarrow xn+^{238}U$  à 200MeV normalisé par  $1.9 \cdot 10^{14}$  (d/s) (partie supérieure) et dans le cas  $n_{th} + ^{235}U$  comme dans [Pia94] normalisé par  $1.9 \cdot 10^{14}$  (n/s  $cm^2$ ) (partie inférieure). Les cercles représentent les noyaux stables.

Le flux des isotopes est normalisé par neutron incident par  $\text{cm}^2$  dans dernier cas.

Le lecteur peut se rendre compte que la cible de production de RIBs considérée dans le cas du projet de SPIRAL II est un cylindre massif de 14.3kg de  $^{238}\text{U}$ . La différence énorme de masses/volumes influencera fortement les intensités finales de RIBs prévues dues aux pertes de retard en faveur de plus petites géométries de source (voir [Nif97] pour une discussion plus quantitative à ce sujet). Ici nous limitons notre discussion sur le taux de fission *dans la cible* uniquement. Il est à noter, cependant, que les taux de fission *dans la cible* seuls sont insuffisants pour choisir la réaction et la géométrie la mieux adaptée à la production de RIBs, bien que ce soit toujours un bon point de départ. Pour une comparaison plus réaliste des différentes méthodes, il est important de tenir compte de l'efficacité finale de la source d'ions utilisée, qui peut réduire considérablement, de 1 à 3 ordres de grandeur, l'intensité finale des RIBs.

Près des pics de la distribution de masses des produits de fission, la réaction  $n_{th} + ^{235}\text{U}$  donne des taux plus grands d'un ordre de grandeur (voir Figure 5.5). Cependant, la production des isotopes à partir de la fission induite par neutrons de haute énergie a eu pour conséquence de plus larges distributions des isotopes, ce qui rend ces deux différentes méthodes également efficaces sur les côtés des distributions riches en neutrons et/ou déficientes en neutrons. En outre, dans la région de masse  $A=105-125$ , où les produits de fission induite par neutron thermique montrent leur minimum local, les neutrons de haute énergie donnent de plus grands taux de fission par un facteur 10-20 (comparez les courbes des distributions d'isotopes de Cd dans la Figure 5.5). Une comparaison plus générale des deux différentes méthodes discutées ci-dessus est présentée dans la Figure 5.6, où on peut facilement voir les avantages/désavantages de ces méthodes.

La Figure 5.7 est semblable à la Figure 5.5. Ici nous examinons des taux de production des isotopes en fonction de différents convertisseurs, à savoir Be, Li et W. Nous rappelons que notre choix de ces matériaux a été basé sur le fait que toutes ces cibles donnent des multiplicités de neutrons semblables pour les deutérons de 200MeV. Comme on le voit dans la Figure 5.7, il est plutôt difficile d'accorder une priorité définitive à une de ces sources de neutrons considérées. Le béryllium est plus efficace pour les taux finaux uniquement d'un facteur 1.4 si on le compare au tantale ou au lithium. Nous notons d'autre part que dans le cas du lithium, le cylindre de production d'uranium a été placé à l'intérieur du réservoir de lithium liquide. De cette façon aucune perte de neutrons ne se produit en raison de l'absence d'espace entre le convertisseur et la cible de production comme dans le cas des cibles de Be et de W. De la Figure 5.7 nous concluons également que d+W peut donner assez de neutrons pour être concurrentiel avec une cible de conversion de métal léger. Enfin nous rappelons que seuls des deutérons peuvent être efficacement convertis en neutrons pour des cibles de métal léger et de métal lourd. La question de radioprotection des différentes solutions ci-dessus sera discutée dans le prochain paragraphe.

Pour produire les isotopes riches en neutrons avec des deutérons, la meilleure combinaison serait peut-être par interaction directe des deutérons avec la cible d'uranium naturel comme le montre la Figure 5.8 (à comparer également avec la

Figure 5.6). Mais, comme mentionné ci-dessus, dans ce cas, l'intensité limite du faisceau primaire serait atteinte très rapidement en raison de la dissipation thermique du faisceau dans la cible de production.

Si des poudres de faible densité d' $UC_x$  sont employées pour diminuer le temps de sortie des isotopes, les taux correspondants doivent être corrigés par rapport de la densité moyenne [Rid98b], qui est typiquement de  $1\text{-}2\text{g/cm}^3$  pour les poudres d' $UC_x$  [Bar97], par la densité correspondante utilisée dans nos calculs, c.-à-d.  $\sim 20\text{g/cm}^3$  pour  $^{238}\text{U}$ . En outre, le fait que le système d' $UC_x$  modère apparemment plus rapide-

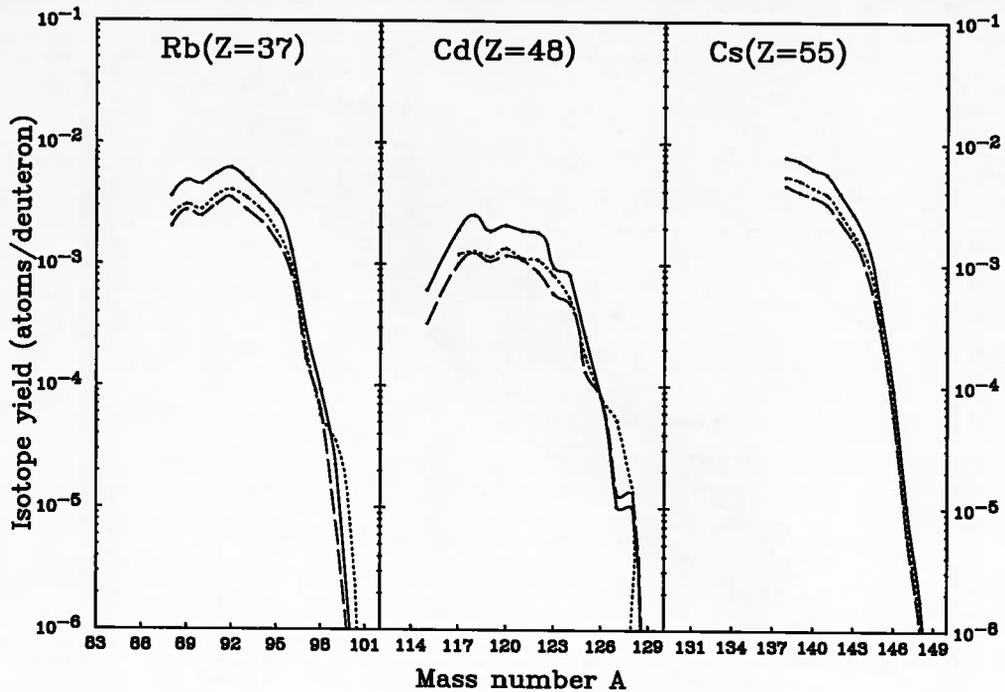


FIG. 5.7 - Distributions isotopiques de la production de Rb, de Cd et de Cs dans les systèmes  $d+\text{Be}\rightarrow xn+U$  (courbes pleines),  $d+\text{Li}\rightarrow xn+U$  (courbes à tiret) et  $d+\text{W}\rightarrow xn+U$  (courbes pointillées) en atomes par deuteron incident de  $200\text{MeV}$  (voir également la Figure 5.4).

ment le spectre de neutrons au-dessous du seuil en énergie de la fission de  $^{238}\text{U}$ , et/ou perd plus rapidement des neutrons hors du système, doit être pris en considération.

L'utilisation de l'uranium fortement enrichi en  $^{235}\text{U}$  pour la production des isotopes semble également être une possibilité intéressante. Dans ce contexte nous avons étudié une cible secondaire sous-critique se composant de 20% d' $^{238}\text{U}$  et de 80% d' $^{235}\text{U}$  avec sa densité ramenée à une moyenne de  $\rho=18.01\text{g/cm}^3$ . Un calcul de criticité avec le code MCNP [Bri93] donne un coefficient de multiplication de neutrons  $k_{eff} \sim 0.9$  à comparer à  $k_{eff} \sim 0.1$  dans le cas d'un cylindre d' $^{238}\text{U}$  pur pour la même géométrie du dispositif. Dans ce cas particulier, 70 fois plus de fissions ont été obtenues en comparaison avec la cible sans  $^{235}\text{U}$  [Rid98b]. Nous rappelons que le nombre de fissions en première approximation peut être exprimé comme

$$N_{fiss} \sim \frac{k_{eff}}{1 - k_{eff}} \quad (5.1)$$

Nous avons déjà discuté de cette dépendance dans le chapitre précédent (voir l'Equation 4.2 en particulier). En conséquence, le rapport  $N_{fiss}(80\% \text{ } ^{235}\text{U})/N_{fiss}(^{238}\text{U}) \sim 80$ . Un tel facteur aurait comme conséquence l'augmentation des taux de production des isotopes près des maxima des produits de fission ; cependant, toutes les distributions seraient légèrement déplacées vers le côté déficient en neutrons (simplement parce que  $\frac{N}{Z}(^{235}\text{U}) < \frac{N}{Z}(^{238}\text{U})$ ). Une telle cible, si considérée, permettrait de profiter à la fois des fissions induites par neutrons thermiques ainsi que par neutrons de haute énergie. Des taux de fission de l'ordre de grandeur de 0.1 (en atomes/deutéron) pourraient être obtenus. Nous devons noter ici, que les neutrons doivent être mo-

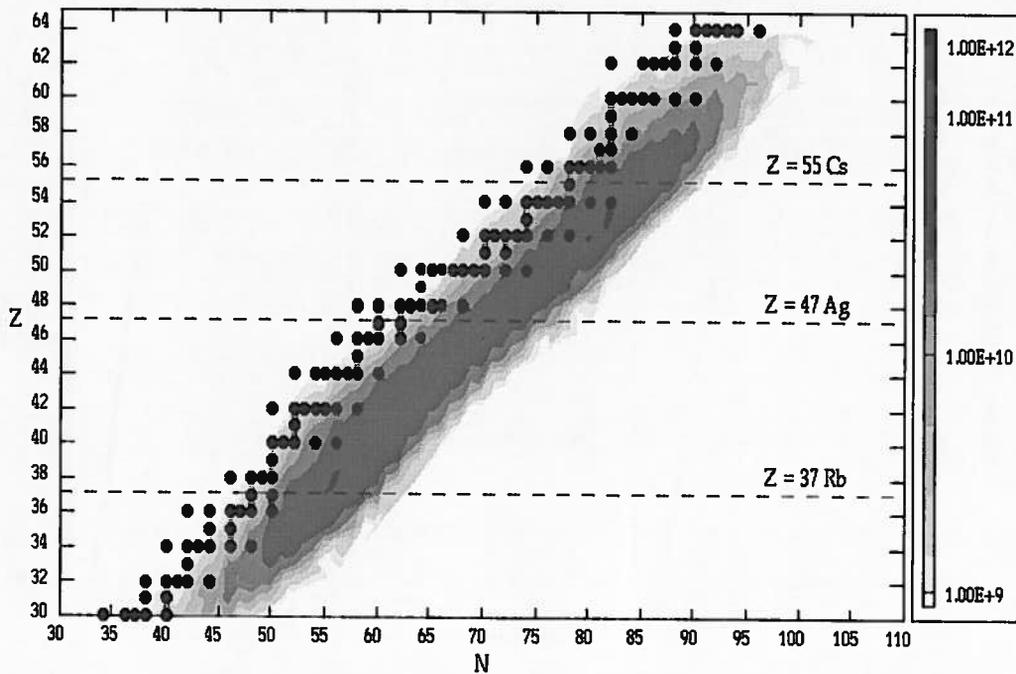


FIG. 5.8 - Taux de fission dans le cas de  $d+^{238}\text{U}$  à  $200\text{MeV}$  normalisés par  $1.9 \cdot 10^{14} (\text{d/s})$ . La géométrie du cylindre d'uranium était la même que dans la Figure 5.4. Les cercles noirs représentent les noyaux stables.

dérés afin d'exploiter efficacement l'augmentation de la section efficace de fission de l'uranium  $^{235}\text{U}$  dans la région d'énergie thermique. Finalement, nous notons que les problèmes potentiels de polifération et de sécurité associés à l'utilisation d'une cible-source d'uranium de large volume et fortement enrichie ( $>20\%$ ) devraient être considérés soigneusement.

Afin de comparer la méthode proposée ci-dessus, à savoir  $d+\text{Be} \rightarrow xn+\text{U}$ , pour la production des isotopes dans une cible à celle utilisée auprès des équipements expérimentaux déjà existants ou prévus en Europe, les informations fournies dans le Tableau 5.2 sont nécessaires.

L'intensité finale des RIBs,  $I$ , dépendra d'un certain nombre de paramètres déterminés par l'expression suivante :

$$I = I_o \cdot \sigma \cdot N \cdot \epsilon. \quad (5.2)$$

Project	Incident beam energy, particle	Target thickness (g/cm <sup>2</sup> ), element	Intensity (particle $\mu$ A)
ISOLDE (Geneve)	1GeV, protons	110, <sup>238</sup> U	3
GANIL (Caen)	100MeV/nucleon, <sup>12</sup> C	5, <sup>238</sup> U	8
PIAFE (Grenoble)	thermal, neutrons	1, <sup>235</sup> U	10 <sup>14</sup> /s cm <sup>2</sup>
SPIRAL-2 (Caen)	100MeV/nucleon, deuterons	19, Be + 284, <sup>238</sup> U	30

TAB. 5.2 – Caractéristiques de faisceau primaire et de cible des RIBs dans certains équipements européens en fonctionnement, en construction ou proposés [Rav94].

Ici  $I_0$  est l'intensité de faisceau incident,  $\sigma$  est la section efficace de production de l'isotope radioactif particulier dans la réaction nucléaire particulière,  $N$  est l'épaisseur de la cible de production, et  $\epsilon = \epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \cdot \epsilon_3$  est le facteur final d'efficacité défini par l'efficacité  $\epsilon_1$  d'accélération et de transport, l'efficacité de la source d'ions  $\epsilon_2$ , et l'efficacité  $\epsilon_3$  de transfert de la cible de production à la source tenant compte aussi des pertes radioactives.

Dans le Tableau 5.3 nous présentons la production des isotopes projetée dans une cible, c.-à-d. le produit  $I_0 \cdot \sigma \cdot N$  comme dans l'Equation 5.2, normalisé à une

Beam	ISOLDE at./ $\mu$ A p	GANIL at./ $\mu$ A p	PIAFE (see caption)	SPIRAL-2 at./ $\mu$ A p
<sup>78</sup> <sub>30</sub> Zn	2.3*10 <sup>8</sup>	3.5*10 <sup>7</sup>	3.8*10 <sup>8</sup>	4.5*10 <sup>8</sup>
<sup>91</sup> <sub>36</sub> Kr	4.1*10 <sup>9</sup>	5.8*10 <sup>8</sup>	2.7*10 <sup>11</sup>	2.4*10 <sup>10</sup>
<sup>94</sup> <sub>36</sub> Kr	1.7*10 <sup>8</sup>	4.9*10 <sup>7</sup>	8.8*10 <sup>9</sup>	4.9*10 <sup>9</sup>
<sup>97</sup> <sub>37</sub> Rb	8.7*10 <sup>8</sup>	4.6*10 <sup>8</sup>	4.6*10 <sup>9</sup>	1.8*10 <sup>9</sup>
<sup>132</sup> <sub>50</sub> Sn	1.5*10 <sup>8</sup>	2.6*10 <sup>7</sup>	5.4*10 <sup>10</sup>	9.3*10 <sup>9</sup>
<sup>142</sup> <sub>54</sub> Xe	1.3*10 <sup>8</sup>	2.3*10 <sup>7</sup>	4.1*10 <sup>10</sup>	8.0*10 <sup>9</sup>
<sup>144</sup> <sub>54</sub> Xe	2.7*10 <sup>6</sup>	4.8*10 <sup>5</sup>	7.5*10 <sup>8</sup>	5.6*10 <sup>8</sup>
<sup>144</sup> <sub>55</sub> Cs	2.2*10 <sup>10</sup>	3.9*10 <sup>9</sup>	3.4*10 <sup>10</sup>	8.9*10 <sup>9</sup>

TAB. 5.3 – Évaluation projetée de la production des isotopes dans une cible (les nombres pour des équipements d'Isolde, de GANIL et de PIAFE proviennent de [Rav94]). Les listes d'intensités de faisceau sont normalisées à une intensité primaire de faisceau d'un  $\mu$ A particule, excepté le service de PIAFE basé sur les neutrons thermiques pour lequel des densités de flux de neutron de  $6.25 \cdot 10^{12}$  n/s cm<sup>2</sup> ont été considérées. Voir Tableau 5.2 et Ref. [Rav94] pour des détails au sujet des faisceaux primaires, des particules incidentes, des différents géométries de cible et de matériaux dans le cas des différents équipements expérimentaux.

intensité primaire du faisceau d'un  $\mu$ A particule. Nous notons, que les évaluations de production des isotopes dans une cible, et les intensités finales de faisceau peuvent être réduites considérablement (de 1 à 3 ordres de grandeur) si l'efficacité  $\epsilon$  totale de

source d'ions est prise en considération. Nous renvoyons le lecteur à la Réf. [Rav94], où une analyse plus détaillée à ce sujet est donnée et où certaines valeurs de  $\epsilon$  sont indiquées explicitement pour différentes combinaisons de faisceau, de cible et d'isotopes. Il faut également noter qu'une intensité d'une  $\mu\text{A}$  particule pour quelques faisceaux primaires est une intensité élevée tandis que d'autres particules peuvent être disponibles et utilisables avec des intensités d'ordre de grandeur plus élevées (voir le Tableau 5.2). Par conséquent, il est également très important de tenir compte des limites réalistes des intensités de faisceau primaire.

En bref, comme on le voit dans le Tableau 5.3, des rendements de production des isotopes *dans une cible* d'ISOLDE et de SPIRAL-2 sont très semblables, alors que la technique actuelle de fragmentation de GANIL donne de plus petites valeurs par un facteur de 2 à 10. Nous notons aussi que la technique actuelle de fragmentation de GANIL a été initialement développée principalement pour des noyaux plus légers. Dans le cas du projet PIAFE, la production des isotopes est plus petite (ou plus haute) d'1 ordre de grandeur selon la masse atomique  $A$  des produits de fission. Nous renvoyons également le lecteur au Tableau 5.2 pour plus d'information.

De plus, nous rappelons au lecteur que ces conclusions sont valables uniquement pour les rendements de production d'isotopes *dans une cible*. Il serait donc, très important d'étudier les propriétés de diffusion des sources de fragments de fission de grand volume. Enfin nous voudrions ajouter, que les résultats discutés dans ce chapitre ont clairement besoin de contrôles expérimentaux.

### 5.3 Radioactivité dans les cibles de production

Dans ce paragraphe nous reconsidérons la production de RIBs présentée dans la Figure 5.4 afin d'estimer la radioactivité totale accumulée dans le système entier pendant son fonctionnement et la radioactivité restante après un certain temps de refroidissement. Le faisceau primaire s'arrête dans les cibles de conversion différentes mais en utilisant toujours la même cible d'uranium de production de RIBs (voir Tableau 5.4). Le système des codes couplés LAHET-HMCNP-CINDER est utilisé pour des simulations complètes de l'activation dans une cible avec les interactions de haute énergie et de basse énergie. Les deutérons de 200MeV et avec un courant de 30  $\mu\text{A}$  (6kW) irradient sans interruption une cible pendant 48 heures. Après que l'irradiation est arrêtée, le système de cible est laissé refroidir pour une autre durée de 48 heures. Nos résultats sont brièvement récapitulés dans la Figure 5.9.

Tout d'abord, on le voit clairement, la radioactivité provenant des cibles légères de conversion (Be et Li représentées par les lignes continues minces et les lignes à tirets minces) est de quelques ordres de grandeur plus basse pendant le fonctionnement du système et quand le faisceau de deutéron est coupé, comparé à celui de la cible de production de RIBs (U représenté par les lignes continues épaisses et les lignes à tirets épaisses). D'autre part, la contribution de la cible de tungstène (W) irradiée est presque 15% de l'activation totale du système à la fin de l'irradiation (comparez les courbes tiret-pointillées épaisses et les courbes tiret-pointillées minces).

Dans la Figure 5.9 chacune des trois lignes épaisses reflète directement les rendements de production de RIBs dans les trois combinaisons étudiées (à comparer aux courbes correspondantes dans la Figure 5.7). En d'autres termes, plus d'isotopes instables sont produits, plus de radioactivité s'accumule dans la cible de production de RIBs.

Target	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Radius (cm)	Length (cm)
<sup>9</sup> Be	1.848	3.0	10.0
<sup>7</sup> Li	0.534	3.0	34.5
<sup>184</sup> W	19.30	3.0	1.80
<sup>238</sup> U	18.95	4.0	15.0

TAB. 5.4 – Caractéristiques des cibles de conversion primaires (Be, Li, et W) et de la cible secondaire (U) pour la production de RIBs. Voir également la Figure 5.4.

Finalement, dans la Figure 5.10, nous présentons la radioactivité totale qui s'accumule seulement dans les cibles de conversion primaires, à savoir Be, Li et W représentées par les courbes pleines, à tiret et à tiret-pointillées respectivement. Nous gardons les mêmes conditions d'irradiation et de refroidissement ci-dessus. Comme nous l'avons déjà montré dans le paragraphe précédent, les convertisseurs de métal léger accumulent moins de radioactivité pendant le fonctionnement du système (comparez les courbes pleines et à tiret épaisses à la courbe à tiret-pointillée). C'est vrai en particulier après le refroidissement du système; le choix de la cible de conversion de métal lourd a pour conséquence la production d'isotopes de vie longue. L'interaction des deutérons avec la cible de métal lourd produit beaucoup moins de gaz radioactif de tritium (comparez les courbes minces correspondantes dans la même figure).

Bien que la combinaison de  $d+Be \rightarrow xn+U$  soit la plus efficace pour la production de RIBs, elle produit également la plus grande quantité de gaz de tritium (par exemple 10 fois plus que dans le cas du scénario de  $d+Li \rightarrow xn+U$ ). Nous ajoutons également que la production de gaz de tritium est principalement due aux réactions induites par deutéron dans la cible de conversion primaire; la contribution de ce radionucléide issu de la cible de production de RIBs (U) est  $10^6$  fois inférieure et n'est pas montrée dans la Figure 5.10.

Notons que la radioactivité due aux gaz rares et aux halogènes est estimée être plus haute de 2 ordres de grandeur, comparée à la contribution du tritium (voir les premières et deuxièmes colonnes dans le Tableau 5.5). Il est clair qu'un traitement spécial de ces substances sera nécessaire, similaire à ce qui est déjà fait pour la cible-source actuelle au SPIRAL.

D'autre part, la radioactivité due au gaz de tritium ( $T_{1/2}=12.33$ ans) dominera pour des temps longs (voir la dernière colonne dans le Tableau 5.5). Cet exemple correspond à seulement 2 jours d'irradiation. Une augmentation du temps d'irradiation aura certainement pour conséquence l'augmentation (linéaire) du gaz de tritium accumulé dû à son temps de vie long. Contrairement, ceci n'affectera pas fortement la concentration d'autres gaz avec leurs demie-vies en général plus courtes que quelques

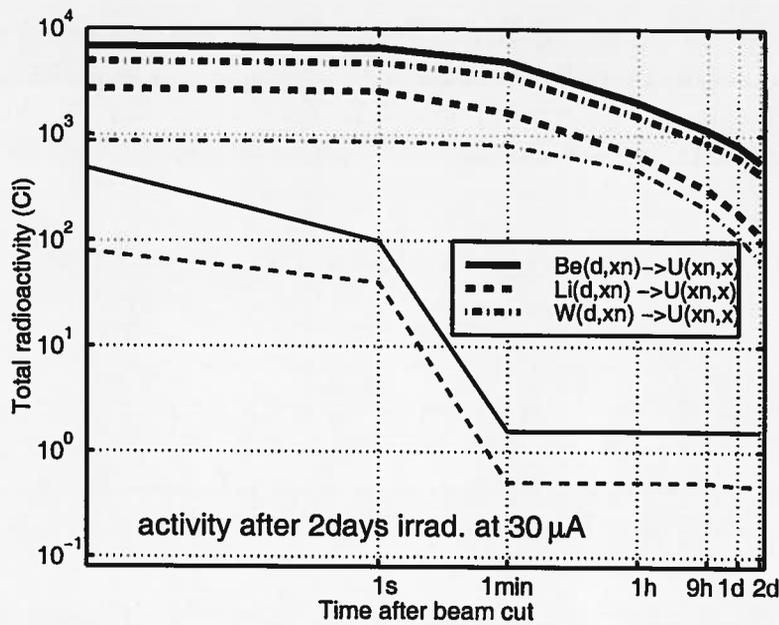


FIG. 5.9 – La cible de production de RIBs comme le décrit la Figure 5.4 est irradiée avec un faisceau de  $30 \mu\text{A}$  de deutérons de  $200 \text{MeV}$  pendant 2 jours ; après la coupure du faisceau, le temps de refroidissement va jusqu'à 2 jours. Les lignes pleines, en tiret et en tiret-pointillées épaisses représentent la radioactivité totale accumulée dans la cible d' $^{238}\text{U}$  utilisée avec des convertisseurs de Be, Li et W respectivement. La contribution de la radioactivité des convertisseurs eux-mêmes est tracée séparément (voir les courbes minces correspondantes).

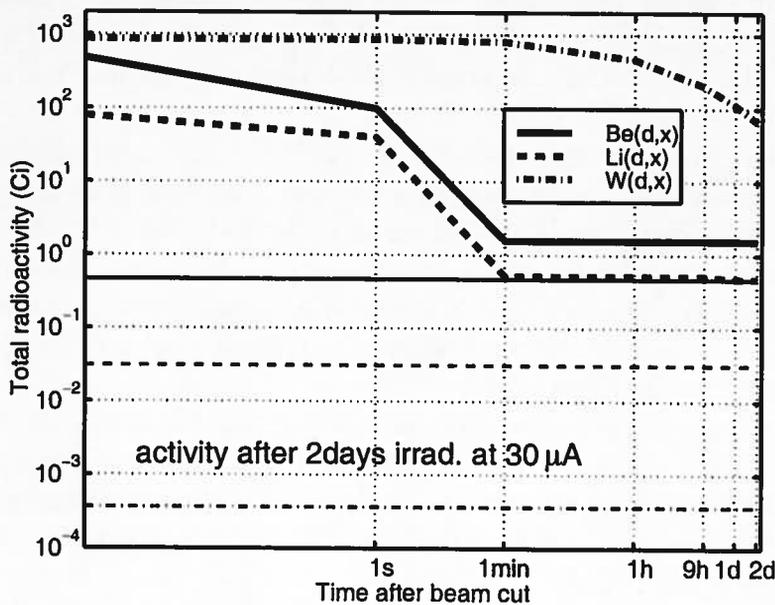


FIG. 5.10 – La radioactivité totale accumulée dans les convertisseurs de Be, Li et W est présentée en fonction du temps de refroidissement de la cible (courbes épaisses). La contribution du tritium dans chaque cas est tracée séparément (voir les courbes minces correspondantes). Voir la légende de la Figure 5.9 pour les conditions d'irradiation et la Figure 5.4 pour les paramètres de géométrie.

jours.

Selon les normes existantes, l'accumulation du tritium radioactif (dans le système d'intérêt ici) ne peut pas excéder le niveau de l'autorisation de 1GBq [Eur96], alors que dans nos évaluations, à savoir dans le cas de 200MeV  $d+Be \rightarrow xn+U$  au faisceau de 6kW, nous obtenons autant que 15GBq. Et c'est « seulement » après 2 jours d'irradiation ! Naturellement, une partie de ce tritium produit ne sortira jamais d'un cylindre massif de béryllium. D'autre part, 6kW de puissance de faisceau déposée

Isotopes	Rem. activ. after 1d	Rem. activ. after 2d	Rem. activ. after 30d	Rem. activ. after 1y
$^3\text{H}$ in Be	0.46Ci	0.46Ci	0.46Ci	0.44Ci
noble gases, halogens in U	64Ci	35Ci	0.70Ci	0.01Ci
total in U	802Ci	559Ci	10.2Ci	0.36Ci

TAB. 5.5 – La cible de production de RIBs (voir la Figure 5.4) est irradié avec le faisceau de deutérons de 200MeV et 30 $\mu$ A pour 2 jours ; après la coupure du faisceau, le temps de refroidissement s'étend jusqu'à 1 an. L'activité restante dans Be due au tritium, l'activité dans U due aux gaz rares et aux halogènes.

dans la cible aurait pour conséquence une température allant jusqu'à 1200°C, c.-à-d. la température qui favorise la diffusion de gaz issu du matériel solide.

Pour cette raison, pour une production efficace de neutrons d'autres matériaux ont été recherchés afin de résoudre le problème potentiel du tritium indésirable. Nous croyons qu'un bon candidat serait du lithium liquide comme nous l'avons montré ci-dessus. Dans un scénario plus réaliste, la cible de conversion pourrait être simplement entourée par un récipient fermé (collecteur de gaz), de façon que le gaz radioactif soit emprisonné.

## 5.4 Chauffage et refroidissement de la cible

Il a été mentionné ci-dessus qu'une cible de conversion de béryllium peut servir comme source de neutrons efficace pour la production d'isotopes par fissions dans une cible de production secondaire. En fait, cette cible de conversion découple également un faisceau intense de particules chargées de la cible secondaire en termes d'absorption d'énergie et de chauffage conséquent de la cible primaire.

Le dépôt d'énergie calculé pour le système de cible combinée (voir la Figure 5.4) avec les deutérons de 200MeV est donné dans le Tableau 5.6. Dans le transport des particules avec le code LAHET [Pra89], les pertes d'ionisation coulombienne, de diffusion inélastique et de diffusion multiple coulombienne, et ainsi que de la désintégration de particules et l'excitation nucléaire ont été pris en compte. Le chauffage par fission induite par neutrons a été noté séparément afin de le comparer aux taux de dépôt sans fission pour différents matériaux de cible.

Avec une puissance de faisceau incident de 10kW, la cible d'arrêt de béryllium doit évacuer le dépôt de chaleur de 8kW (par exemple, à l'intensité de 50 $\mu$ A de fais-

ceau de deuteron incident, le dépôt d'énergie de 20MeV/d correspond à un chauffage de 1kW). Par suite du découplage du faisceau s'arrêtant dans une cible primaire et une cible de production des isotopes, la chaleur déposées dans UC<sub>2</sub> ou <sup>238</sup>U est seulement respectivement de 1kW et de 1.7kW. D'autre part, la cible d'uranium fortement enrichie impliquerait le dépôt de chaleur de 50kW, principalement en raison du plus grand nombre de fissions (voir le Tableau 5.6).

Target	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Energy deposit. total (MeV/d)	Absorbed power (kW per 50μA)	Energy deposit. from fission (%)
<sup>9</sup> Be	1.848	160.4	8.02	0.0
UC <sub>2</sub>	11.28	18.3	0.92	30
<sup>238</sup> U	18.95	33.7	1.69	40
U(80% <sup>235</sup> U)	18.01	1010.6	50.53	97

TAB. 5.6 – Dépôt d'énergie dans des cibles de matériaux différents évalué pour les deutérons de 200MeV de faisceau incident de 50 μA (=10kW).

Les systèmes de cible d'intérêt ne peuvent pas tolérer des intensités de faisceau de deuteron au delà de plusieurs μA sans refroidissement. Une analyse pour le refroidissement conductif (jusqu'à 8kW) par des canaux refroidis à l'eau a été présentée dans [Eat87]. Ici nous voudrions décrire une autre approche du refroidissement et donner un exemple d'un concept alternatif de cible proposé dans la Réf. [Tal92]. Cette approche peut s'appliquer aux cibles pleines et liquides en métal qui ont une densité élevée mais qui exigent une limite de la température de fonctionnement. Nous notons que la méthode présentée ci-dessous est schématique et seulement pour montrer que le refroidissement conductif peut contrôler de grandes différences dans la température de la cible et d'autres milieux.

Afin d'aller plus loin, nous dérivons une formule simple liée à la conduction de la chaleur dans le cas d'une géométrie cylindrique comme présenté dans la Figure 5.11.

Supposons que le matériau conducteur se trouve entre le cylindre intérieur de rayon  $r_1$  et le cylindre externe de rayon  $r_2$ , tous les deux de longueur  $l$ . Si le cylindre intérieur est maintenu à la température constante  $T_1$  et l'externe à  $T_2$ , il y aura un flux radial régulier de chaleur au taux constant  $dQ/dt$ . Nous considérons l'écoulement de cette quantité de chaleur à travers un interface cylindrique de matériel entre les cylindres  $r$  et  $r + dr$ . Avec  $T$  la température à  $r$ , la température à  $r + dr$  sera  $T + dT$ . La surface de l'interface est  $S = 2\pi r l$ , et le gradient de la température est  $dT/dr$ . En utilisant la loi fondamentale de conduction de la chaleur [Zem51] nous avons alors l'équation suivante :

$$\frac{dQ}{dt} = -\kappa 2\pi r l \frac{dT}{dr}, \quad (5.3)$$

où  $\kappa$  est une conductivité thermique. En intégrant l'équation 5.3 pour le système cylindrique comme ci-dessus nous obtenons

$$T_1 - T_2 = \frac{dQ}{dt} \frac{1}{2\pi \kappa l} \ln \frac{r_2}{r_1}, \quad (5.4)$$

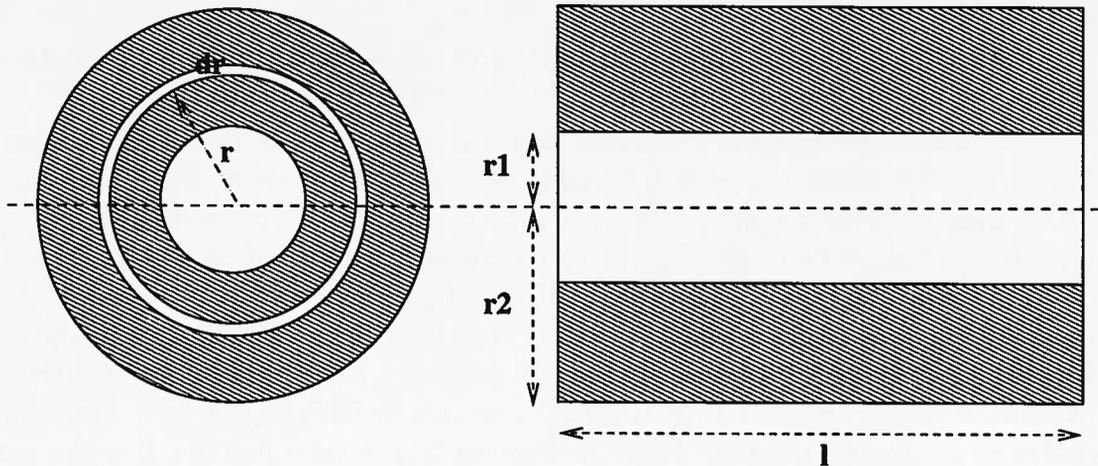


FIG. 5.11 - Flux radial de chaleur dans un cylindre.

Cette équation peut être maintenant directement appliquée au problème d'intérêt.

Considérons une température de  $1000^{\circ}\text{C}$  de fonctionnement d'une cible ( $1287^{\circ}\text{C}$  et  $1135^{\circ}\text{C}$  sont des points de fusion de Be et U respectivement). La configuration suivante de cible pour conduire jusqu'à  $60\text{kW}$  de chaleur déposée dans une chemise refroidie à l'eau est suggérée (voir la Figure 5.12). Rappelons que les deutérons incidents de  $200\text{MeV}$  de puissance de  $10\text{kW}$  dans le cas de notre cible combinée produisent une chaleur de  $\sim 8\text{kW}$  dans la cible primaire de béryllium et jusqu'à  $\sim 50\text{kW}$  dans la cible de production d'uranium enrichi (voir le Tableau 5.6).

Il existe seulement quelques matériaux avec points de fusion élevés ( $>1000^{\circ}\text{C}$ ) et conductivités thermiques  $\kappa > 1\text{W/cm}^{\circ}\text{K}$ , incluant Be, Cu, Au et W. Dans notre géométrie de cible, si un rayon intérieur  $r_1 = 5\text{cm}$  et un rayon externe  $r_2 = 12\text{cm}$  de cible sont assumés, un écoulement d'eau de  $952\text{g/s}$  à la température initiale de  $20^{\circ}\text{C}$  et à la température de sortie de  $35^{\circ}\text{C}$  peut évacuer  $60\text{kW}$  la chaleur déposée dans la cible et ne pas excéder  $1000^{\circ}\text{C}$  sur sa surface. La température de la paroi extérieure du matériel conducteur est de  $493^{\circ}\text{C}$ , et la température de la paroi extérieure du gaz de He est de  $75^{\circ}\text{C}$ . Les conductivités thermiques  $\kappa_1 = 1.1\text{W/cm}^{\circ}\text{K}$  et  $\kappa_2 = 0.0033\text{W/cm}^{\circ}\text{K}$  (pour He gazeux) ont été choisies, et l'intervalle annulaire de  $0.026\text{cm}$  entre le corps de cible et la chemise refroidie par l'eau ont été adoptées (voir la Figure 5.12 pour des détails). L'interface gazeuse a servi pour isoler la chemise refroidie par l'eau de la chambre de cible et a produit la différence de température souhaitée. Cependant, il pourrait être assez difficile de construire un espace gazeux aussi mince. La longueur de cible de  $15\text{cm}$  a été maintenue comme dans les calculs de production des isotopes (voir la Figure 5.4).

Pour calculer la distribution de température dans la cible de production des ions radioactifs, nous pouvons supposer que la chaleur est déposée uniformément dans le volume entier de cible. Nous obtenons que la température au centre du cylindre serait environ  $600^{\circ}\text{K}$  plus haute que sur sa surface (pour un métal avec  $\kappa \sim 1\text{W/cm}^{\circ}\text{K}$ ). Pour l'uranium avec  $\kappa = 0.25\text{W/cm}^{\circ}\text{K}$ , cette différence de température serait autour de  $2400^{\circ}\text{K}$ , c.-à-d. que la température au centre de la cible approche la température

d'ébullition de  $4400^{\circ}\text{K}$ .

On peut facilement adopter cette analyse à des conditions plus réalistes dans le contexte d'une future conception de cible, primaire et secondaire.

Une autre possibilité intéressante serait d'utiliser du lithium liquide comme source de neutron et réfrigérant liquide de la cible de production de RIBs. Nous avons montré ci-dessus que le lithium liquide est presque aussi efficace pour les rendements finaux de production de RIBs comparé au béryllium solide. En outre, nos évaluations favorisent également le lithium parce qu'il produit considérablement moins de gaz de tritium radioactif comparé au béryllium. Nous ajoutons que dans [Has96] il a été montré récemment que des grandes pompes de lithium liquides sont capables d'évacuer jusqu'à 10 MW de la puissance de faisceau incident. Les auteurs ont proposé la conception de cibles de lithium liquide sans fenêtres pour les générateurs de neutrons (à partir de réaction  $d+\text{Li}$ ) qui peuvent manipuler la puissance de faisceau de  $100\text{ kW/cm}^2$  pour les deutérons de  $35\text{MeV}$  [Kol85, Has96].

Les groupes de recherche d'ANL et de MSU projettent établir une cible prototype de 1 kW à mettre en oeuvre au NSCL A1900 avec de vrais faisceaux [Nol99]. Elle sera réceptionnée et testée au laboratoire de Claude Reed à ANL, et puis transportée à MSU, peut-être vers la fin de 2000 [Nol99]. C'est un système réduit, mais qui testera toutes les problèmes de sûreté et d'exploitation, étant en même temps une excellente cible pour l'utilisation à MSU. Elle aura des fenêtres d'entrée et de sortie de graphite pour le faisceau et les fragments, de cette façon le lithium sera isolé de la ligne de faisceau. En général, il est envisagée que 20% de la cible sera en graphite et le reste en Li [Nol99].

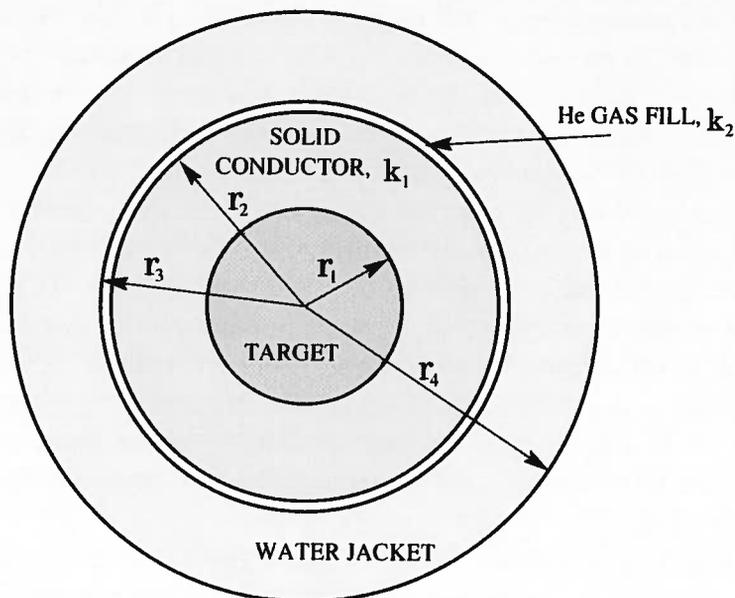


FIG. 5.12 – Système de refroidissement conductif de cible, vue en coupe (voir le texte pour détails).

## 5.5 Conclusion

Ce que nous avons appris des études sur la production de neutrons dans les chapitres précédents est devenue la partie essentielle dans les applications de production de RIBs à l'aide de fissions induites par neutrons. Les RIBs de SPIRAL Phase-II (GANIL) sont les noyaux riches en neutrons dans la région de masse  $75 \leq A \leq 160$ . Pour les produire, on a choisi la cible d'arrêt de conversion (Be) interagissant avec les deutérons d'énergie intermédiaire et elle a servi comme source efficace de neutrons énergétiques aux angles avant pour induire des fissions dans la cible secondaire de production des isotopes (U). Il est constaté que, dans l'intervalle d'énergie de 50 MeV à 100 MeV des deutérons incidents, la production de neutrons et la production d'isotopes augmente avec l'énergie de faisceau pour une puissance constante. Pour cette raison, les deutérons de 100 MeV sont suggérés, et une augmentation plus grande d'énergie du faisceau primaire pour la configuration de cible considérée n'est pas utile.

Dans le cas d'une cible secondaire d' $^{238}\text{U}$ , 80% de la puissance du faisceau incident est déposée dans la cible primaire de Be, alors que l'énergie produite dans la cible secondaire d'U est essentiellement due à l'énergie du processus de fission, c.-à-d. que le problème de dissipation thermique est résolu automatiquement dans la cible de production. Par conséquent, pour la même puissance absorbée dans la cible de production, le flux de neutrons peut être un ordre de grandeur plus grand dans le cas d'utilisation d'un convertisseur.

En résumé, avec le faisceau de deutérons de 10 kW à 100 MeV (compatible avec les caractéristiques existantes de GANIL) on peut s'attendre à une augmentation de l'intensité du faisceau secondaire de 2 à 3 ordres de grandeur comparé à la production d'isotopes à partir de la fragmentation actuelle de la cible et/ou du faisceau d'ions lourds. Nous notons que ces conclusions se vérifient pour les rendements de production d'isotopes uniquement *dans une cible*. Il serait donc, très important d'étudier les propriétés de diffusion des sources de fragments de fission de large volume. Un programme R&D est en cours sur ce sujet [R&D98].

En plus des prévisions sur la production de RIBs par l'intermédiaire du scénario  $d + \text{Be} \rightarrow xn + \text{U}$ , nous avons également étudié d'autres cibles de conversion compétitives dans ce contexte. Nous avons prouvé que le lithium liquide et le tungstène solide sont presque également efficaces en ce qui concerne les rendements finaux de fission.

Des questions de radioprotection ont été également abordées dans ce chapitre; nous avons conclu que l'accumulation du gaz radioactif de tritium pourrait être la raison principale d'exclure le béryllium comme cible de conversion primaire. Nous suggérons le lithium liquide comme une solution possible.

Finalement, en même temps que les évaluations du dépôt de la chaleur dans notre cible composite, nous avons également étudié un arrangement simple pour conduire jusqu'à 60 kW de puissance de faisceau primaire dans une chemise refroidie à l'eau.



**Deuxième partie**

**Expérimentale**



# Chapitre 6

## Expérience de SATURNE

### 6.1 Introduction

Dans la région d'énergie supérieure à 50MeV, la longueur d'onde d'un nucléon incident devient comparable aux dimensions nucléaires. L'influence des interactions nucléon-nucléon commence à se manifester et son effet devient plus évident avec l'augmentation de l'énergie. On peut s'attendre à ce que les effets de diffusion multiple dominent les réactions nucléaires induites par nucléon dans la gamme d'énergie de 50MeV à 150MeV. Pour des énergies supérieures à 150MeV, la collision nucléon-nucléon devient l'interaction dominante [Roo66].

À ces énergies, des modèles de réactions nucléaires impliquant deux étapes, ont souvent été utilisés. Le nucléon incident est supposé interagir d'abord avec un noyau de la cible par une série de collisions nucléon-nucléon, initiant ainsi une cascade nucléaire. Pendant cette cascade nucléaire, une ou plusieurs particules de grande énergie peuvent être éjectées, laissant le noyau résiduel dans un état excité. A la seconde étape, le noyau résiduel excité se désexcite en émettant des particules supplémentaires ou des rayons  $\gamma$ . La description générale de l'interaction d'une particule avec le noyau, soulignant le premier processus de collision multiple, est appelée "réaction de pré-équilibre".

Conceptuellement, le processus de pré-équilibre pour l'émission de nucléons est relativement bien connu. Les processus d'émission de particules complexes ne sont cependant pas aussi clairs. Des résultats expérimentaux utilisant des particules composées comme projectiles, comme l'observation de l'émission des particules complexes sont nécessaires afin de comprendre de façon plus complète les mécanismes dominants des réactions nucléaires. La dépendance angulaire et en énergie des spectres observés pour les particules chargées, la dépendance de la production des particules secondaires par les noyaux de la cible, et la distribution de la section efficace de réaction parmi les divers canaux de réaction sont d'autres questions intéressantes à poser dans ce contexte.

En fait, notre expérience sur la production de particules chargées, utilisant les deutérons de 200MeV sur un certain nombre de cibles minces a eu, en plus de la discussion donnée ci-dessus, les objectifs principaux suivants :

1) prouver que la dissociation coulombienne pour la dissociation directe du deutéron n'est pas pris en considération correctement dans le code LAHET Code System (LCS) (voir également la discussion dans le Chapitre 2). Nous croyons que ce processus manquant est extrêmement important dans le cas de réactions (d,xp) et (d,xn) aux angles de diffusion très vers l'avant et pour les cibles de masse atomique lourde [Rid99c];

2) tester la validité du code LCS pour des spectres en énergie de particules chargées émises dans des réactions induites par deutérons. La production des tritons, par exemple, à partir des réactions (d,xt) est d'importance majeure dans les problèmes de radioprotection [R&D98];

3) étendre des données déjà existantes sur la production de particules chargées avec les deutérons [Wu79a] à des angles de diffusion plus vers l'avant, à savoir aller au-dessous de la limite des  $20^\circ$  pour les éjectiles;

4) comparer la production de particules chargées entre des réactions induites par des protons [Wu79b, Seg82, För91] et par des deutérons à des énergies semblables et avec les mêmes matériaux de cible;

5) fournir des guides pour des développements théoriques ultérieurs.

Finalement, bien que l'intérêt principal de ce travail de thèse soit lié à la production de neutrons et aux applications de ces neutrons, à notre avis les réactions (d,xp) et (d,xn) sont tout aussi utiles pour comprendre correctement les mécanismes de dissociation de deutéron. Nous notons également qu'il est beaucoup plus facile de mesurer des données de bonne qualité relatives aux protons qu'aux neutrons.

## 6.2 Dispositif expérimental

L'expérience a été faite au synchrotron du Laboratoire National de Saturne (LNS) de Saclay en juin 1997. Des deutérons ont été accélérés à 200MeV avec une intensité de faisceau allant de  $2.5 \cdot 10^5$ pps à  $2.5 \cdot 10^{11}$ pps. Dans l'expérience, nous cherchions à obtenir des spectres en énergie des particules secondaires (protons, deutérons, tritons,  $^3\text{He}$  et  $\alpha$ ) par réaction des deutérons de 200MeV sur des cibles de  $^9\text{Be}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{208}\text{Pb}$  et  $^{238}\text{U}$ , généralement d'épaisseur inférieure à  $10\text{mg}/\text{cm}^2$ .

4 détecteurs appelés T1, T2, T3 et T4, de 370mm de longueur et 70mm de diamètre chacun, ont été placés aux angles primaires  $\theta_1=20^\circ$ ,  $\theta_2=45^\circ$ ,  $\theta_3=60^\circ$  et  $\theta_4=135^\circ$  respectivement, à la distance minimum de 200mm de la cible (voir la Figure 6.1). Les détecteurs étaient des télescopes conventionnels à deux éléments: un détecteur silicium à barrière de surface de  $300\mu\text{m}$  que les particules traversent en laissant un signal  $\Delta E$  et un détecteur NaI arrêtant les particules avec l'énergie résiduelle  $E$ . Ces assemblages ont été montés dans le même plan horizontal de réaction sur des supports. Un scintillateur plastique (PS), placé sur la ligne de faisceau après la cible, comme montré dans la Figure 6.1, a été employé pour monitorer le faisceau de deutérons incidents.

Tous les détecteurs silicium ont été calibrés en utilisant une source d' $\alpha$  de  $^{228}\text{Th}$ , alors qu'une source de  $\gamma$  de  $^{137}\text{Cs}$  était employée pour calibrer les détecteurs NaI. Une vérification indépendante des équations de calibrations obtenues a été également

faite par l'utilisation du pic de diffusion élastique des deutérons et des équations cinématiques.

Un schéma standard du dispositif électronique utilisé pendant cette expérience est présenté dans la Figure 6.2. Il inclut un système logique rapide, un système d'impulsion linéaire, et un système d'interface d'ordinateur (Kmax sur PC 9200 Macintosh). Les sorties de l'électronique analogique sont analysées par des convertisseurs ADC pour le traitement en ligne, la mise en mémoire et l'affichage. Pour le télescope T1, la chaîne électronique est montrée explicitement (voir le cadre en ligne tirée dans la même figure). Pour les 3 autres télescopes, à savoir le T2, T3 et T4, les schémas sont identiques.

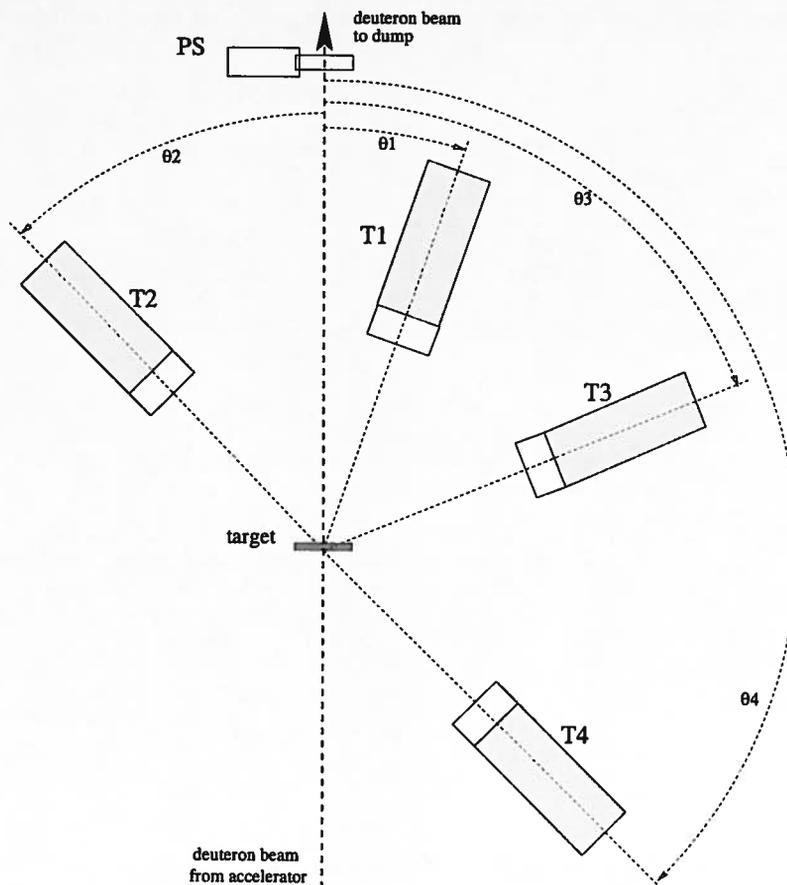


FIG. 6.1 – Dispositif expérimental pour des mesures de particules chargées avec des deutérons incidents à Saturne (voir le texte pour les détails).

Les particules secondaires étaient identifiées en ligne par la construction de matrices de  $\Delta E$ - $E$  d'identification conventionnelles. La contribution du bruit de fond du faisceau était constamment surveillée par l'utilisation d'une cible-trou.

### 6.3 La mesure et l'analyse de données

Malheureusement, cette expérience a été effectuée sans la chambre de diffusion. Par conséquent, avec les cibles minces ( $\sim 10\text{mg/cm}^2$ ) nous ne pouvions voir aucune différence entre le taux de comptage avec et sans cible. Cette situation s'est produite principalement en raison du "struggling" du faisceau sur la fenêtre de sortie de la ligne de faisceau et dans l'air et, peut-être, sur le support de la cible. Pour ces raisons, nous avons décidé d'utiliser une cible beaucoup plus épaisse qui était disponible, à savoir de  $^{238}\text{U}$  de  $2\text{g/cm}^2$  d'épaisseur. Dans ces nouvelles conditions, nous avons pris des données avec un niveau de bruit de fond allant de  $50\%$  à  $135\%$  et plus de  $80\%$  à  $20^\circ$ . Le temps mort d'acquisition était toujours inférieur à  $15\%$ .

Des spectres complets de particules ont été construits à partir des matrices d'identification  $\Delta E$ - $E$  des particules projetant les spectres bidimensionnels sur l'axe  $E$ . Les spectres d'énergies ont été corrigés de la perte d'énergie dans la cible et les

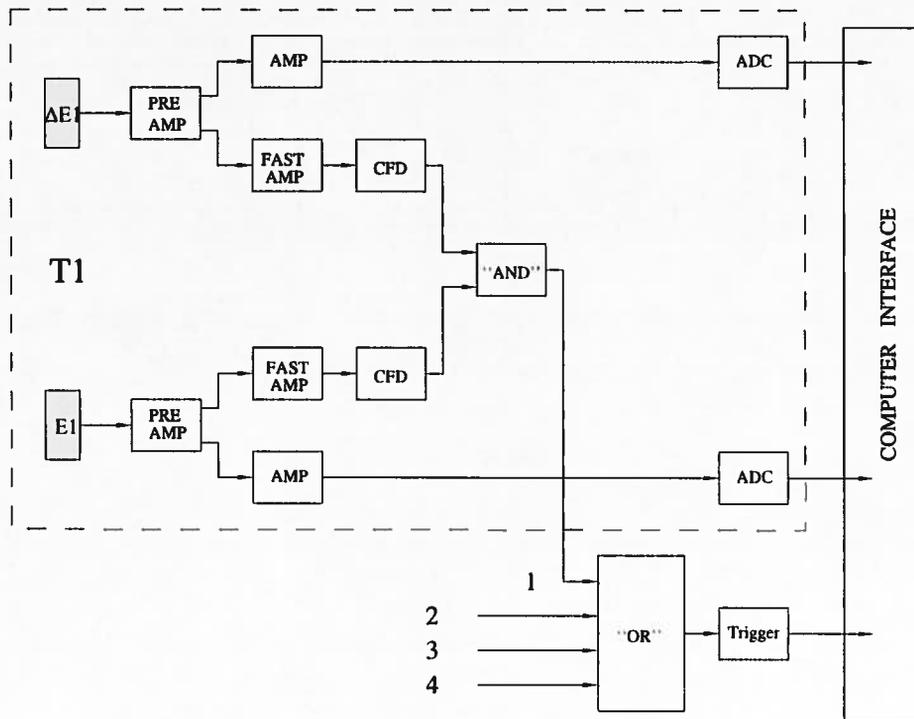


FIG. 6.2 - Le schéma fonctionnel de l'électronique.

détecteurs silicium. La contribution du bruit de fond du faisceau a été soustraite en utilisant les données prises avec la cible-trou. Les spectres ont été alors sommés en énergie sur  $5\text{MeV}$  pour fournir des courbes plus lisses. Nous notons que la contribution du bruit de fond contribuait jusqu'à  $80\%$  des grandes barres d'erreur des spectres en énergies obtenus (voir le spectre en énergie typique de protons dans la Figure 6.3). En raison de l'utilisation de la cible d' $^{238}\text{U}$  très épaisse ( $2\text{g/cm}^2$ ), seuls des protons d'énergie  $E_p \geq 25\text{MeV}$  ont été détectés avec des statistiques plus ou moins significatives après la soustraction du bruit de fond. En conséquence, la

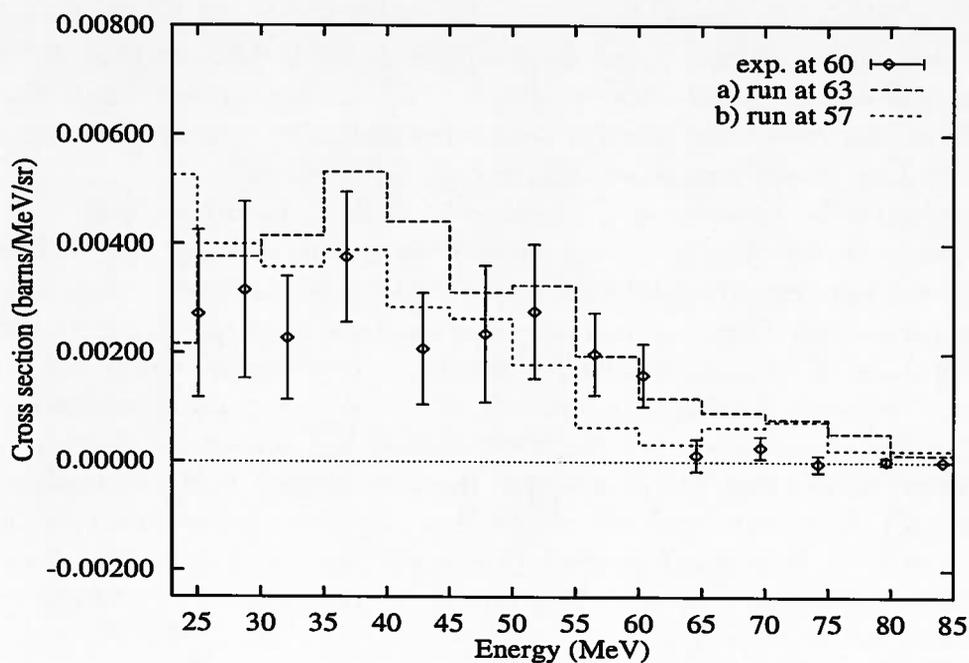


FIG. 6.3 – Spectre en énergie différentiel des protons à  $60^\circ$  pour la réaction  $^{238}\text{U}(d, xp)$  à  $E_d=200\text{MeV}$ . Les erreurs sont seulement statistiques. Les lignes tirées représentent les calculs de LCS à  $57^\circ$  et à  $63^\circ$ .

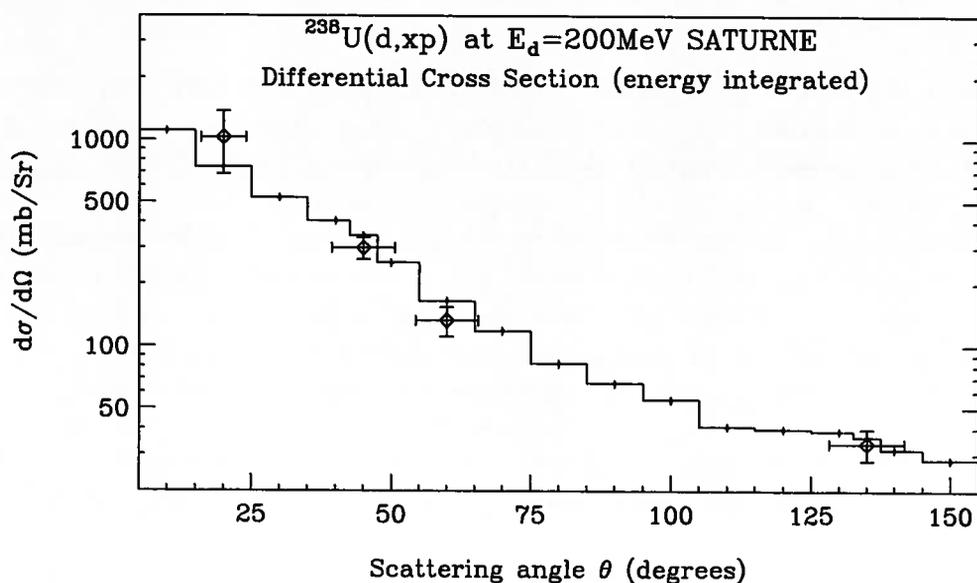


FIG. 6.4 – Spectre des protons, intégré en énergie ( $E_p \geq 25\text{MeV}$ ), pour la réaction  $^{238}\text{U}(d, xp)$  à  $E_d=200\text{MeV}$ . La ligne continue représente le calcul du code LCS.

Figure 6.4 présente la distribution angulaire des protons, où l'énergie a été intégrée pour  $E_p \geq 25\text{MeV}$ . Le temps de faisceau disponible étant très limité, les spectres des protons ont été obtenus à seulement quatre angles de diffusion ( $20^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $60^\circ$  et  $135^\circ$ ) et uniquement avec la cible épaisse d' $^{238}\text{U}$ . À cause des sections efficaces de production plus faibles, les spectres des autres particules chargées mesurés ont eu de plus mauvaises statistiques encore que ceux des protons.

À notre avis, la statistique des données est trop faible pour établir une comparaison valable entre les valeurs expérimentales et les calculs du code LCS. Néanmoins, avec les conditions expérimentales décrites ci-dessus, nous avons exécuté le code LCS avec ses paramètres d'entrée pris « par défaut ». Nous remarquons que les distributions angulaires et en énergie calculées sont en accord dans les barres d'erreur des points mesurés (voir les Figures 6.3 et 6.4). Ajoutons qu'il y a une tendance, et que la section efficace de production des protons à  $20^\circ$  (et peut-être à des angles plus vers l'avant) semble être sous-estimée par le calcul du code LCS, comme le montre la Figure 6.4. C'est exactement la région angulaire où la production de protons à partir de la dissociation coulombienne directe du deutéron commence à contribuer de façon comparable à la section efficace totale de production des nucléons (voir la discussion dans le Chapitre 2).

## 6.4 Conclusion

En dépit du temps limité de faisceau disponible et des problèmes de bruit de fond qui sont la cause de la statistique assez faible, notre mesure des spectres de particules chargées à partir des réactions induites par deutérons à Saturne conduit à quelques conclusions :

- a) des spectres en énergies des protons ont été mesurés à  $20^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $60^\circ$  et  $135^\circ$  pour la réaction  $\text{U}(d, xp)$  à  $E_d = 200\text{MeV}$ . Une cible d'uranium épaisse ( $2\text{g}/\text{cm}^2$ ) a défini le seuil en énergie de  $25\text{MeV}$  des protons mesurés ;
- b) les distributions angulaires et en énergie sont toutes deux reproduites (aux barres d'erreur près) par le code LCS, que nous avons exécuté en choisissant les paramètres d'entrée donnés « par défaut ». Cependant, il y a une tendance : la section efficace de production de protons à  $20^\circ$  (et peut-être à des angles plus vers l'avant) semble sous-estimée par les calculs de ce modèle.

Finalement, notre mesure nous a montré comment ce type d'expériences devrait être effectué. En bref, les points importants suivants méritent d'être mentionnés :

- \* les spectres des particules chargées ne peuvent pas être mesurés de façon fiable sans chambre de diffusion ;
- \* le faisceau de particules incidentes devrait être bien focalisé sur la cible (par exemple comme une tache de  $2\text{mm} \times 2\text{mm}$ ) et une surveillance de la focalisation du faisceau devrait être fournie en ligne ;

- \* aux angles de diffusion avant ( $\theta \leq 20^\circ$ ), les problèmes associés au bruit de fond dus i) aux queues de réaction des particules dans les détecteurs et, ii) à une contribution rapidement croissante de la diffusion élastique des particules incidentes, devraient être examinées soigneusement, et une solution à ces problèmes devra être trouvée.

Le dernier point sera discuté en détails dans le prochain chapitre.



# Chapitre 7

## Expérience de NAC

### 7.1 Introduction

Cette expérience fait suite à celle du chapitre précédent, et a visé la mesure des sections efficaces de particules chargées (p, d et t) avec des deutérons de 100MeV sur un certain nombre de cibles minces ( $9 \leq A \leq 238$ ). L'objectif principal était de tester les modèles utilisés pour les simulations liées aux réacteurs hybrides et aux faisceaux radioactifs. Des données expérimentales à moins de 10% d'erreur en valeur absolue et avec un seuil bas en énergie des ejectiles étaient nécessaires. D'autres buts de cette expérience ont été déjà identifiés dans le paragraphe 6.1 du Chapitre 6.

Il est important de rappeler que, dans le Chapitre 2, nous avons montré que le deutéron présente une forte probabilité de dissociation qui n'est pas reproduite par les codes actuels [Cug97, Mar97a]. Les codes modernes développés pour la dissociation des systèmes à halo riches en neutrons pourraient être efficacement utilisés [Tos98b, Rid99c]. Cette dissociation peut être extrêmement importante pour la construction des systèmes compacts dans lesquels les neutrons de grande énergie et aux angles avant jouent le rôle principal. À notre avis, il est beaucoup plus facile de réaliser la mesure des protons de dissociation que celle des neutrons, et cela fournit essentiellement la même information pour vérifier les modèles. Dans le Chapitre 2 nous avons également conclu que les mesures des nucléons de dissociation des réactions induites par deutéron sont surtout nécessaires aux angles avant, puisque c'est là que les modèles conventionnels semblent échouer.

Cependant, les mesures des protons des réactions (d,xp) pourraient être tout à fait aussi problématiques, principalement en raison de la contribution accrue de la diffusion élastique aux petits angles des particules incidentes et des réactions induites dans les détecteurs eux-mêmes (voir le Section 6.4 de Chapitre 6). Il est illustratif de considérer l'exemple suivant. La section efficace de diffusion élastique est donnée par  $d\sigma_{el}/d\Omega \sim 1/\sin^4 \frac{\theta}{2}$ , où  $\theta$  est un angle élastique de diffusion d'un projectile. Maintenant, allant de  $20^\circ$  (les distributions angulaires de proton typiques sont dans la région avec  $\theta_p \geq 20^\circ$  [Wu79a, För91]), par exemple, à  $8^\circ$ , la section efficace de diffusion élastique augmente de presque 2 ordres de grandeur. La contribution du bruit de fond correspondant va augmenter de manière semblable. Nous reviendrons

aux solutions possibles du problème particulier de bruit de fond et comment il été résolu dans le cas de notre expérience.

## 7.2 Dispositif expérimental

L'expérience a été réalisée au cyclotron du National Accelerator Centre [Bot84] (Faure, Afrique du Sud) en octobre 1998. Une description détaillée du cyclotron peut être trouvée dans Ref. [Pil89]. Le cyclotron injecteur d'ions légers accélère des deutérons à une énergie maximum de 8MeV pour l'injection dans la première orbite du cyclotron dans lequel les deutérons sont accélérés à une énergie maximum. L'énergie du faisceau a été déterminée pour être  $99.6 \pm 1.0$  MeV. La cage de Faraday est encastrée dans un bloc d'arrêt fortement protégé à 6m de la cible.

La chambre de réaction de 1.5m de diamètre a été utilisée pour cette expérience comme présenté dans la Figure 7.1. Le faisceau de deutérons a été focalisé dans une

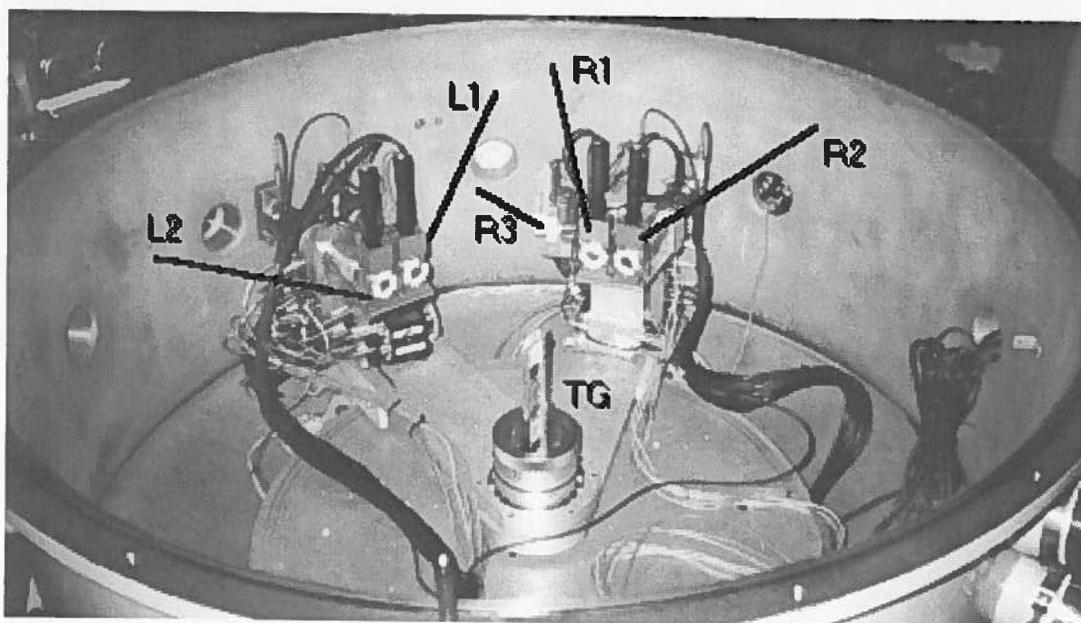


FIG. 7.1 – Une disposition de chambre de réaction de diamètre de 1.5m. 3 télescopes de double-compteur (R1, R2, R3) et 2 télescopes de triple-compteur (L1, L2) sont montés sur deux bras tournants (L=left et R=right) avec une exactitude angulaire de  $0.02^\circ$ . Un support de la cible (TG) est placée au milieu. Photographie par l'auteur.

tache de  $2\text{mm} \times 2\text{mm}$  sur la cible (TG) située au centre de la chambre. Un éventuel halo du faisceau, qui peut en principe être très gênant aux angles vers l'avant, a été surveillé de façon régulière pendant l'expérience par une comparaison des spectres obtenus avec la cible et avec un cadre vide. Le centrage angulaire du faisceau a été vérifié par des mesures gauche-droite pour chaque angle.

Les spectres en énergie des particules chargées secondaires ont été mesurés avec les deutérons de 100MeV sur 8 cibles différentes. Les cibles suivantes ont été utilisées (le nombre entre parenthèses représente une épaisseur en  $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) : Be(4.7), C(1.1), Al(5.5), Ni(1.1), Nb(3.0), Pb(5.7), Ta(3.6) et U(95.0). Les épaisseurs de cible ont été déterminées par pesage, et en mesurant la perte d'énergie de particules d' $\alpha$  d'une source de  $^{228}\text{Th}$ .

Les détecteurs étaient des télescopes conventionnels, chacun se composant de deux éléments (R1 et R2) ou de trois éléments (L1 et L2) : un détecteur NaI arrêtant les particules avec l'énergie résiduelle  $E$  et un ou deux détecteurs silicium à barrière de surface que les particules traversent en laissant un signal  $\Delta E$ . Voir les Figures 7.1 et 7.2. Ces télescopes ont été montés dans le même plan horizontal de réaction sur des supports fixés aux bras tournants (L=left et R=right) de la chambre de réaction. Un petit télescope supplémentaire de deux éléments de la géométrie compacte (R3) (voir les Figures 7.1 et 7.2) a été utilisé pour les mesures aux angles très vers l'avant.

Les télescopes R1 et R2 (détecteur silicium de  $500\mu\text{m}$  et détecteur NaI de 76mm de diamètre  $\times$  de 127mm d'épaisseur) ont été placés aux angles  $\theta_1$  et  $\theta_2=\theta_1+10^\circ$  respectivement, alors que les télescopes L1 et L2 (les détecteurs silicium de  $100\mu\text{m}$  et de  $1000\mu\text{m}$  et détecteur NaI de 76mm de diamètre  $\times$  de 127mm d'épaisseur) étaient placés aux angles  $\theta_3=360^\circ-\theta_1$  et  $\theta_4=360^\circ-\theta_2$  pour des mesures symétriques. Un télescope compact R3 (détecteur silicium de  $300\mu\text{m}$  et détecteur CsI carré de 13.5mm  $\times$  de 80mm d'épaisseur) a été utilisé aux angles  $\theta_5=\theta_1-15^\circ$  pour la détection de particules chargées aux angles vers l'avant (voir les Figures 7.1 et 7.2).

Des collimateurs passifs (PC), de 15mm d'épaisseur avec des trous circulaires centraux de 16mm de diamètre, ont été montés devant les télescopes L1, L2, R1 et R2 suivi des collimateurs actifs (AC), scintillateurs en plastique de 6mm d'épaisseur avec un trou circulaire central de 14mm de diamètre, montés juste après les collimateurs passifs (voir la Figure 7.1). En conséquence, des angles solides ont été définis par les collimateurs actifs (AC) dans le cas de télescopes L1, L2, R1 et R2, alors que le détecteur de silicium de la géométrie compacte définissait l'angle solide pour le télescope R3 (voir la Figure 7.2). Les collimateurs actifs sont essentiels pour éliminer des contributions dues à la diffusion dans les collimateurs passifs. Des feuilles de kapton de  $8\mu\text{m}$  ont été placées avant les collimateurs passifs (PC) pour réduire le flux des électrons secondaires émis de la cible sur les détecteurs silicium.

L'étalonnage d'énergie des détecteurs silicium a été fait avec une source d' $\alpha$  de  $^{228}\text{Th}$ , tandis que l'étalonnage d'énergie (légèrement non linéaire) des détecteurs NaI et CsI a été déterminé à l'aide de la cinématique de la diffusion élastique de protons et deutérons, obtenue avec une cible de  $\text{CH}_2$ .

L'électronique standard de coïncidences rapide et un système d'acquisition de données en ligne ont été employés pour traiter et enregistrer les données par événement sur bande pour l'analyse ultérieure. Pour un télescope L1 de triple-compteur la chaîne électronique est montrée explicitement dans la Figure 7.3) (voir le cadre défini par une ligne en tirets), tandis que pour les 4 autres télescopes, à savoir L2, R1, R2, et R3, les diagrammes sont similaires (voir également la Figure 7.2). Un système de générateur de diode électroluminescente permettait de vérifier des dérives de gain éventuels dans le photomultiplicateur des détecteurs de NaI. Des corrections dues

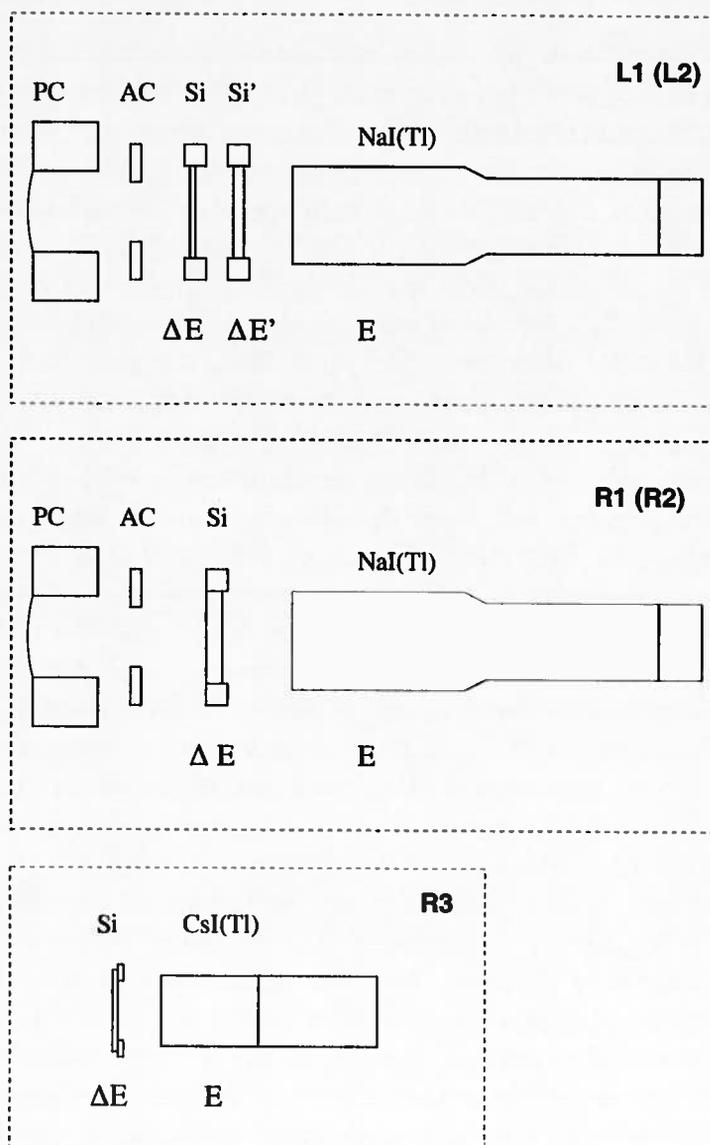


FIG. 7.2 – Schéma des télescopes de deux éléments (R1, R2 et R3) et de trois éléments (L1 et L2) pour la détection de particules chargées. AC représente le collimateur actif, alors que PC est le collimateur passif. Voir également la Figure 7.1 et le texte pour d'autres détails.

au temps mort électronique ont été basées sur les mêmes générateurs, et le temps mort d'ordinateur a été automatiquement corrigé par une sortie "occupée" utilisée comme signal "veto" dans le système électronique et dans l'intégrateur de courant.

Les taux de comptage dans les télescopes aux angles avant ont déterminé le courant maximum de faisceau qui pourrait être toléré, variant de 0.2nA à 20nA. Aux angles très vers l'avant ( $\theta \leq 15^\circ$ ), mesurés seulement avec le télescope R3 de la géométrie compacte, des courants encore inférieurs de faisceau étaient nécessaires. Dans ce cas particulier, le télescope L1 a été maintenu à  $\theta_1=15^\circ$ , et le comptage du télescope R3 était renormalisé en conséquence.

### 7.3 Les mesures et analyse de données

Les spectres en énergie pour les protons (p), les deutérons (d) et les tritons (t) ont été obtenus aux angles de  $120^\circ$  jusqu'à  $30^\circ$  par pas de  $10^\circ$ , de  $30^\circ$  jusqu'à  $10^\circ$  par pas de  $5^\circ$ , et à  $8^\circ$  (et à  $6^\circ$  pour Be, C, et Al).

L'identification des particules a été réalisée de manière standard à l'aide des signaux des détecteurs  $\Delta E$  (Si) et  $\Delta E'$  (Si') pour les particules s'arrêtant dans le détecteur Si' ainsi que par les détecteurs  $\Delta E'$  (Si') et E (NaI) pour les particules traversant le détecteur Si' (voir également la Figure 7.2). Cette technique a permis d'identifier les particules sans aucune ambiguïté sur un intervalle d'énergie de quelques MeV à l'énergie maximale. Nous notons que le seuil d'énergie est défini principalement par le parcours d'arrêt de la particule dans le premier détecteur silicium et dans la cible de production. Les spectres en énergie de p, d et t ont été obtenus en mettant des conditions sur les matrices  $\Delta E$  en fonction de  $\Delta E'$  et  $\Delta E'$  en fonction d'E. Les matrices typiques d'identification de particules sont présentées dans la Figure 7.4, où la perte d'énergie dans le premier détecteur silicium (Si) est tracée en fonction de la perte d'énergie dans le deuxième détecteur silicium (Si') (à gauche), et de la même façon, la perte d'énergie dans le deuxième détecteur silicium (Si') est tracée en fonction de l'énergie dans le détecteur d'arrêt NaI (à droite). Notons que le spectre bidimensionnel de gauche contient également toutes les particules énergétiques (voir en bas à gauche) qui ont traversé les détecteurs de Si et Si' sans être arrêtées. Pendant l'analyse de données "off-line", toutes ces particules traversantes sont éliminées de la matrice Si-Si' par anticoincidence avec le NaI (à gauche) elles sont identifiées dans la matrice Si'-NaI (à droite).

Un spectre en énergie a été construit par la somme normalisée des signaux (voir le Figure 7.4). Les télescopes de deux et trois éléments, utilisés pour des mesures symétriques à chaque angle, ont été utilisés pour combler des "trous" dans les spectres en énergie dus aux zones mortes des détecteurs et des seuils électroniques de chaque télescope. Cette méthode a également servi de vérification de la normalisation absolue qui était faite indépendamment pour tous les détecteurs.

Finalement, les spectres ont été corrigés pour les queues de réaction produites dans le détecteur, "slit scattering", et pour le bruit de fond contribué dû au halo de faisceau par soustraction du bruit de fond renormalisé mesuré avec un cadre vide. Les spectres ont été alors sommés en énergie sur 2MeV pour obtenir une statistique

Telescope L1

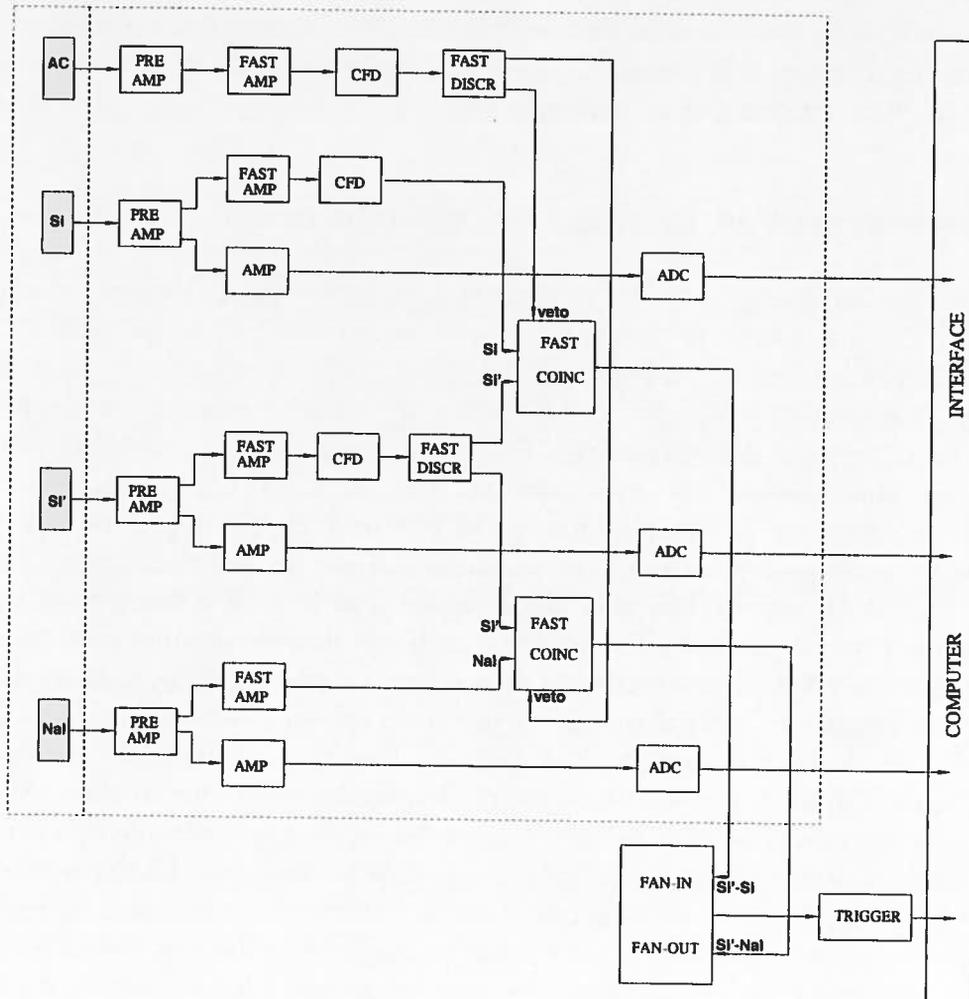


FIG. 7.3 – Le schéma fonctionnel d'électronique pour le télescope L1 de trois éléments. Un collimateur actif (AC), deux détecteurs de silicium (Si) et (Si') et un détecteur d'iode de sodium (NaI) sont identifiés par les rectangles sombres. Voir également la Figure 7.2.

correcte par bin.

La plus grande contribution à l'erreur systématique expérimentale est due à l'in-

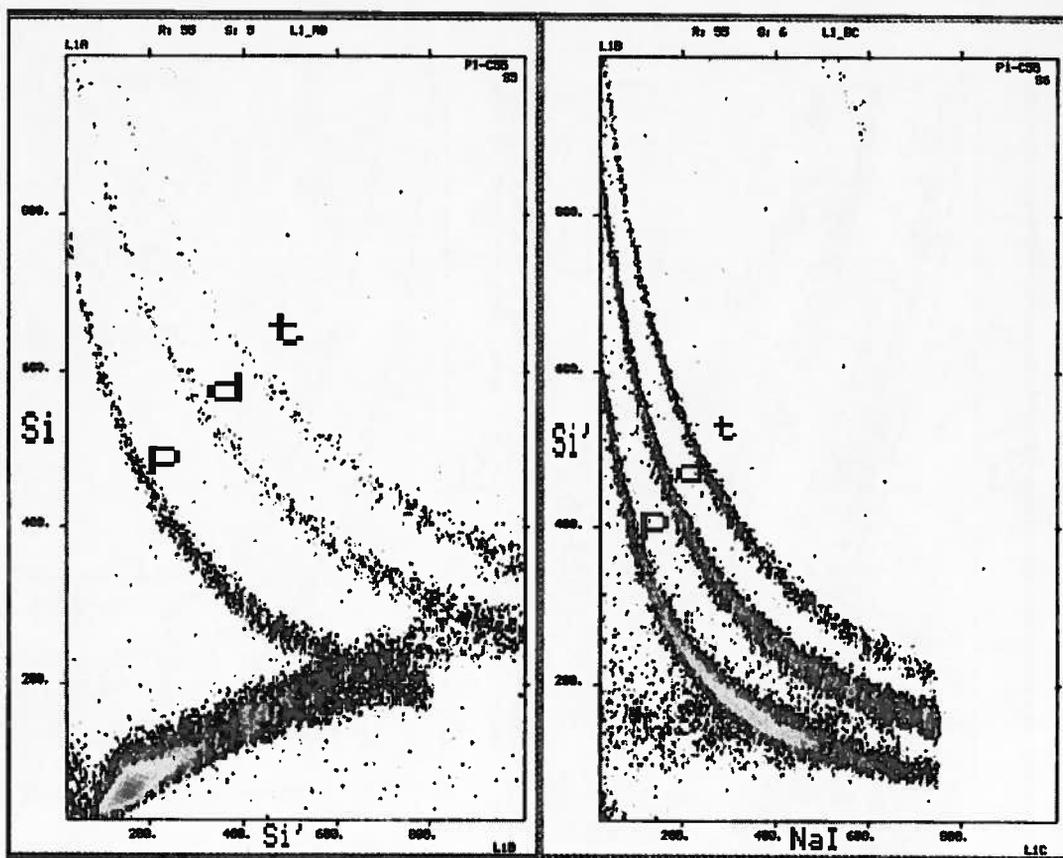


FIG. 7.4 - Les matrices typiques d'identification de particules résultant d'un télescope-triple L1 ( $100\text{MeV } d+U$  et  $\theta=30^\circ$ ). La notation suivante est utilisée:  $\Delta E$  en fonction de  $\Delta E'$  comme Si-Si' du côté gauche et  $\Delta E'$  en fonction de  $E$  comme Si'-NaI du côté droit. Voir également la Figure 7.2.

certitude introduite par le contour d'identification fait sur l'histogramme aux angles très vers l'avant ( $\theta < 15^\circ$ ) (voir la partie gauche de la Figure 7.5). Pour le télescope R3, utilisé seulement aux angles vers l'avant, il y avait une certaine transparence des événements de deutérons dans le contour correspondant aux protons, en particulier dans la région correspondant aux énergies les plus élevées. Ces événements correspondant aux deutérons dans ce contour sont principalement dus à la réaction des deutérons dans le cristal CsI. Une partie de l'énergie n'est pas détectée, et par conséquent donne une queue horizontale correspondant aux deutérons. Ce problème particulier (déjà mentionné dans les paragraphes 6.4 et 7.1 de ce travail, et maintenant clairement visualisé sur la Figure 7.5 (du côté gauche)) devient important principalement aux angles très vers l'avant et a pour limite le plus petit angle de diffusion mesurable. L'extension de telles mesures vers les angles très vers l'avant, c.-t.-d.  $0 \leq \theta_p \leq 8^\circ$ , pourrait être réalisée avec un spectromètre.

Pour résoudre ce problème, nous avons réalisé séparément les mesures  $H_2(d,pd)$  en coïncidence cinématique aux angles vers l'avant. La Figure 7.5 (partie de droite) montre les deutérons détectés à  $8^\circ$  en coïncidence. La contribution du bruit de fond

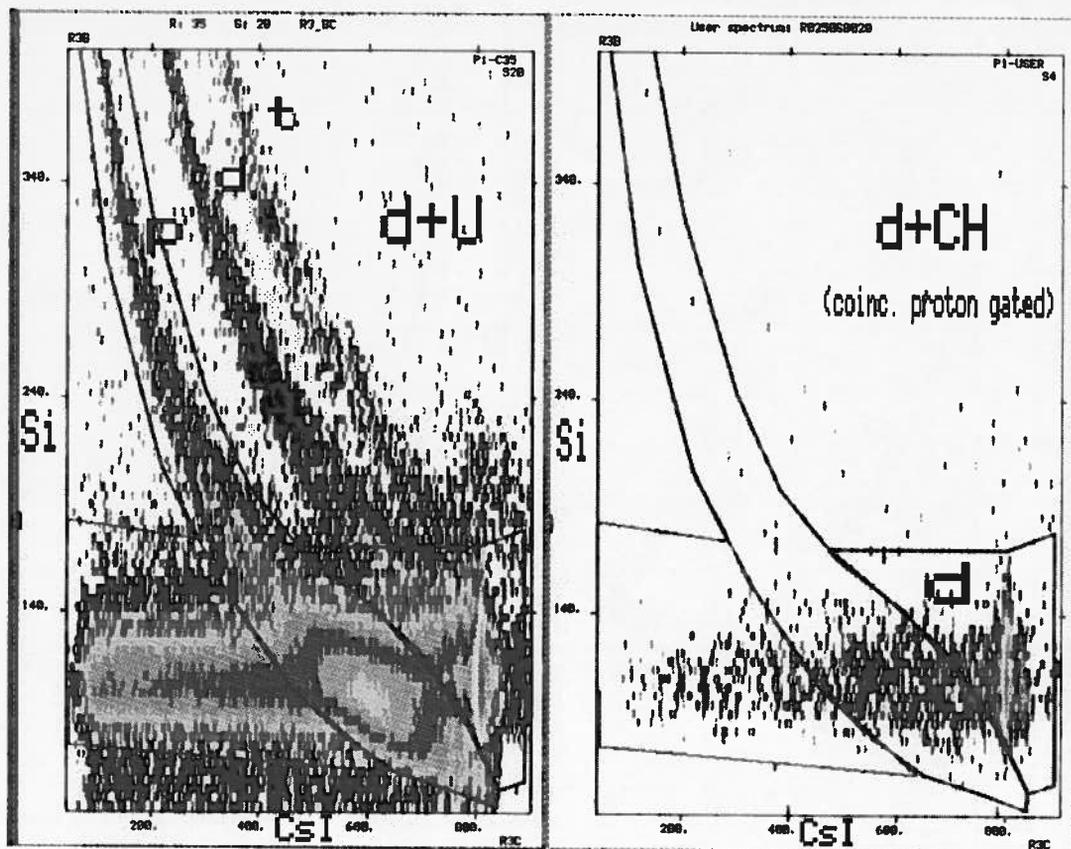


FIG. 7.5 – La matrice typique d'identification résultant d'un double-télescope compact R3 utilisé aux angles vers l'avant (ici pour  $100\text{MeV } d+U$  et  $\theta=8^\circ$ ) est présentée à gauche. La contribution du bruit de fond en raison de « tailing » du pic de diffusion élastique du deutéron (ici pour  $100\text{MeV } d+CH_2$  et  $\theta=8^\circ$ ) est montrée à droite pour comparaison. La notation suivante est utilisée :  $\Delta E$  en fonction d' $E$  comme Si-CsI. Voir également la Figure 7.2.

dû à la queue du pic de diffusion élastique des deutérons dans le contour des protons est clairement identifiée. La renormalisation de ce spectre du bruit de fond, selon le taux de comptage du pic correspondant aux deutérons dans le cas des cibles, permet de corriger les spectres des protons aux angles vers l'avant. Le bruit de fond dû à la queue du pic de diffusion élastique des deutérons contribue jusqu'à 25% à  $6-8^\circ$ , et était de moins de 1% déjà à  $15^\circ$ . La contribution du bruit de fond à partir de la cible-trou était toujours de moins de 3%, même aux plus petits angles de diffusion mesurés, c.-à-d. à  $6-8^\circ$ .

Notons que la contribution de la queue de réaction du pic élastique des deutérons dans le détecteur silicium de  $300\mu\text{m}$  (comparé au cristal CsI de  $80\text{mm}$ ) était négli-

geable comme clairement vu dans la Figure 7.5. On peut l'expliquer par le nombre d'interactions proportionnelles au parcours.

Il existe d'autres incertitudes de normalisation : a) l'incertitude des épaisseurs des cibles ( $\sim 4\%$ ). Les épaisseurs de cible ont été déterminées par pesage et confirmées en mesurant la perte d'énergie des particules  $\alpha$  d'une source de  $^{228}\text{Th}$  ; b) la détermination des angles solides et du décalage angulaire du faisceau ( $\sim 3\%$ ). Cette erreur a été obtenue à l'aide de la géométrie de l'installation expérimentale et vérifiée par les mesures gauche-droite effectuées pour chaque angle ; c) les incertitudes dues aux diverses corrections ( $< 5\%$ ), en particulier aux corrections dues à l'élimination de bruit de fond comme exposé ci-dessus. La plus grande incertitude s'est produite pour les angles les plus vers l'avant ; d) le courant intégré de faisceau ( $< 2\%$  [Pil89]). Les incertitudes supplémentaires ont pu également résulter du mélange de particules, du temps mort d'électronique et des contaminants des cibles. Cependant, ceux-ci ont été considérés faibles ( $< 2\%$ ). En obtenant la section efficace de production totale, quelques incertitudes pourraient également surgir ( $< 5\%$ ) en raison des procédures d'extrapolation, d'interpolation et de minimisation (voir ci-dessous).

En nous basant sur ces diverses incertitudes expérimentales, nous pouvons estimer que l'erreur systématique des sections efficaces finales est inférieure à  $9\%$ , à l'exception des cibles de Pb et U. Dans ces deux cas particuliers les erreurs sont plus élevées en raison des incertitudes supplémentaires liées à l'épaisseur de la cible (U) et à la contamination de la cible par l'oxygène (Pb et U) comme explicité dans l'Annexe A.

## 7.4 Résultats et discussion

Dorénavant, nous nous intéresserons uniquement à la partie de notre expérience liée à la production de protons à partir des réactions induites par deutérons. Les données sur la production des deutérons et des tritons seront présentées séparément. L'Annexe A donne tous les spectres en énergie des protons des réactions Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb, et U(d,xp) à  $E_d=100\text{MeV}$ . Les Figures A.1-A.8 sont destinées à illustrer les ressemblances et/ou les différences dans la forme des spectres, ainsi que la dépendance angulaire systématique des spectres pour les divers noyaux de cible. Les valeurs des sections efficaces ainsi que les erreurs statistiques correspondantes de ces spectres peuvent être obtenues auprès des auteurs, sur demande.

### 7.4.1 Spectres en énergie

Des spectres en énergie différentiels typiques des protons sont présentés sur la Figure 7.6 pour la cible de  $^{58}\text{Ni}$  dans le système laboratoire. Comme on le voit sur le haut de la Figure 7.6, l'importance des protons de grande énergie diminue très rapidement avec l'augmentation des angles, alors que les régions à basse énergie montrent peu de variation avec l'angle. Aux plus grandes énergies, on voit des structures discrètes pour toutes les cibles aux angles vers l'avant (voir également l'Annexe A). Ces pics discrets proviennent des réactions de "stripping" du deutéron

conduisant aux états liés des noyaux résiduels. Cependant, la contribution de ces

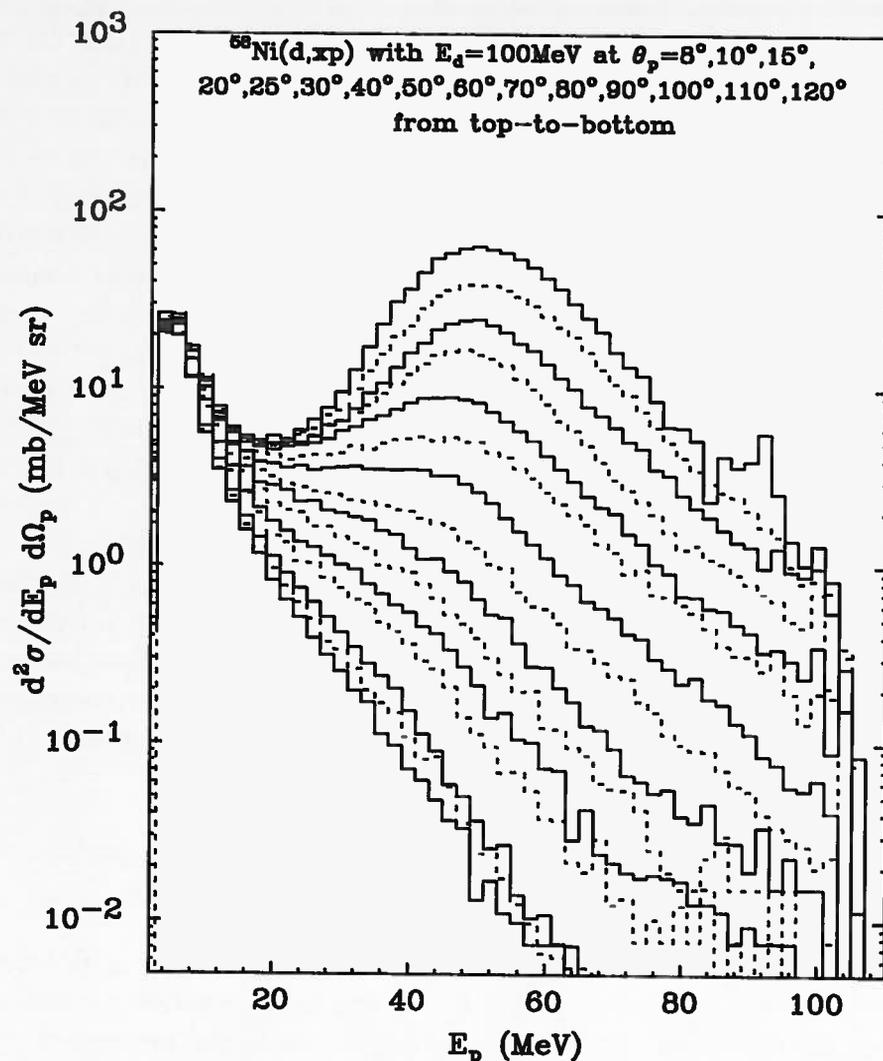


FIG. 7.6 – Spectres en énergie différentiels des protons de  $8^\circ$  à  $120^\circ$  des deutérons de  $100\text{MeV}$  pour la cible de  $^{58}\text{Ni}$ .

états, est plutôt faible en comparaison avec la production totale des protons. Nous notons également que la structure détaillée de ces pics n'est pas très bien visible nos spectres étant sommés en énergie par intervalles de  $2\text{MeV}$ .

Aux énergies en-dessous de ces pics de haute énergie, les spectres à petits angles augmentent rapidement pour atteindre rapidement un maximum situé approximativement à la moitié de l'énergie incidente du deuteron. Ce pic large est dû au processus de dissociation du deuteron qui domine la production de protons aux angles vers l'avant. Le taux de dissociation du deuteron diminue fortement avec l'augmentation de l'angle et l'emplacement du pic se décale vers une énergie légèrement plus basse. Sur les figures d'Annexe A, on peut également voir que la section efficace de dissociation augmente avec la masse de la cible.

Aux énergies inférieures à celle correspondant à la dissociation du deuteron, les

spectres augmentent, atteignant un autre maximum approximativement à l'énergie de barrière coulombienne du proton pour chaque noyau-cible. Ce pic est dû à l'évaporation des protons. Pour les noyaux lourds, le pic d'évaporation aux angles vers l'avant n'est pas aussi prononcée que pour les cibles légères (voir les figures de l'Annexe A). D'une part, la barrière coulombienne diminue l'émission des particules chargées à basse énergie pour ces cibles. D'autre part, deux autres processus concurrents, à savoir l'évaporation de neutrons et la fission, sont plus favorables pour les noyaux plus lourds. La probabilité d'évaporation diminue et l'énergie maximale se déplace vers l'énergie plus élevée avec l'augmentation de la barrière. Pour les angles supérieurs à  $90^\circ$ , les formes des spectres sont très semblables et l'importance du pic d'évaporation est pratiquement constante pour un noyau particulier, indiquant qu'il s'agit du processus d'évaporation nucléaire du noyau composé. Cependant, comme le verrons plus tard, une composante de non-équilibre semble également exister. Ce comportement permet d'estimer la section efficace d'évaporation totale. Pour les noyaux légers (Be, C) et les noyaux lourds (Ta, Pb, U), le processus d'évaporation contribue pour moins de 10% à tout le rendement de protons. En plus de la contribution dominante de dissociation du deutéron, les réactions de non-équilibre sont plus importantes que l'évaporation pour ces noyaux.

Pour les noyaux de masse intermédiaire (Al, Ni, Nb), les spectres montrent un pic d'évaporation prononcé. Dans ce cas-ci, l'importance de l'évaporation et les processus de non-équilibre est comparable.

## 7.4.2 Distributions angulaires

Les distributions angulaires différentielles typiques des protons pour différents intervalles d'énergie sont présentées sur la Figure 7.7. Les distributions angulaires ne montrent pas de structures, et sont semblables pour tous les noyaux-cibles étudiés. Les protons de haute énergie ( $>20\text{MeV}$ ) ont une distribution angulaire piquée vers l'avant. Ceci suggère que des processus directs ou des processus de non-équilibre dominant la réaction dans cette région des spectres. La distribution des protons à basse énergie est presque isotropique pour des noyaux plus légers mais augmente légèrement aux angles vers l'avant pour les noyaux lourds.

Depuis la systématique de la distribution angulaire dans les réactions induites par nucléon et particule  $\alpha$  aux énergies jusqu'à plusieurs centaines de MeV ont été étudiés intensivement et ont été avec succès paramétrisées par Kalbach-Mann (KM) [Kal81], nous trouvons intéressant cette méthode pour examiner la phénoménologie des réactions induites par deutéron.

La paramétrisation KM se compose de deux parties : la première qui explique les réactions directes et l'autre partie qui décrit le processus de noyau composé [Kal81]. On suppose que la paramétrisation est liée aux mécanismes de réactions comme "multistep direct" (MSD) et "multistep compound" (MSC) – les processus physiques fondamentaux. L'expression générale de la systématique KM pour les protons éjectés avec des énergies  $E_p$  et l'angle de diffusion  $\theta$  donné dans le système

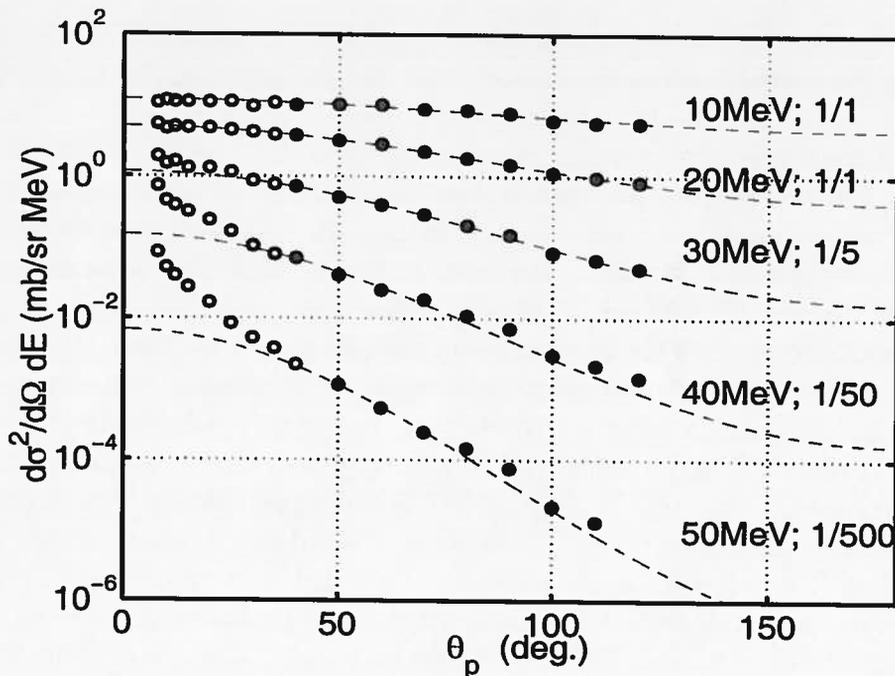


FIG. 7.7 – Distributions angulaires différentielles pour différents coffres d'énergie des protons avec les deutérons 100MeV sur  $^{58}\text{Ni}$  dans le système du laboratoire. Des courbes de données, représentées par des points, sont multipliées par les facteurs (indiqués ainsi que des intervalles d'énergie) pour clarté. Les courbes à tiret sont les meilleurs ajustements basés sur les formules de Kalbach-Mann [Kal81] (voir le texte pour des détails).

CM, ont la forme suivante [Kal88]:

$$\frac{d\sigma^2}{d\Omega dE_p} = \frac{1}{4\pi} \frac{d\sigma}{dE_p} \frac{\eta}{\sinh(\eta)} \{ \cosh(\eta \cos \theta) + f_{MSD} \sinh(\eta \cos \theta) \}. \quad (7.1)$$

La pente  $\eta$  devrait, en première approximation, être une fonction d'un seul paramètre d'énergie, qui dépend de l'énergie de liaison empirique de la particule émise par noyau composé, de l'énergie de liaison de projectile et de l'énergie totale cinétique de l'éjectile. Nous renvoyons le lecteur à Refs. [Kal81, Kal88] pour une formulation plus détaillée de ce paramètre d'énergie. On suppose que la section efficace intégrée par angle  $d\sigma/dE_p$  et la fraction  $f_{MSD}$ , de la section efficace de réaction directe est connue des calculs de modèle de pré-équilibre ou de l'expérience [Kal88].

Pour simplifier, nous avons gardé les trois paramètres dans l'Equation 7.1, à savoir  $\eta$ ,  $d\sigma/dE_p$  et  $f_{MSD}$ , en tant que paramètres libres pour un ajustement approprié standard. De cette façon nous avons voulu examiner uniquement les tendances les plus générales de la systématique KM pour des réactions induites par deutérons.

Nos résultats sont présentés dans la Figure 7.7. Nous avons constaté que les distributions angulaires pour des protons de basse énergie peuvent être reproduites sans aucune difficulté pour tous les angles (voir les courbes à tiret pour 10MeV et 20MeV). Cependant, il n'était pas possible avec cette formulation phénoménologique

de donner une description correcte des spectres pour des énergies plus élevées des ejectiles ( $E_p > 30\text{MeV}$ ) et aux angles vers l'avant ( $\theta_p < 40^\circ$ ).

Aux conditions angulaires et d'énergie ci-dessus, la dissociation directe du deutéron incident domine les processus de production de proton, ce qui n'est pas pris en considération dans la formulation actuelle de KM [Kal88]. Nos données devraient fournir un étalon pour le développement théorique ultérieur dans ce contexte. Rappelons que dans les travaux de Wu *et al.* [Wu79a], des spectres de proton ont été mesurés aux angles  $\theta_p \geq 20^\circ$ , et l'extension de mesures des angles plus vers l'avant était nécessaire. C'est dans cette nouvelle région angulaire, qu'il y a le plus grand désaccord entre l'expérience et la formulation phénoménologique KM comme le montre la Figure 7.7.

### 7.4.3 Discussion

La Figure 7.8 présente la distribution angulaire des protons (intégrée en énergie) de la réaction  $^{58}\text{Ni}(d, xp)$  à  $E_d=100\text{MeV}$ . Pour l'intégration, le modèle de Serber a été

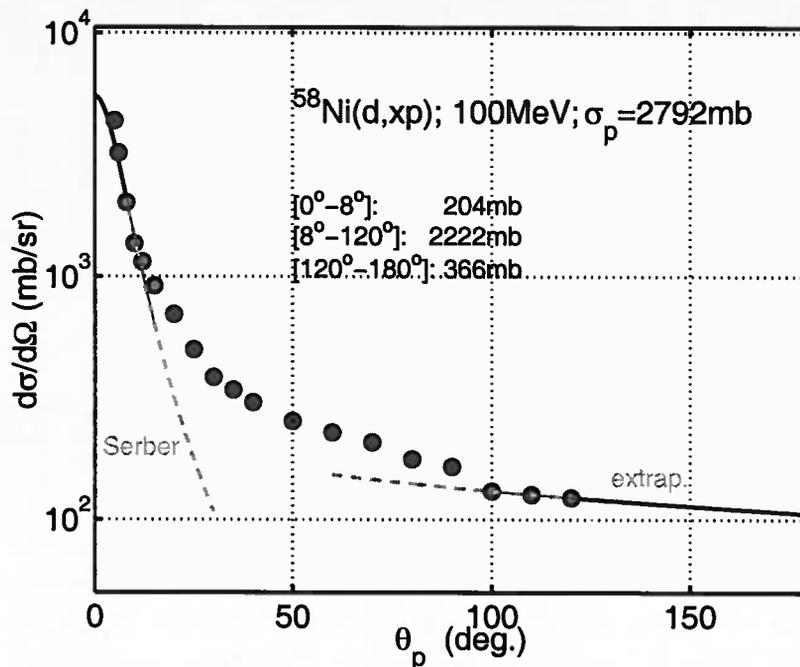


FIG. 7.8 – L'estimation de la section efficace intégrale de production de protons  $\sigma_p$  à partir de la réaction  $^{58}\text{Ni}(d, xp)$  à  $E_d=100\text{MeV}$ . Des contributions partielles de trois régions angulaires différentes sont données explicitement.

utilisé pour la dissociation du deutéron [Ser47a, Ser47b] afin d'estimer les sections efficaces dans la région angulaire  $\theta_p=[0^\circ, 8^\circ]$  (voir la Figure 7.8). Nous notons également qu'une technique standard de minimisation a été utilisée pour renormaliser la courbe théorique aux points expérimentaux existants aux angles les plus vers l'avant où le modèle de Serber semble bien fonctionner, c.-à.-d.  $\theta_p < 15^\circ$  [Ser47a, Ser47b].

Dans la région angulaire  $\theta_p=[120^\circ,180^\circ]$ , une méthode standard d'extrapolation-interpolation a été utilisée pour estimer les points d'intégration situés en dehors des données expérimentales (voir le Figure 7.8). L'erreur globale sur la section efficace intégrée de production de protons  $\sigma_p$  est  $\sim 10\%$ .

La Figure 7.9 montre la dépendance de la section efficace de production totale de protons en fonction des noyaux-cible. Nous avons constaté que la production totale des protons  $\sigma_p$  atteint un maximum dans la région de masse autour du  $^{58}\text{Ni}$ . La diminution de la section efficace de production de protons  $\sigma_p$  pour les noyaux de masse élevée reflète certainement l'importance croissante de l'émission de neutrons et de la fission. La barrière coulombienne croissante empêche l'émission des particules chargées de basse énergie. Notons également que nos données concordent avec les mesures de Wu *et al.* [Wu79a] pour les cibles semblables mais à des énergies

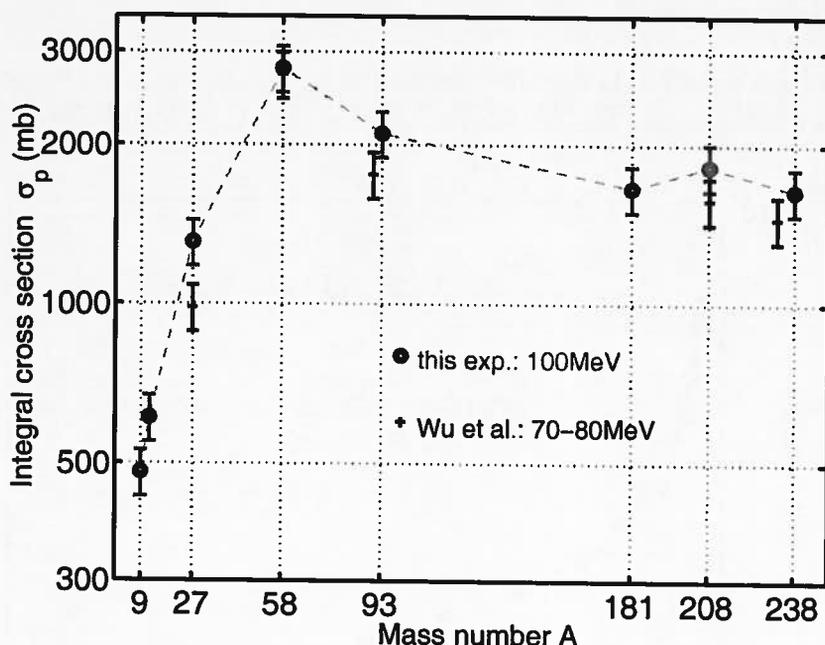


FIG. 7.9 – La variation de la section efficace de production totale de protons avec la masse nucléaire de la cible. En plus de nos données expérimentales (*this exp.*), présentées par les cercles pleins, les données de Wu *et al.* [Wu79a], pris aux énergies inférieures de deutérons incidents, sont tracés (des croix) pour comparaison.

inférieures pour les deutérons incidents comme l'indique la Figure 7.9. Cependant, l'évaluation de la section efficace intégrée par Wu *et al.* [Wu79a] devrait être moins précise en raison du manque de données aux angles très vers l'avant ( $\theta_p=[8^\circ,20^\circ]$ ).

Nous avons déjà mentionné que, pour les angles supérieurs à  $90^\circ$ , la forme des spectres en énergie et la grandeur du pic sont presque constants pour un noyau particulier, ceci indiquant que le rendement de protons aux angles en arrière est dominé par le processus d'évaporation nucléaire du noyau composé. La Figure 7.10 présente une forme typique de la distribution en énergie des protons produits en arrière. En utilisant le modèle d'évaporation de Weisskopf (exponentiel), nous avons ajusté les

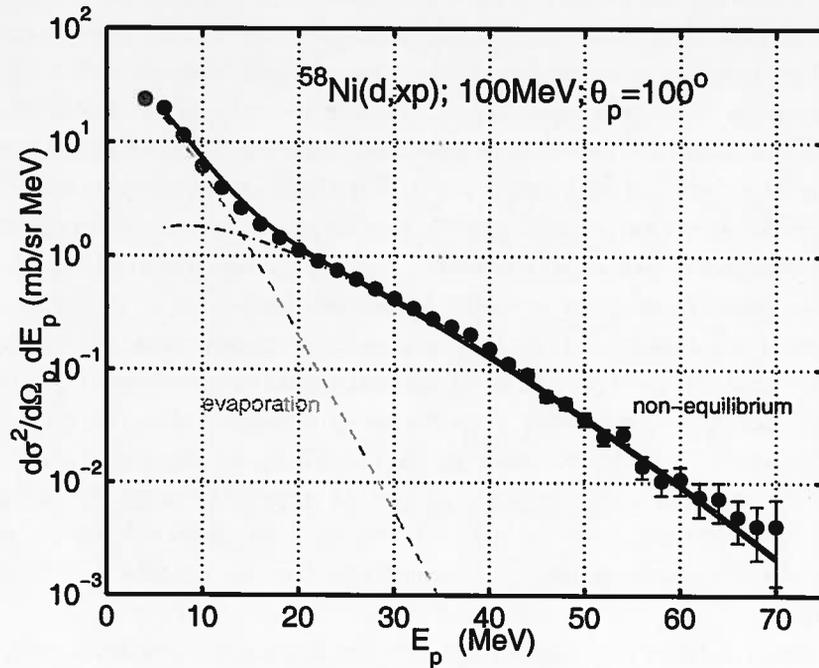


FIG. 7.10 – Un spectre d'énergies typique de proton aux angles en arrière. Les contributions d'évaporation et de non-équilibre sont indiquées séparément.

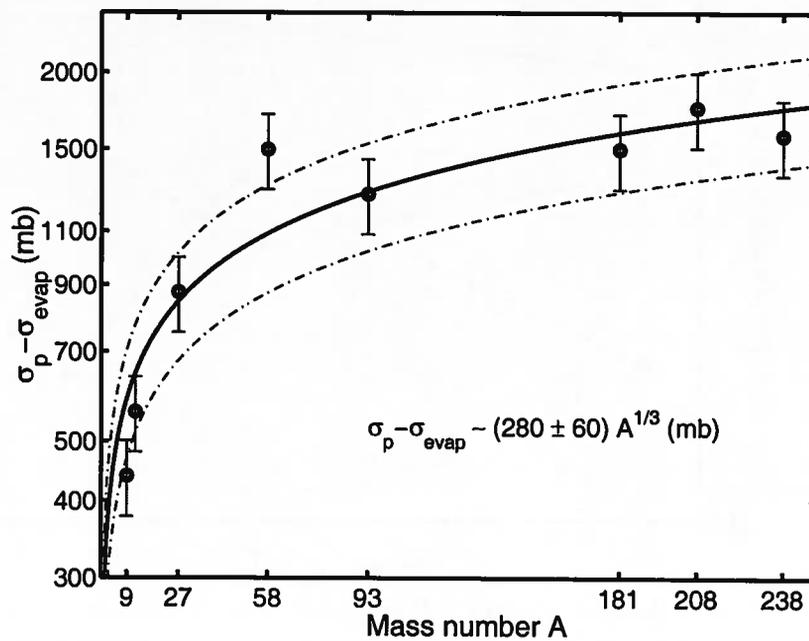


FIG. 7.11 – La variation de la section efficace de non-équilibre de protons avec la masse nucléaire de la cible. La ligne épaisse pleine montre la dépendance en  $A^{1/3}$ .

points expérimentaux au niveau du pic d'évaporation (courbe en tirets). Aux angles arrière, une petite mais non négligeable composante de non-équilibre semble également exister, nous la prenons en compte en utilisant une distribution gaussienne simple (courbe en tiret-pointillée). En ajoutant les contributions d'évaporation et de non-équilibre nous obtenons un bon accord avec les données expérimentales (voir courbe en ligne solide sur la Figure 7.10). En répétant le même procédé pour tous les angles arrière et en supposant que la distribution angulaire du spectre d'évaporation est symétrique par rapport à  $90^\circ$ , nous pouvons estimer la section efficace d'évaporation intégrée  $\sigma_{evap}$  pour tous les noyaux-cible.

La Figure 7.11 montre la section efficace de production de protons de non-équilibre, obtenue en soustrayant la contribution d'évaporation (équilibre)  $\sigma_{evap}$  de la section efficace totale  $\sigma_p$ . Nous constatons que l'expression  $(\sigma_p - \sigma_{evap})/A^{1/3}$  a une valeur pratiquement constante (voir la Figure 7.11) au moyen de la courbe pleine qui est le meilleur ajustement  $(\sigma_p - \sigma_{evap})$  avec la dépendance en  $A^{1/3}$ . La production des protons énergétiques (non-équilibre) semble être proportionnelle au rayon nucléaire, suggérant que ces protons puissent résulter en grande partie des collisions périphériques.

Les sections efficaces de réaction  $\sigma_R$  des deutérons ont été mesurées pour Be, Ni et Pb (et un certain nombre d'autres cibles) à 97.4 MeV [Auc96]. Ceci nous permet dans la Figure 7.12 de tracer les multiplicités de protons  $Y_p = \sigma_p / \sigma_R$  obtenus expéri-

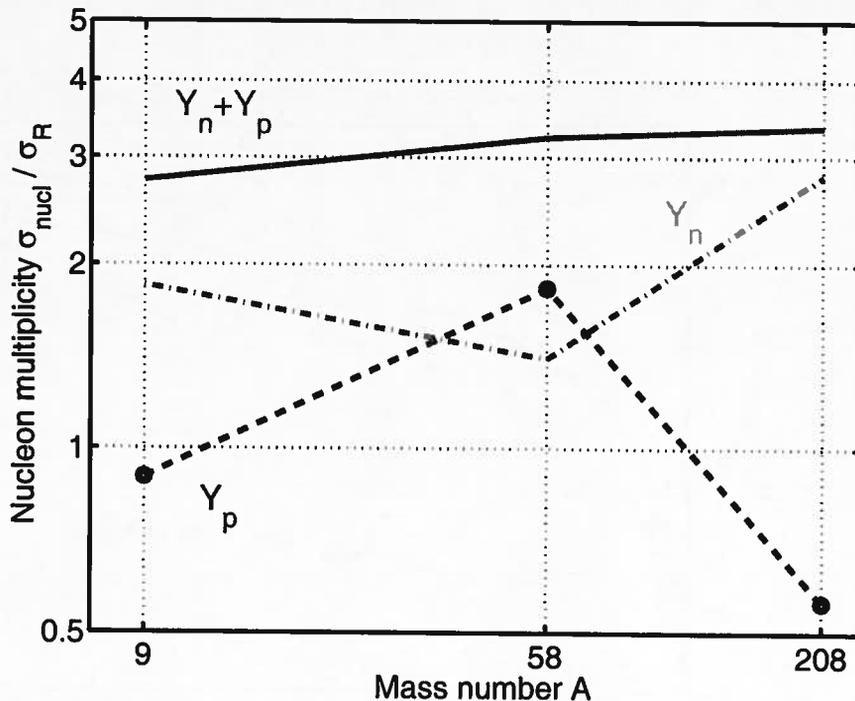


FIG. 7.12 – Variation de multiplicités totales moyennes de protons ( $Y_p$ ), de neutrons ( $Y_n$ ) et de nucléons ( $Y_n + Y_p$ ) avec la masse nucléaire de la cible pour les deutérons incidents avec  $E_d = 100 \text{ MeV}$ .

mentalement ainsi que les multiplicités de neutrons  $Y_n = \sigma_n / \sigma_R$  résultant des calculs du code LCS.

Il est intéressant de noter que  $Y_p$  et  $Y_n$  se comportent différemment en fonction de la masse de cible; la production totale des protons est maximale pour le Ni, alors que la production totale des neutrons est minimale pour le Ni (à comparer les courbes à tiret et à tiret-pointillées de la Figure 7.12). Cela peut être expliqué en termes d'évaporation de neutrons et de la fission qui deviendraient plus favorables pour les noyaux plus lourds. Pour des noyaux plus lourds, la barrière coulombienne diminue également l'émission de particules chargées de basse énergie. D'autre part, nous avons déjà montré que la réaction  $d+Be$  est très efficace dans la production de neutrons. Par conséquent, il n'est pas surprenant que la production correspondante de protons dans le cas de ce noyau léger soit pratiquement supprimée.

Nous montrons également dans la même Figure 7.12 que la multiplicité totale de nucléons  $Y_n+Y_p$  n'est pas aussi sensible à la masse nucléaire comparée à  $Y_n$  et à  $Y_p$  séparément. Ceci pourrait signifier que le taux de production d'autres particules chargées ( $d$ ,  $t$ ,  $^3He$  et  $^4He$ ) prises ensemble est presque constant en fonction des noyaux-cible, peut-être légèrement plus haut pour les masses nucléaires plus légères.

Un bref résumé des résultats expérimentaux est présenté dans le Tableau 7.1. Les barrières coulombiennes ont été obtenues à partir de  $V_c = \frac{1.44Z}{1.5(A^{1/3}+1^{1/3})}$  pour différentes cibles de masse  $A$  et de charge  $Z$ . Les sections efficaces de réaction  $\sigma_R$ , utilisées pour estimer le rendement moyen  $Y_p = \frac{\sigma_p}{\sigma_R}$  de protons, proviennent de [Auc96]. Dans le cas où il n'y avait aucune donnée expérimentale disponible pour certaines cibles, les sections efficaces de réaction étaient calculées à partir du meilleur ajustement sur les données expérimentales existantes en utilisant une expression empirique  $\sigma_R = \pi(1.58 A^{1/3} + 0.671 A_d^{1/3})^2$  fournie par Auce *et al.* [Auc96]. Ici  $A$  et  $A_d$  sont respectivement les nombres de masse de la cible et du deutéron.

Target	Low energy cutoff (MeV)	Coulomb barrier $V_c$ (MeV)	Tot. integr. x-section $\sigma_p$ (mb)	Evap. x-section $\sigma_{evap}$ (mb)	Non-equilibr. x-section $\sigma_p - \sigma_{evap}$ (mb)	Proton yield $Y_p = \frac{\sigma_p}{\sigma_R}$
$^9Be$	4	1.25	481	42	439	0.90
$^{12}C$	4	1.75	610	52	558	1.01
$^{27}Al$	4	3.12	1308	433	875	1.31
$^{58}Ni$	4	5.52	2792	1209	1583	1.83
$^{93}Nb$	4	7.12	2102	836	1266	1.04
$^{181}Ta$	6	10.53	1658	159	1499	0.55
$^{208}Pb$	8	11.37	1823	71	1752	0.56
$^{238}U$	8	12.27	1641	62	1579	0.46

TAB. 7.1 - Résumé des résultats expérimentaux pour la production de protons à partir des réactions  $(d, xp)$  à  $E_d=100MeV$ .

## 7.5 Comparaison avec les calculs du code LCS

Les modèles de physique du code LCS ont déjà été décrits en détail dans le Chapitre 1. Nous rappellerons uniquement que, pour les réactions induites par deutérons,

nous utilisons le modèle d'INC ISABEL couplé au modèle d'exciton de pré-équilibre avec plusieurs étapes (MPM) et au modèle d'évaporation ultérieur (EVAP). La notation suivante sera utilisée :

a) "INC1" est l'INC ISABEL avec son option "ijkl=22" [Pra89], qui tient compte de la réfraction des particules chargées causée par le potentiel coulombien ainsi que par le potentiel nucléaire, quand elles traversent "le volume de potentiel nucléaire". MPM est autorisé dans cette option ;

b) "INC2" est l'INC ISABEL avec son option "ijkl=23" (donné "par défaut" dans les cartes d'entrée [Pra89]), par laquelle ni la réfraction coulombienne ni la réfraction nucléaire ne sont autorisées. Le MPM est inclus dans cette option ;

c) "INC3" est identique à "INC1", dans le cas où l'option de MPM est supprimée.

Nous notons de plus que la carte "ijkl" devrait être utilisée avec une certaine prudence. Nous avons trouvé que l'"ijkl", comme d'autres options du modèle d'INC ISABEL, n'a pas été complètement déboguée [Pra89]. Par exemple, "ijkl=22" pour la cible de  $^9\text{Be}$  fonctionne sans problèmes avec 50.000 historiques, alors qu'avec la cible de  $^{208}\text{Pb}$ , il se termine anormalement avec un message d'erreur après 1000 historiques. Les auteurs du LCS ont été informés de ces erreurs.

Les prédictions de modèle de LCS (voir l'option INC1 ci-dessus) pour les sections efficaces totales de production de protons avec les deutérons de 100MeV sur 8 cibles divisées par les valeurs expérimentales correspondantes, c.-à-d. le taux  $\sigma_p(\text{théor.})/\sigma_p(\text{expér.})$ , sont représentées dans la Figure 7.13 (le total est représenté par la courbe pleine).

L'accord entre les valeurs expérimentales et théoriques est étonnamment bon (moins de 10% d'écart) pour toutes les cibles examinées. Il est important de noter que l'utilisation d'une réfraction coulombienne et nucléaire optionnelle pour les particules chargées dans le code LCS est vivement recommandée. Quand on ne permet pas cette réfraction (voir l'option INC2 ci-dessus), on obtient une surestimation systématique (~20%) de la section efficace de production totale de protons. Cette surestimation se produit dans la région angulaire de  $20^\circ$  à  $70^\circ$ , ce qui sera détaillé ci-dessous.

Dans la Figure 7.13, nous traçons séparément le taux de  $\sigma_p(\text{théor.})/\sigma_p(\text{expér.})$ , représenté par des cercles, pour la production de protons due au processus d'évaporation (evap.: cercles). Un bon accord est obtenu uniquement pour les noyaux de Ni(A=58) et de Pb(A=208). Dans le cas des autres cibles, les calculs présentent de grandes anomalies une fois comparés aux valeurs extraites de l'expérience. Ceci suggérerait que le passage de l'étape d'INC à l'étape de la décroissance d'un noyau composé équilibré (et/ou de l'étape de pré-équilibre) est toujours quelque peu arbitraire dans le code LCS. Un travail théorique supplémentaire est en cours en ce moment. D'autre part, pour les noyaux comme Be, C, Ta, Pb et U, plus de 90% des protons secondaires sont produits par des processus directs et/ou de pré-équilibre comme le montre le Tableau 7.1. Par conséquent, en dépit des grandes différences liées à la prédiction de la production des protons dues au processus d'évaporation (evap.: cercles), les sections efficaces intégrales sont évaluées correctement (total: ligne solide).

La Figure 7.14 est très semblable à la Figure 2.7 déjà présentée en détails dans le Chapitre 2 ainsi que dans [Rid99c]. Avec les prévisions du code LCS, nous tra-

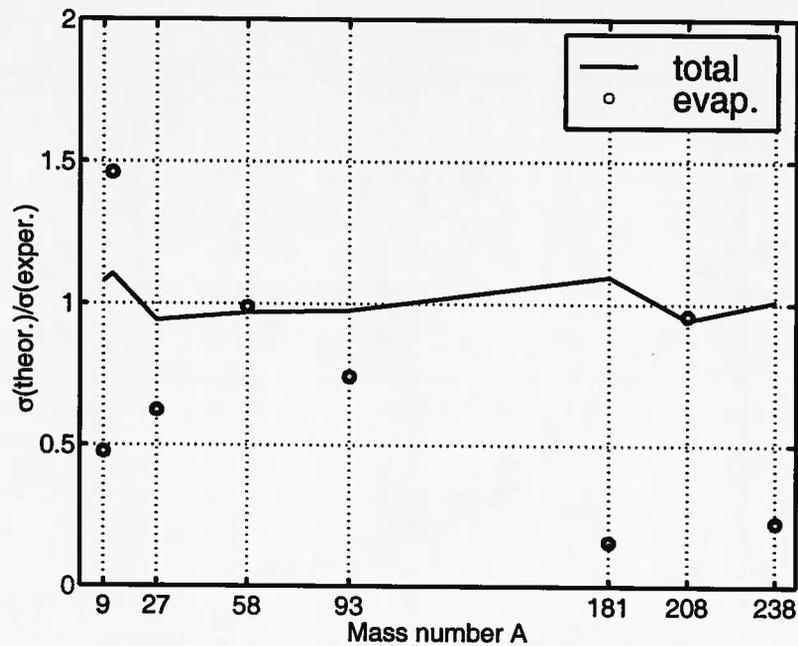


FIG. 7.13 – Le rapport  $\sigma_p(\text{théor.})/\sigma_p(\text{expér.})$  pour la section efficace de production totale de protons avec les deutérons de 100MeV est présenté en fonction de la masse de cible (total : ligne solide). Le rapport correspondant à la production de protons due au processus d'évaporation est montré séparément (evap. : cercles). Voir également le Tableau 7.1.

çons maintenant également les sections efficaces expérimentales de production de protons, intégrées en énergie, pour les deutérons de 100MeV sur Be (partie supérieure) et Pb (partie inférieure). Il semble que le code LCS n'ait aucune difficulté à reproduire les données dans toute la région angulaire dans le cas de la réaction Be(d,xp) (partie supérieure; INC1 : histogramme plein épais). La suppression du modèle de pré-équilibre n'a aucun effet visible sur un noyau si léger (comparez INC1 et INC2). Cependant, l'utilisation de la carte d'entrée "ijkl=22" (avec la réfraction) est vivement recommandée au lieu de la valeur "ijkl=23" donnée "par défaut" (aucune réfraction) comme cela a déjà été mentionné ci-dessus (comparez INC1 avec réfraction et INC3 sans réfraction). INC3 surestime la distribution angulaire expérimentale dans la région angulaire de  $20^\circ$  à  $70^\circ$ , résultant dans la surestimation de  $\sim 20\%$  du  $\sigma_p$  intégral. La dissociation coulombienne du deutéron, laissant le noyau-cible dans son état fondamental, ne contribue quasiment pas au  $\sigma_p$  intégral (partie supérieure; Coul. : ligne solide mince).

Dans le cas des cibles lourdes comme le  $^{208}\text{Pb}$ , l'utilisation du modèle de pré-équilibre est cruciale afin de reproduire les données aux angles arrière ( $\theta_p > 90^\circ$ ). Ici nous comparons INC1 (avec MPM) et INC2 (sans MPM) dans la partie inférieure de la Figure 7.14). Le calcul de modèle INC3, qui ne tient pas compte de la réfraction, n'est pas du tout recommandé (INC3 : histogramme à tiret-pointillé). Il surestime la distribution angulaire expérimentale dans la même région angulaire que pour le

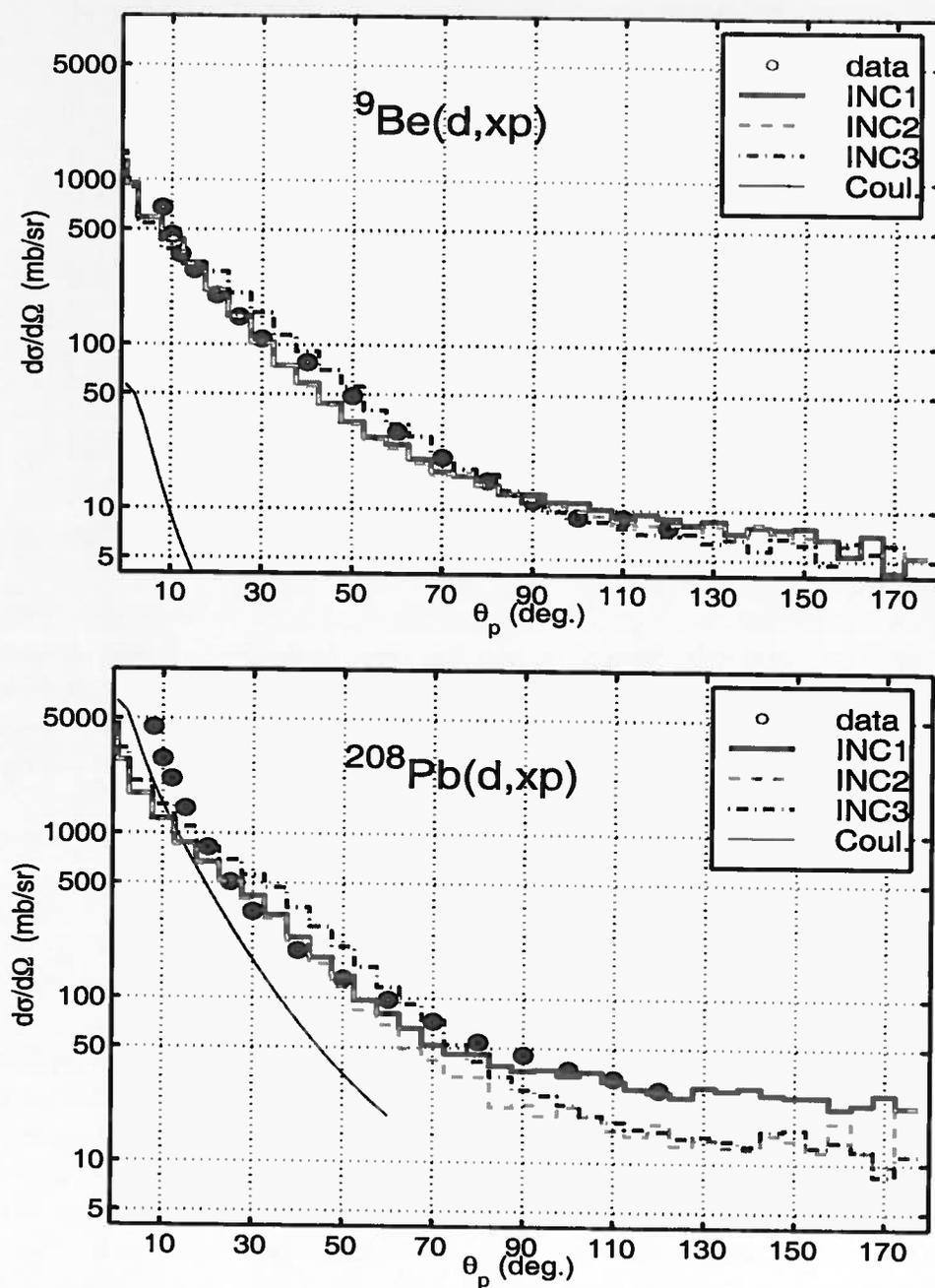


FIG. 7.14 – Comparaison entre les sections efficaces différentielles expérimentales de production en fonction de l'angle d'émission des protons et les différents calculs du code LCS (INC1, INC2, INC3) pour des deutérons de 100MeV sur des cibles de  ${}^9\text{Be}$  (partie sup.) et  ${}^{208}\text{Pb}$  (partie inf.) dans le système du laboratoire. La contribution de la dissociation coulombienne du deutéron (Coul.) est représentée séparément pour comparaison.

noyau Be et surestime le  $\sigma_p$  intégral jusqu' à  $\sim 25\%$ . En outre, les angles arrière sont clairement sous-estimés (INC3 : histogramme à tiret-pointillé).

Finalement, nous notons qu'aucun des calculs du modèle standard du code LCS n'est capable reproduire les spectres expérimentaux pour les noyaux lourds ( $A \gtrsim 58$ ) aux angles d'émission des protons à l'avant ( $\theta_p \leq 12^\circ$ ). Comme nous l'avons déjà suggéré dans le Chapitre 2 et mentionné dans [Rid99c], la dissociation coulombienne du deutéron, que nous calculons indépendamment (partie inférieure ; Coul. : la ligne solide mince), n'est pas correctement prise en compte dans le code LCS. Par conséquent, aux angles très vers l'avant et pour les noyaux lourds, les spectres angulaires sont sous-estimés par LCS comme le montre la Figure 7.14.

Ceci se voit encore mieux dans la Figure 7.15, où nous traçons les spectres en énergie de protons de la réaction Pb(d,xp) (expérimentaux et théoriques) aux angles vers l'avant (partie supérieure) et vers l'arrière (partie inférieure). Le pic expérimentalement mesuré à  $\theta_p = 10^\circ$  (partie supérieure ; data : points) est plus de trois fois supérieur au meilleur calcul du code LCS (voir l'option INC1 expliquée ci-dessus) (lahet : histogramme à tiret-pointillé). La contribution du processus de dissociation coulombienne (Coul. : courbe à tiret) ajoutée à la courbe de LCS rend la théorie très proche de la distribution en énergie obtenue expérimentalement (comparez le "total" en trait plein épais aux points expérimentaux "data"). Voir également la Figure 2.4 du Chapitre 3. Cependant, la dissociation coulombienne est négligeable aux angles arrière (partie inférieure de la même figure). Ici le code LCS seul (lahet : histogramme à tiret-pointillé) donne une description raisonnable des données (data : points).

La Figure 7.16 correspond à la Figure 7.15, mais nous traçons maintenant les spectres en énergie de protons dans le cas de la cible de  $^9\text{Be}$ . Ici le modèle d'INC ISABEL (nous utilisons INC1 expliqué au-dessus) semble reproduire les données sans problème en valeur absolue ainsi que la position du pic d'énergie élevée. Le spectre en énergie théorique des protons est plus large à  $\theta_p = 10^\circ$  (partie supérieure) ce qui n'est pas surprenant ; un noyau aussi petit que le Be ( $A=9$ ) satisfait à peine les hypothèses statistiques du modèle physique du code LCS. La dissociation coulombienne du deutéron pour les noyaux légers, comme le Be ou le C, est négligeable aux angles vers l'avant (partie supérieure ; coul. : ligne tirée) et ainsi qu'aux angles arrière (partie inférieure ; trop petite pour être vue). Voir également la Figure 2.5 du Chapitre 3.

## 7.6 Conclusion

Des spectres en énergie et des distributions angulaires des particules légères chargées (p, d, et t) ont été mesurés par le bombardement de deutérons de 100MeV sur des cibles de Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb et U. Les particules chargées ont été détectées par des télescopes à deux et à trois éléments, en utilisant des combinaisons de techniques de  $\Delta E'$ -E et de  $\Delta E$ - $\Delta E'$  pour l'identification des particules. Les sections efficaces expérimentales ont été obtenues avec une erreur inférieure à 9% en valeur absolue et avec un seuil à basse énergie de quelques MeV.

Les distributions angulaires ont été mesurées à des angles beaucoup plus vers

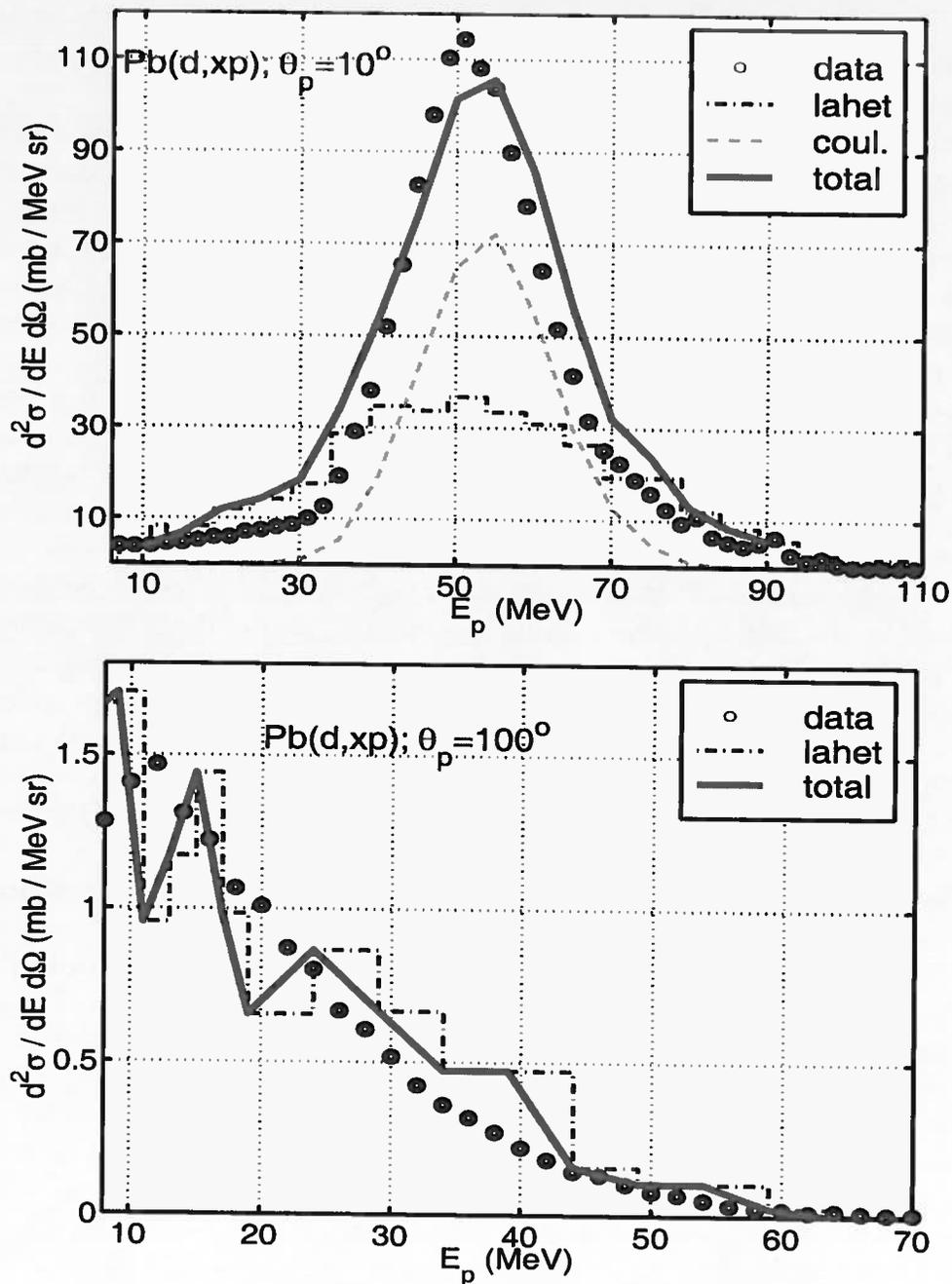


FIG. 7.15 – Comparaison des sections efficaces différentielles en fonction de l'énergie de protons (data: points) à  $\theta_p = 10^\circ$  (partie supérieure) et à  $\theta_p = 100^\circ$  (partie inférieure) dans le système du laboratoire, avec les calculs du code LCS (lahet: histogrammes pointiller-à tiret) pour les deutérons 100MeV sur la cible de  $^{208}\text{Pb}$ . La dissociation coulombienne du deutéron (coul.) contribue seulement aux angles vers l'avant, elle est représentée par la courbe à tiret. La courbe pleine (total) est obtenue en ajoutant les contributions "lahet" et "coul."

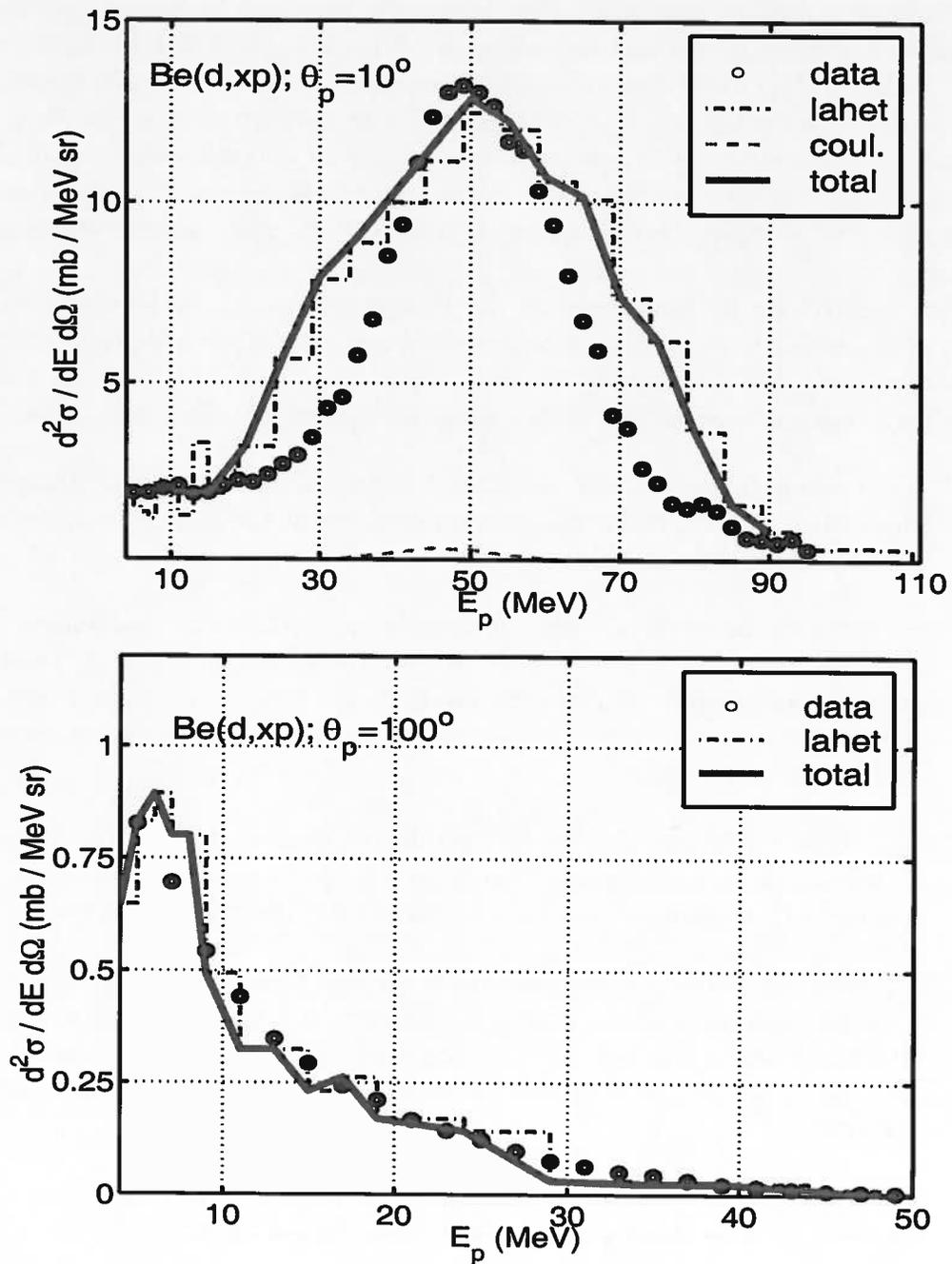


FIG. 7.16 – Idem à la Figure 7.15 mais pour les deutérons de 100 MeV sur la cible de  ${}^9\text{Be}$ .

l'avant ; à  $8^\circ$  pour les noyaux lourds et jusqu'à  $6^\circ$  pour les noyaux légers au lieu de  $20^\circ$  (typique pour ce genre de mesures), malgré la contribution considérablement accrue du bruit de fond (d'un facteur 50). Par conséquent, nous concluons que des télescopes standard à deux ou à trois éléments utilisant des combinaisons de techniques de  $\Delta E'$ -E et de  $\Delta E$ - $\Delta E'$ , peuvent être utilisés pour les mesures de particules légères chargées aux angles de détection aussi proches que  $6$ - $8^\circ$  par rapport au faisceau. Nous avons en recours à la technique de particules étiquetées pour déterminer sans ambiguïté le bruit de fond. En utilisant un spectromètre, nous pensons que l'extension de telles mesures vers des angles très vers l'avant ( $0 \leq \theta_p \leq 8^\circ$ ) pourrait être effectuée avec succès.

Les spectres de protons produits par le bombardement de deutérons sur huit noyaux-cibles montrent un comportement étonnamment systématique et une ressemblance considérable. Les caractéristiques importantes observées pour les réactions induites par des deutérons de 100MeV sont brièvement résumées ci-dessous :

- \* le processus de dissociation du deutéron domine les spectres de protons aux angles vers l'avant, et la contribution de cette dissociation augmente avec la masse atomique de la cible ;
- \* les spectres de protons émis à haute énergie diminuent rapidement quand l'angle augmente. Pour les noyaux de masse moyenne, la région de basse énergie est dominée par un pic d'évaporation. On observe également une petite contribution de non-équilibre aux angles arrière, où les spectres en énergie sont plutôt constants ;
- \* le processus d'évaporation est comparable au processus de non-équilibre pour les noyaux de masse moyenne ( $\sim 40\%$ ), alors que les processus de non-équilibre dominant l'émission de protons pour les noyaux légers et lourds ( $\sim 90\%$ ) ;
- \* la production totale des protons atteint un maximum dans la région autour du  $^{58}\text{Ni}$ . La diminution de la production des protons pour des noyaux de masse plus lourde reflète l'importance croissante de l'émission de neutrons et de la fission, car la barrière coulombienne croissante empêche l'émission des particules chargées.
- \* la production de protons de non-équilibre augmente régulièrement avec la masse de la cible et est globalement proportionnelle à  $A^{1/3}$ .

Le comportement global des sections efficaces différentielles en fonction d'énergie suggère que la réaction nucléaire est dominée par deux types de mécanismes :

- a) le premier se produit sur une échelle de temps rapide, retenant l'information dynamique initiale par un processus relativement simple, tel que la dispersion, la diffusion quasi-libre, le "pickup", le "nockout", la dissociation, etc., qui implique une réaction à large moment de transfert avec relativement peu de nucléons de la cible ;

- b) le second qui résulte des processus d'équilibration et correspond à presque tout le transfert du moment du projectile incident au système d'équilibre.

Les résultats expérimentaux actuels sont comparés aux prédictions théoriques dans le cadre du code LCS (cascade intranucléaire + pré-équilibre + évaporation). En bref, les sections efficaces intégrales de production de protons sont reproduites à moins de 10% pour toutes les cibles examinées. Cependant, quelques résultats importants, liés aux les spectres en énergie et aux distributions angulaires des protons, devraient être soulignés en particulier :

- 1) nous confirmons que la dissociation coulombienne du deutéron n'est pas prise en compte correctement par le code LCS. LCS seul ne reproduit pas les données aux angles très vers l'avant ( $\theta_p < 12^\circ$ ) dans le cas des cibles lourdes ( $A \gtrsim 58$ ). L'inclusion d'un terme de dissociation coulombienne rend la théorie très proche des résultats expérimentaux sans aucune renormalisation ;
- 2) l'inclusion de la réfraction des particules chargées due aux potentiels coulombien et nucléaire améliore les distributions angulaires théoriques des protons émis dans toute la région angulaire, et pour toutes les cibles, comparées aux données ;
- 3) l'utilisation du modèle de pré-équilibre est indispensable pour la reproduction des données aux angles arrière ( $\theta_p > 90^\circ$ ) pour les cibles de masse moyenne et lourde ;
- 4) le passage de l'étape INC à la décroissance d'un noyau composé équilibré (et/ou l'étape de pré-équilibre) est toujours quelque peu arbitraire dans le code LCS. LCS ne reproduit pas la contribution d'évaporation extraite de l'expérience. Par conséquent, d'autres améliorations des modèles physiques du code LCS sont essentielles.

Dans le cas des distributions angulaires continues des protons, nous examinons également les résultats expérimentaux avec la systématique de Kalbach-Mann (KM) qui se compose de deux parties : la première qui explique les réactions directes et l'autre partie qui décrit le processus de noyau composé [Kal81]. Nous montrons que les distributions angulaires pour les protons de basse énergie pourraient être décrites par les formules de KM et pour tous les angles sans aucune difficulté. Cependant, ces formules phénoménologiques ne peuvent donner une description raisonnable des spectres angulaires des protons pour des énergies plus élevées des éjectiles et aux angles très vers l'avant. A ces conditions d'angle et d'énergie, la dissociation directe du deutéron incident domine les procédés de production de protons qui ne sont pas pris en compte dans la formulation KM. Nos données devraient fournir dans ce contexte des orientations pour des développements théoriques ultérieurs.



## Conclusions et perspectives

On conçoit actuellement des accélérateurs qui, par le procédé de spallation, peuvent produire des flux intenses de neutrons, rivalisant ou même plus performants que ceux produits par les réacteurs conventionnels par le processus de fission thermique. Il se pourrait, que ces sources de neutrons de spallation de la nouvelle génération complètent bientôt ou se substituent aux réacteurs nucléaires pour la recherche fondamentale, ainsi que pour des applications aussi diverses que la thérapie neutronique et la production de tritium pour la recherche sur la fusion ou pour les armes nucléaires.

Une application, qui a récemment suscité un intérêt considérable dans le monde, a été d'initier et de soutenir le processus de fission dans un réacteur en fournissant des neutrons à partir d'une source de spallation, de sorte que le réacteur puisse être exploité en mode sous-critique pour la génération d'énergie et la transmutation de déchets nucléaires. Une autre application est la possibilité de production des faisceaux d'ions radioactifs (RIBs) par la fission induite par neutrons. Dans ce cas-là les neutrons proviennent des interactions d'un faisceau de particules légères de haute intensité et de grande énergie avec une cible de conversion. En raison de beaucoup de similitudes et liens, les deux applications ont été examinées en parallèle dans ce travail de thèse intitulé "Optimisation des combinaisons de faisceau et de cible pour les systèmes de réacteurs hybrides et pour la production de faisceaux radioactifs par fission".

Pour réaliser les objectifs principaux de cette thèse nous avons entrepris des travaux théoriques et expérimentaux. Nous avons fait une série de calculs numériques en géométrie simple et complexe combinant et utilisant le code de transport de haute énergie LAHET, le code de transport de basse énergie MCNP, et le code d'activation CINDER. Nos nouvelles données expérimentales ont été étroitement associées aux simulations et, en conséquence, ont servi à contrôler les modèles de base de physique utilisée. Elles devraient également fournir un guide pour des développements théoriques ultérieurs. En conséquence, les conclusions du travail de la thèse présente sont de nature théorique (T ci-après) et de nature expérimentale (E ci-après).

(T.1) En exécutant les calculs de validation de codes ("benchmarking") nous avons prouvé que la dissociation coulombienne du deutéron incident n'a pas été prise en considération correctement dans le code LAHET (LCS). Ce processus particulier augmente considérablement le rendement de nucléons de haute énergie aux angles très vers l'avant et pour des cibles lourdes. En ajoutant la section efficace de dissociation coulombienne, calculée par l'utilisation d'un modèle théorique, dévelop-

pée initialement pour la cassure de noyaux halo riches en neutrons, à celle calculée utilisant le LCS, nous avons obtenu un excellent accord avec les données disponibles. Les auteurs du code ont l'intention d'inclure professionnellement cette partie de dissociation coulombienne dans le code LCS. Nous notons de plus que la prévision fiable de ces nucléons énergétiques et piqués aux angles très vers l'avant est extrêmement importante pour les problèmes liés à la radioprotection, pour l'évaluation de la fatigue de matériaux due à l'irradiation ainsi que pour certaines applications où des sources de neutrons de grande énergie non-isotropes pourraient être nécessaires dans des géométries compactes.

**(T.2)** Nous avons vérifié également les prédictions du code LCS pour les rendements de production d'isotopes dans les réactions induites par protons sur l'uranium dans la région d'énergie de  $E_p=50-200\text{MeV}$ . Nous avons conclu que le code LCS reproduit raisonnablement les tendances observées, aussi bien en ce qui concerne les valeurs absolues que pour les distributions isotopiques, si le modèle de fission d'ORNL est utilisé pour des noyaux avec  $Z \geq 91$ . Le modèle de fission de RAL, donné "par défaut" dans l'entrée du code LCS, donne des distributions isotopiques trop larges : il sous-estime (d'un facteur 2-4) les sections efficaces près du sommet de la distribution mais les surestime dans les ailes (d'un facteur 10-100). Des conclusions semblables, à notre avis, sont valables également pour des fissions induites par neutrons dans la même région d'énergie et pour des noyaux avec  $Z \geq 91$ . Cependant, les rendements expérimentaux de production isotopique par des réactions de neutrons à  $E_n > 20\text{MeV}$  et pour des noyaux avec  $Z \geq 91$  seraient nécessaires pour vérifier cette extrapolation.

Des conclusions erronées ont été faites dans un certain nombre de rapports internationaux où l'option particulière de modèle de fission "par défaut" a été utilisée. Nous avons informé les auteurs de ces rapports de nos résultats.

**(T.3)** Nous avons entrepris une étude comparative de la production de neutrons dans les réactions induites par protons ou par deutérons. L'optimisation complète de l'efficacité de production de neutrons implique trois paramètres principaux : a) le spectre d'énergie des neutrons, b) la distribution angulaire des neutrons, et c) la multiplicité moyenne de neutrons. Chacun de ces paramètres a été considéré en fonction du projectile, de son énergie incidente totale, du matériel de cible et de la géométrie.

La production de neutrons par des deutérons est plus élevée d'un facteur de 1.3-2.5 (selon l'énergie incidente) pour les cibles légères métalliques, comme Be, comparé aux protons. Dans le cas des cibles de masses intermédiaires, comme Fe, les deutérons sont plus favorables d'un facteur de 1.2-1.5. Cependant, pour les cibles de matériaux lourds, comme U, les deux projectiles sont également efficaces à moins de 10% en faveur des deutérons. La combinaison de deutérons avec une cible légère donne le spectre de neutrons le plus dur. De manière générale pour toutes les cibles, les deutérons incidents produisent plus de neutrons énergétiques que les protons. La distribution angulaire des neutrons la plus isotropique est obtenue dans la réaction de  $p+U$ , alors que la réaction de  $d+Be$  produit les neutrons les plus piqués vers l'avant.

Ces résultats sur la production de neutrons ont fourni les caractéristiques utiles

---

pour le choix de la cible de spallation (métal léger ou lourd) et la particule incidente (proton ou deutéron) pour les systèmes hybrides alimentés par un accélérateur (ADS) où l'efficacité de la source de neutrons est d'une importance primordiale.

(T.4) Amplificateur d'énergie sous-critique piloté par accélérateur.

a) Quatre combinaisons différentes ont été examinées : les protons ou les deutérons bombardant une cible de spallation d'U ou de Be placée à l'intérieur du combustible sous-critique ( $k \sim 0.9$ ). Nous avons constaté que le dispositif d'"U+combustible" donne à 5-10% un plus grand rendement de neutrons par particule incidente pour des deutérons que pour des protons à même énergie totale. Pour les deutérons, la cible de "Be+combustible" donne pratiquement le même rendement total de neutrons que "U+combustible". Dans ce cas, la chaleur est répartie sur une profondeur beaucoup plus grande puisque des neutrons plus énergétiques sont produits dans la cible de spallation. Nous avons également obtenu que le gain optimum d'énergie dans le système hybride modelé puisse être atteint pour des énergies incidentes inférieures si des deutérons sont utilisés au lieu de protons et si une cible légère métallique légère - à la place d'une cible lourde métallique - est utilisée comme cible de spallation ("d sur Be+combustible"). L'énergie inférieure devrait permettre des intensités de faisceau plus élevées, un prix réduit du système et devrait faciliter des problèmes de radioprotection.

b) Contrairement aux projets utilisant des métaux lourds liquides comme cible de spallation et comme caloporteur, nous avons considéré une cible de Li liquide. L'activité accumulée obtenue est de quelques ordres de grandeur plus basse dans ce cas que pour la cible de plomb liquide. Dans le cas du Li, aucun produit de spallation n'est produit avec une demie-vie plus longue que 12 ans (c.-a.-d. le tritium). En outre, des isotopes émetteurs d' $\alpha$  (isotopes de Pb et de Po) sont, bien sûr, complètement absents. Enfin (et à notre surprise), nous avons noté que la contribution de radioactivité dû au tritium était du même ordre de grandeur pour les cibles lourdes et légères.

(T.5) Production de RIBs à l'aide de fissions induites par neutrons.

a) Dans le projet de SPIRAL Phase-II (GANIL), on veut maximiser la production de noyaux riches en neutrons dans la région de masse  $75 \leq A \leq 160$ . Afin de les produire, une cible légère de conversion (Be) bombardée par des deutérons d'énergie intermédiaire a été considérée. Des neutrons énergétiques et concentrés aux angles avant induisent des fissions dans la cible de production secondaire (U). Dans l'intervalle d'énergie de 50MeV jusqu' à 100MeV des deutérons incidents, la production de neutrons et de noyaux radioactifs augmente avec l'énergie du projectile à une puissance constante de faisceau. Une énergie du faisceau primaire plus élevée pour cette combinaison de cible et faisceau n'a pas d'intérêt. En conséquence, nous suggérons des deutérons de 100MeV comme solution optimale. En bref, avec un faisceau de deutérons de 10kW à 100MeV (compatible avec les caractéristiques existantes de GANIL) on pourrait s'attendre à une augmentation de l'intensité du faisceau secondaire final de 2 ou 3 ordres de grandeur par rapport à celle qui serait obtenu par le méthode actuelle de fragmentation actuelle de la cible et/ou du faisceau d'ions lourds.

Nous notons de plus que ces conclusions se vérifient pour les rendements de

production d'isotopes uniquement *dans une cible*. Il serait, donc, très important d'étudier les propriétés de diffusion des sources de large volume de fragments de fission.

En plus de la production de RIBs par l'intermédiaire du scénario de  $d+Be \rightarrow xn+U$ , nous avons également recherché d'autres cibles de conversion qui pourraient être compétitives dans le même contexte. Nous avons montré que le Li liquide et le W solide ont presque le même rendement final de fission.

b) Des questions liées aux problèmes de radioprotection ont été abordées également. L'accumulation du gaz de tritium radioactif pourrait être la raison principale d'exclure le Be comme cible de conversion primaire. Nous avons suggéré le Li liquide comme solution possible, alors que l'utilisation de cibles lourdes de conversion pose des problèmes de radioprotection plus difficiles, principalement dus aux radioisotopes de vie longue et/ou d'émetteurs de particules  $\alpha$ .

Nos calculs montrent que 80% de la puissance incidente est déposée dans la cible de conversion de Be, alors que l'énergie absorbée dans la cible secondaire de U est principalement due à l'énergie libérée par le processus de fission. Le problème de dissipation thermique est donc résolu automatiquement dans la cible de production. Par conséquent, pour la même puissance absorbée dans la cible de production, le nombre de fissions peut être d'un ordre de grandeur plus grand que dans le cas de la cible de production bombardée directement par le faisceau de particules chargées.

Finalement, ainsi que les évaluations du dépôt de la chaleur de faisceau dans notre cible combinée, nous avons également fourni un arrangement simple pour conduire jusqu'à 60kW de la puissance de faisceau primaire dans une chemise refroidie à l'eau.

Les conclusions actuelles (T.3), (T.4) et (T.5) se tiendront, à notre avis, qualitativement pour d'autres configurations. Cependant, on doit toujours tenir compte du dispositif précis pour une optimisation réaliste. De plus, les résultats présentés ici devraient être confirmés par de nouvelles données expérimentales.

(E.1) Une première expérience a été réalisée au Laboratoire National de Saturne (Saclay, France). Des spectres d'énergie de protons ont été mesurés à 20°, à 45°, à 60° et à 135° pour des deutérons de 200MeV sur une cible d' $^{238}\text{U}$ . Une cible en uranium épaisse ( $2\text{g}/\text{cm}^2$ ) a défini le seuil d'énergie des protons mesurés, aussi élevé que 25MeV. Le temps limité de faisceau disponible et les problèmes de bruit de fond (pas de chambre à cible disponible) ont eu comme conséquence des statistiques très limitées, fournissant, néanmoins, la distribution angulaire intégrée sur l'énergie assez fiable.

Nous avons conclu que a) des spectres d'énergies complets de particules chargées ne pourraient pas être mesurés correctement sans chambre à cible, et b) aux angles avant ( $\theta \leq 20^\circ$ ) en raison du bruit de fond à partir i) des réactions induites par les particules dans les détecteurs et, ii) d'une contribution rapidement croissante de la diffusion élastique des particules incidentes aux angles avant, qu'elle devrait être étudiée soigneusement, et une solution à ces problèmes a dû être trouvée.

(E.2) La deuxième expérience a été réalisée au National Accelerator Centre (Faure, Afrique du Sud). Cette expérience était une suite d'E.1. Les spectres d'éner-

---

gie complets et les distributions angulaires des particules chargées (p, d, et t) ont été mesurés pour des deutérons de 100MeV sur des cibles de Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb et U. Les sections efficaces expérimentales ont été obtenues avec une précision meilleure que 9% en valeur absolue et avec un seuil d'énergie très bas (de quelques MeV). Les distributions angulaires ont été réalisées à des angles minimaux plus petits, 6° pour les cibles légères et 8° pour les cibles lourdes, au lieu de 20° typique pour les mesures existantes. La contribution considérablement accrue de bruit de fond à ces angles vers l'avant a été soustraite sans ambiguïté par l'utilisation des deutérons "étiquetés". L'extension des mesures de particules chargées légères aux angles très vers l'avant ( $\theta < 8^\circ$ ) pourra être réalisée par l'utilisation d'un spectromètre.

Les spectres de protons produits par le bombardement de deutéron des huit cibles ont montré un comportement systématique et des similitudes considérables. Voici les conclusions principales pour les réactions induites par des deutérons de 100MeV : 1) le processus de dissociation du deutéron domine les spectres de protons aux angles avant, et la contribution de dissociation augmente avec la numéro atomique de la cible ; 2) la contribution de protons de haute énergie diminue rapidement aux grands angles. Pour les noyaux de masse moyenne, la région de basse énergie est dominée par une bosse due à l'évaporation statistique. On observe également une petite contribution de processus de non-équilibre aux angles arrière, où les spectres d'énergie sont plutôt plats à haute énergie ; 3) la contribution de processus d'évaporation est comparable ( $\sim 40\%$ ) à celle des processus de non-équilibre pour les cibles de masse moyenne, alors que la contribution de processus de non-équilibre domine ( $\sim 90\%$ ) pour les cibles légères et lourdes ; 4) la production totale des protons atteint un maximum dans la région autour de  $^{58}\text{Ni}$ . La diminution du rendement de protons pour des cibles de masse plus lourde reflète l'importance croissante de l'émission de neutrons et de la fission, la barrière coulombienne empêchant l'émission des particules chargées ; 5) la production de protons de non-équilibre augmente avec la masse de la cible et est approximativement proportionnelle à  $A^{1/3}$ .

Les résultats expérimentaux actuels ont été également comparés aux prévisions théoriques dans le cadre du code LCS (cascade intranucléaire + pré-équilibre + évaporation). En bref, les sections efficaces de production intégrale de protons ont été reproduites à mieux que de 10% pour toutes les cibles examinées. Cependant, quelques résultats importants, liés aux spectres en énergie et aux distributions angulaires des protons, méritent d'être cités séparément : a) les nouvelles données expérimentales ont confirmé que la dissociation coulombienne du deutéron n'est pas prise en considération correctement par le code LCS. Le code LCS seul ne reproduit pas les données aux angles très vers l'avant ( $\theta_p < 15^\circ$ ) dans le cas des cibles lourdes ( $A \gtrsim 58$ ). L'inclusion de la contribution de la dissociation coulombienne rapproche les prédictions théoriques des résultats expérimentaux sans aucune renormalisation ; b) l'inclusion de la réfraction des particules chargées dû au champ coulombien et au potentiel nucléaire améliore l'accord entre l'expérience et les distributions angulaires théoriques des protons émis dans tous les domaines angulaires et pour toutes les cibles ; c) l'utilisation du modèle de pré-équilibre est indispensable pour reproduire les données aux angles arrières ( $\theta_p > 90^\circ$ ) aussi bien pour les cibles de masse moyenne que lourde ; d) le code LCS ne reproduit pas la contribution d'évaporation extraite

à partir de l'expérience. Nous avons conclu que dans le code LCS le passage de l'étape d'INC à la désexcitation d'un noyau composé équilibré est toujours quelque peu arbitraire. Par conséquent, d'autres améliorations des modèles de physique de LCS sont essentielles dans cet esprit.

Dans le cas de distributions angulaires des protons, nous avons également examiné les résultats expérimentaux avec la systématique de Kalbach-Mann (KM) basée sur une composante qui décrit les réactions directes et une autre qui décrit le processus évaporatif de noyau composé. Nous avons constaté que les distributions angulaires pour les protons de basse énergie pourraient être décrites par les formules de KM sans aucune difficulté pour tous les angles. Cependant, il n'est pas possible avec cette formulation phénoménologique d'obtenir une reproduction correcte des distributions angulaires de protons de haute énergie et aux angles très vers l'avant. Dans ces conditions d'énergie et d'angle, la dissociation directe du deutéron incident domine les processus de production de protons, et celle-ci n'a pas été prise en considération dans la formulation de KM. Nos données devraient fournir une base de comparaison pour des développements théoriques futurs.

Outre les mesures des sections efficaces de production de protons, notre expérience a également permis de mesurer des sections efficaces de production de deutérons et de tritons secondaires, pour des deutérons de 100MeV sur les huit cibles mentionnées ci-dessus. Ces nouvelles données seront présentées ailleurs. Il est clair que, non seulement le code LCS mais également d'autres modèles théoriques devraient bénéficier de ces données de bonne qualité pour vérifier les prédictions des réactions induites par deutérons.

**En résumé**, contrairement à presque tous les projets d'ADS utilisant des cibles de métal lourd et des faisceaux de protons de haute intensité et de haute énergie, nous avons considéré des réactions induites par deutérons sur des cibles légères métalliques. Les deux options, c.-à-d. deutérons et protons, ont été quantitativement examinées et comparées en termes de la production de neutrons, de l'amplification d'énergie, de la production de RIBs par l'intermédiaire des fissions induites par neutrons, et des problèmes de radioprotection. Dans ce travail de thèse nous avons montré que les deutérons peuvent apporter un certain nombre d'avantages importants par rapport aux protons. Bien qu'à notre avis, l'accélération des deutérons et des protons ne pose pas de problèmes très différents, cet aspect particulier nécessite d'autres recherches.

Pour terminer, je voudrais citer un commentaire que Charles D. Bowman m'a adressé : « C'est un travail très intéressant qui devrait être très utile pour déterminer la conception de la cible pour la transmutation de déchets et pour la production d'énergie. « ... » Ce travail est-il terminé ou avez-vous l'intention de le développer encore ? » Personnellement, je crois et j'espère que ce travail sera poursuivi et qu'il est intéressant de l'affiner pour aboutir à des réalisations pratiques dans un avenir proche.

# Annexe A

## Spectres en énergie des protons

Cette annexe comporte tous les spectres différentiels en énergie des protons dans le cas des réactions Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb, et U(d,xp) à  $E_d=100\text{MeV}$ . Les Figures A.1-A.8 sont destinées uniquement à illustrer les ressemblances et/ou les différences dans la forme des spectres, ainsi que la dépendance angulaire systématique des spectres pour les divers noyaux-cible. Les valeurs des sections efficaces ainsi que les erreurs statistiques correspondantes peuvent être obtenues auprès des auteurs, sur demande.

Il y a quelques commentaires importants à faire au sujet des données présentées sur les Figures A.1-A.8 :

- \* les spectres en énergie, dans le cas de la réaction  $^{12}\text{C}(d,xp)$  présentés sur la Figure A.2, montrent clairement quelques pics discrets, pour presque tous les angles de dispersion. La position de chaque pic se déplace vers des énergies plus élevées quand les angles sont plus vers l'avant. Ces pics sont dus à une contamination de la cible par l'hydrogène. Notons qu'on peut utiliser ces pics avec succès pour la contre-vérification de l'étalonnage en énergie : dans le cas de la réaction  $\text{H}(d,pd)$  en coïncidence, l'énergie des éjectiles est définie exactement par les équations cinématiques correspondantes ;
- \* les spectres en énergie, dans le cas de la réaction  $^{208}\text{Pb}(d,xp)$ , doivent être utilisés avec précaution, en particulier pour les plus basses énergies. (voir la Figure A.6). En effet, pendant l'analyse des données, nous avons constaté que notre cible de Pb contenait de l'oxygène. Ceci peut être facilement vu en comparant les spectres de basse énergie pour les réactions  $^{181}\text{Ta}(d,xp)$  et  $^{208}\text{Pb}(d,xp)$  des Figures A.6 et A.7. À des énergies plus élevées, par exemple ( $E_p > 16\text{MeV}$ ), la contribution de l'oxygène pour la production de protons dans ce cas particulier devient faible (<10%) ;
- \* les spectres en énergie dans le cas de la réaction  $^{238}\text{U}(d,xp)$  contiennent également une certaine contamination de la cible par l'oxygène (voir la Figure A.8). Cette contribution peut être facilement observée en comparant les spectres de basse énergie pour les réactions  $^{181}\text{Ta}(d,xp)$  et  $^{238}\text{U}(d,xp)$  des Figures A.6 et A.8. En outre, en raison de cette contamination par l'oxygène, une partie

de l'uranium a été détruite en montant la cible. En d'autres termes, l'épaisseur de la cible d'uranium a été diminuée. Malheureusement, la cible d'uranium que nous avons utilisée était trop épaisse pour remesurer son épaisseur avec une source d' $\alpha$  collimatée. Par conséquent, l'utilisation des données actuelles avec la cible d'uranium est plutôt limitée car nous ne sommes sûrs qu'à  $\sim 50\%$  de sa normalisation absolue. Dès que nous remesurerons l'épaisseur de la cible d'uranium, les données correspondantes seront corrigées en conséquence, nous aurons ainsi une évaluation plus précise des incertitudes.

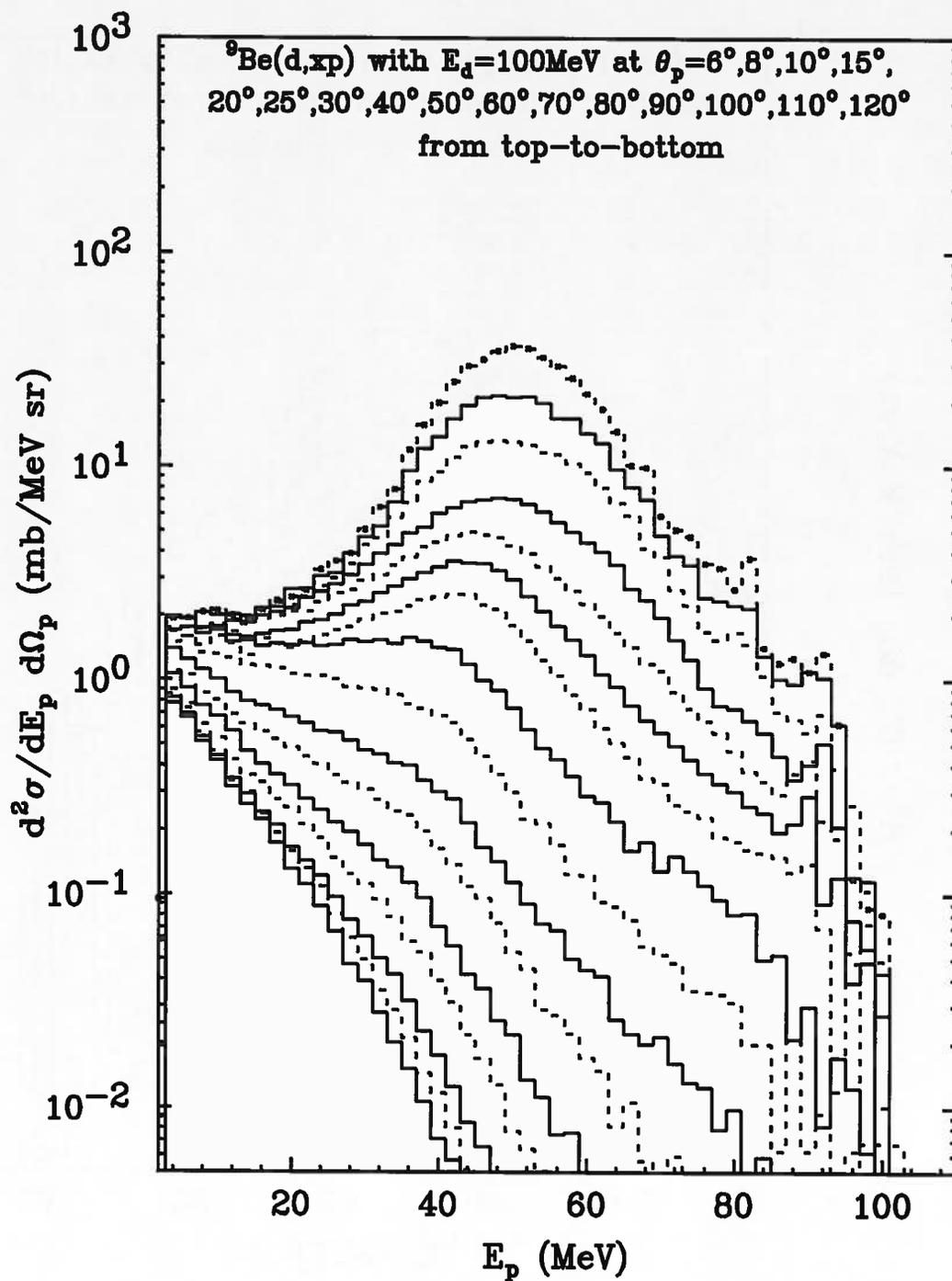


FIG. A.1 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $6^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible de  ${}^9\text{Be}$  dans le système du laboratoire.

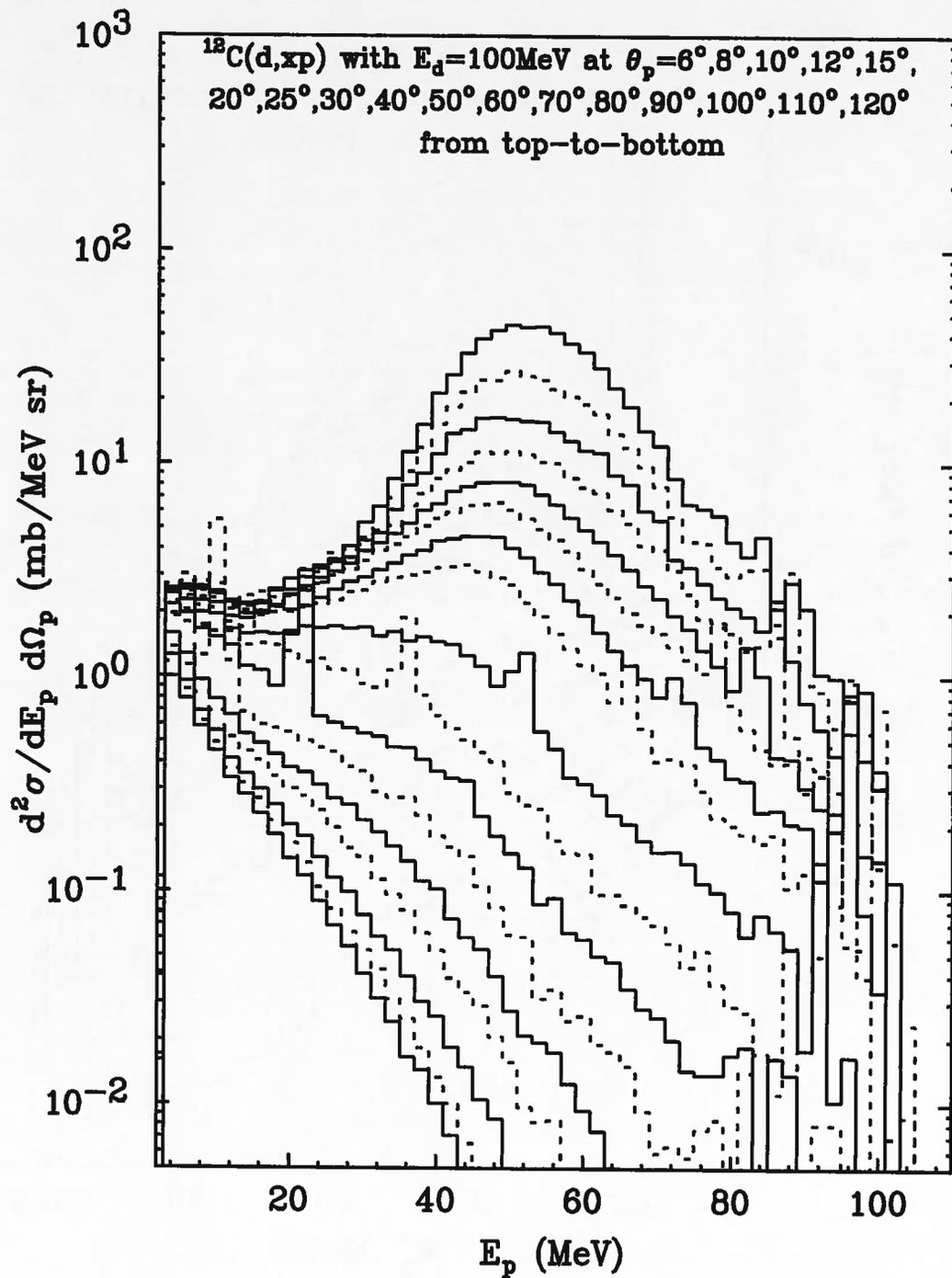


FIG. A.2 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $6^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible de  $^{12}\text{C}$  dans le système du laboratoire.

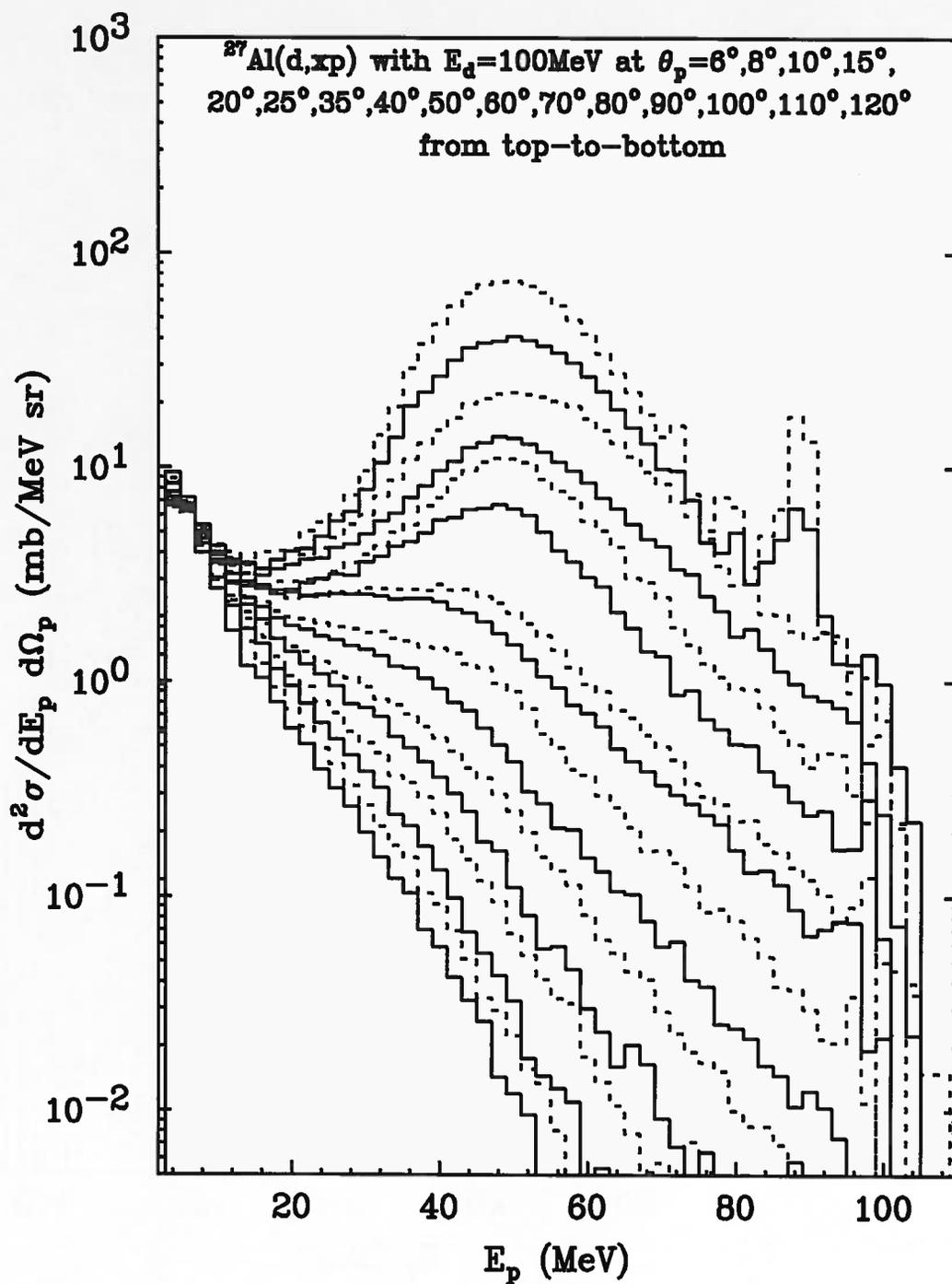


FIG. A.3 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $6^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible de  $^{27}\text{Al}$  dans le système du laboratoire.

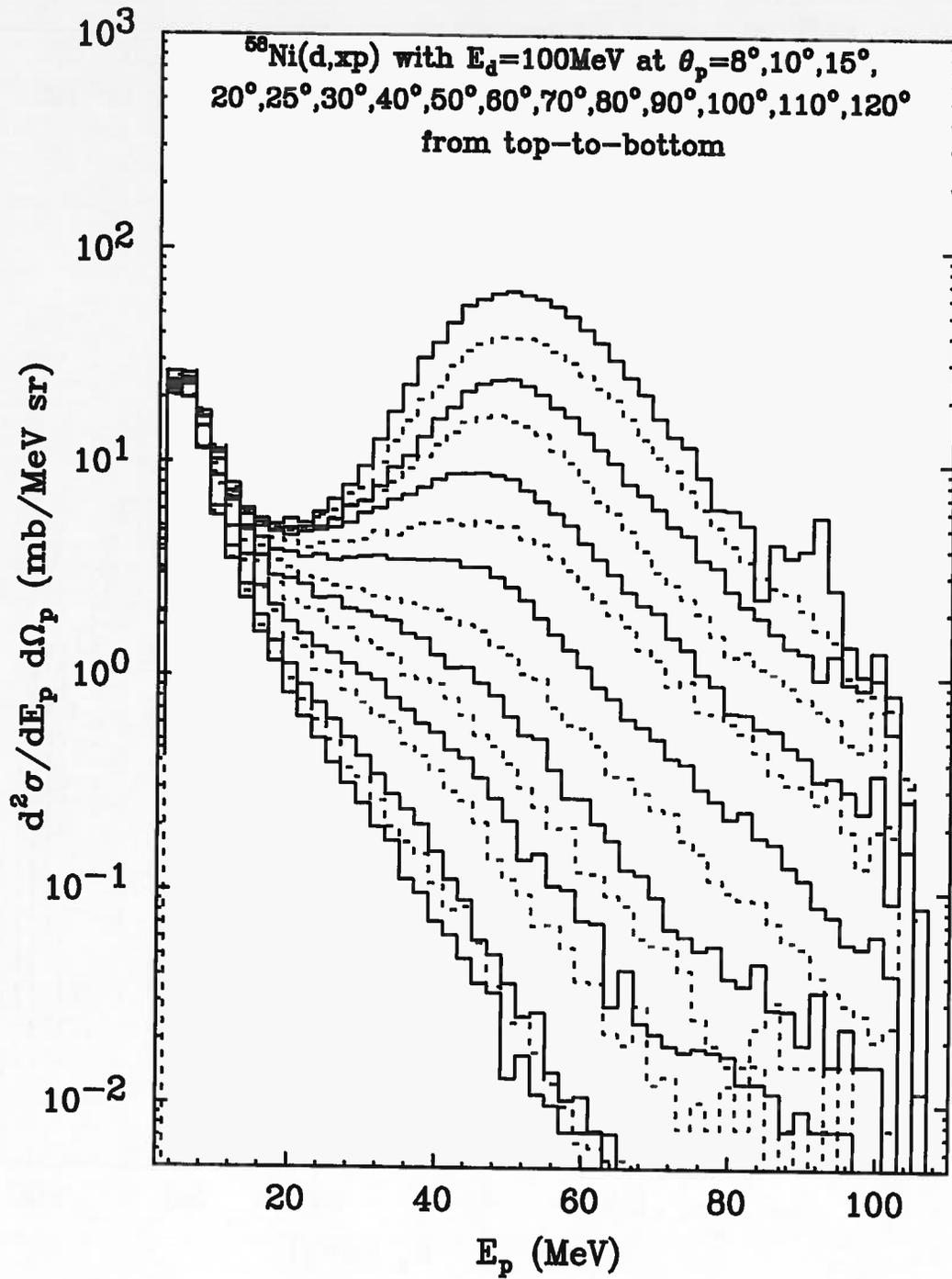


FIG. A.4 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $8^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible de  $^{58}\text{Ni}$  dans le système du laboratoire.

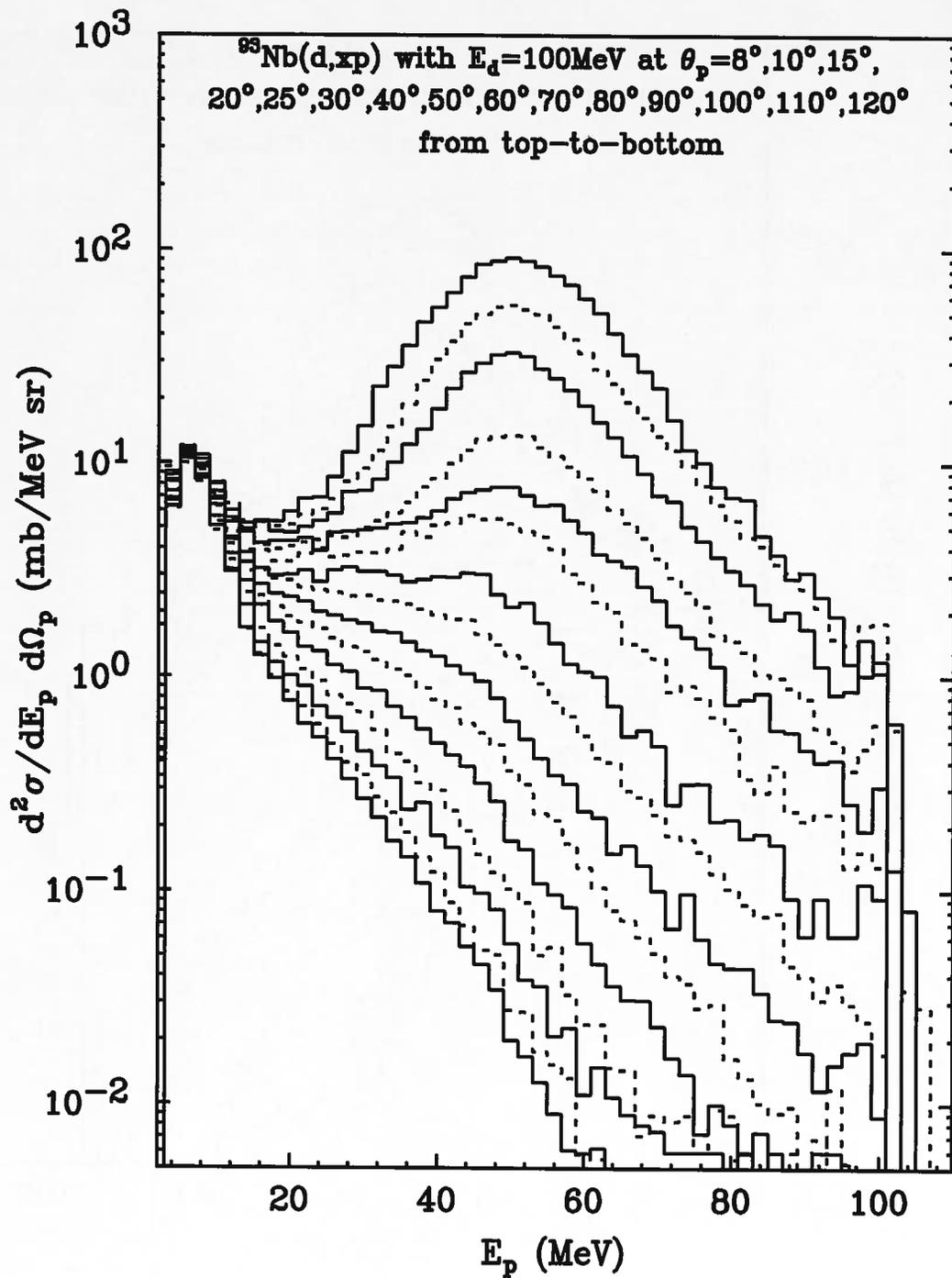


FIG. A.5 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $8^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible de  $^{93}\text{Nb}$  dans le système du laboratoire.

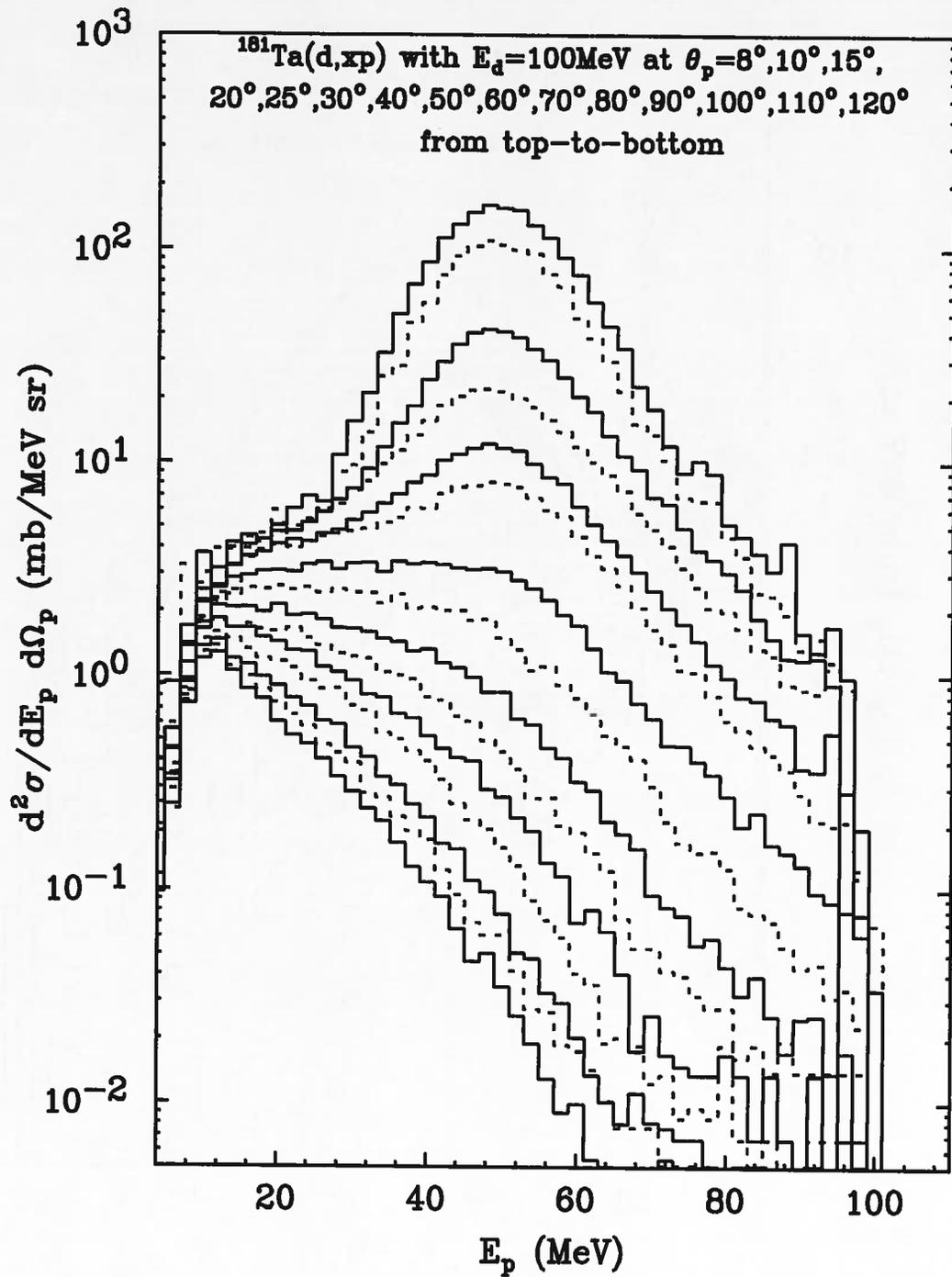


FIG. A.6 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $8^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible de  $^{181}\text{Ta}$  dans le système du laboratoire.

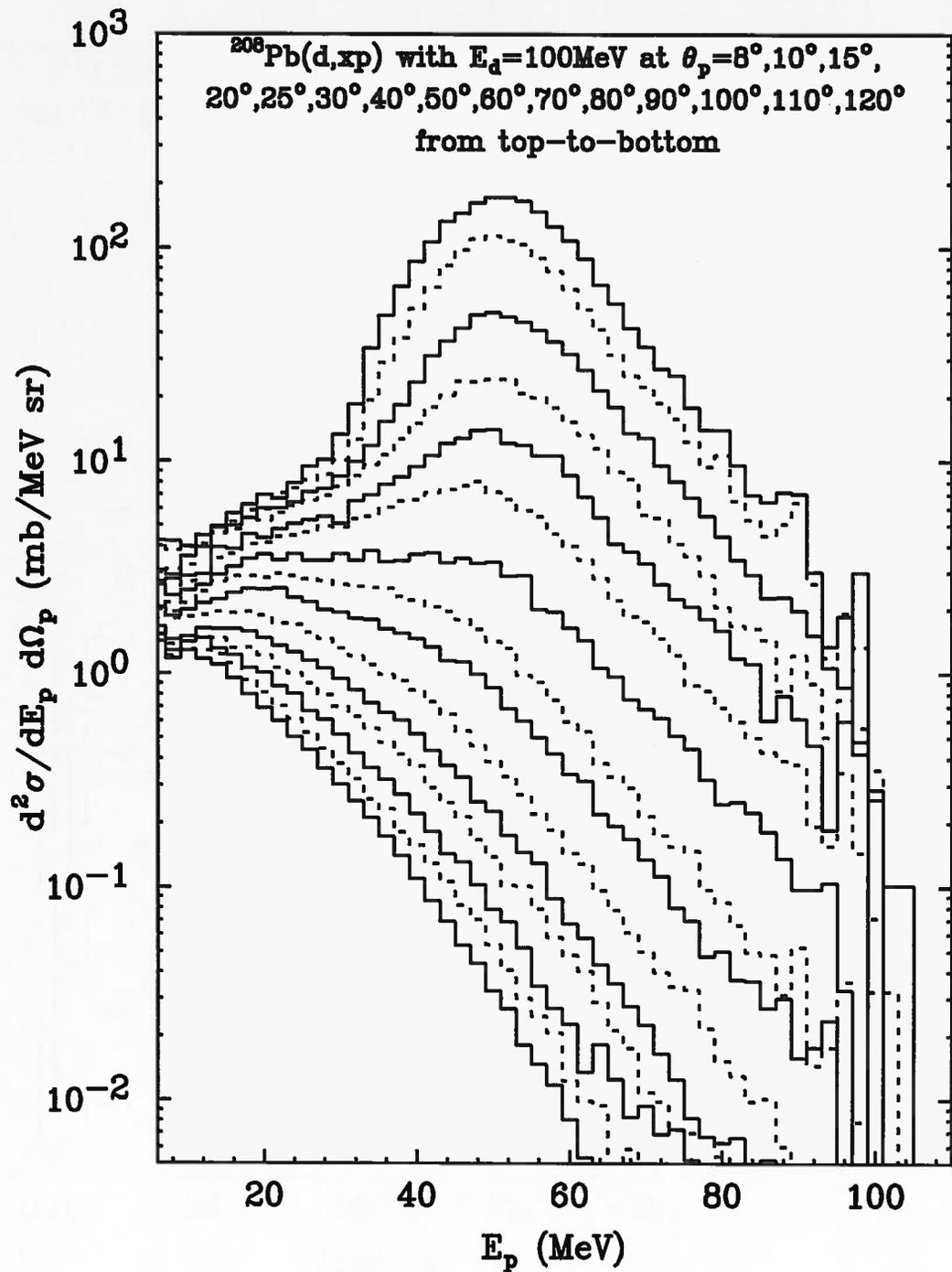


FIG. A.7 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $8^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de 100MeV sur une cible de  $^{208}\text{Pb}$  dans le système du laboratoire. En raison de la contamination de la cible de Pb par l'oxygène, la région de basse énergie ( $E_p < 16\text{MeV}$ ) pour tous les angles des spectres de protons devrait être utilisée avec précaution. À des énergies plus élevées, la contribution de l'oxygène devient faible ( $< 10\%$ ).

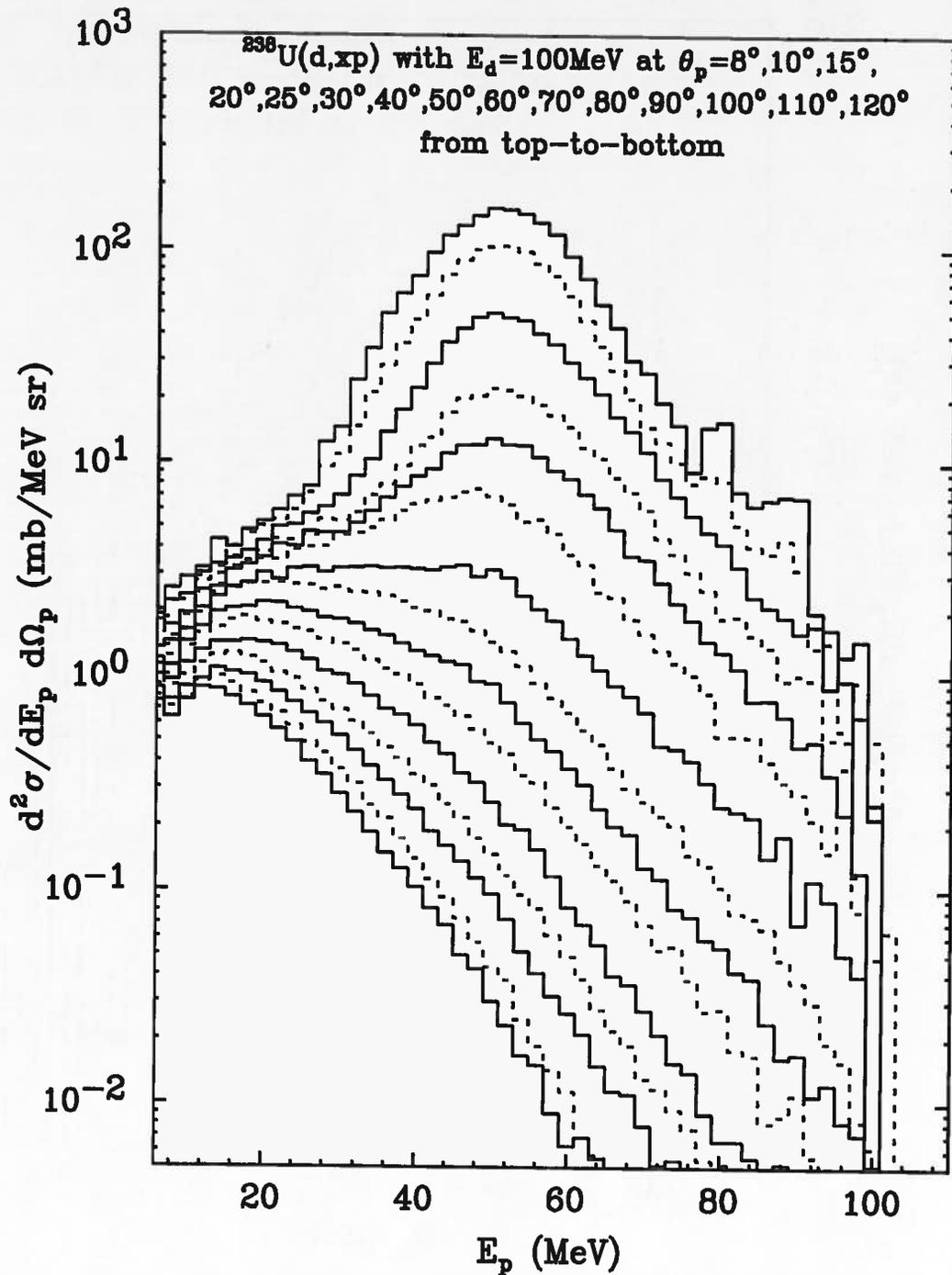


FIG. A.8 – Sections efficaces doublement différentielles des protons de  $8^\circ$  à  $120^\circ$  en fonction de l'énergie pour les deutérons de  $100\text{MeV}$  sur une cible d' $^{238}\text{U}$  dans le système du laboratoire. La valeur absolue des sections efficaces différentielles a une grande incertitude ( $\sim 50\%$ ) puisque l'épaisseur de cible d'uranium n'a pas été connue précisément. En outre, en raison de la contamination de la cible d'uranium par l'oxygène, la région de basse énergie ( $E_p < 16\text{MeV}$ ) pour tous les angles des spectres de protons devrait être utilisée avec précaution. À des énergies plus élevées, la contribution de l'oxygène devient faible ( $< 10\%$ ).

# Bibliographie

- [ABA77] ABACS Study Group, "ABACS (Accelerator Breeder and Converter Reactor Symbiosis Preliminary Report on the Promise of Accelerator Breeding and Converter Reactor Symbiosis (ABACS) as an Alternative Energy System", Oak Ridge National Laboratory, *Report ORNL/TM-5750* (1977).
- [AEC53] AEC Research and Development Report, Facilities for Electronuclear (MTA) Program, Report LWS-24736 (1953).
- [And95] S. Andriamonje *et al.*, *Phys. Lett. B* **348** (1995) 697.
- [Arm72] T.W. Armstrong and K.C. Chandler, *Nuclear Science and Engineering* **49** (1972) 110; « HETC Monte Carlo Nucleon-Meson Transport Code », report CCC-178, ORNL (1977).
- [Art88] E.D. Arthur, « The GNASH Preequilibrium-Statistical Model Code », Los Alamos National Laboratory *report LA-UR-88-382* (1988).
- [Atc80] F. Atchison, « Spallation and Fission in Heavy Metal Nuclei under Medium Energy Proton Bombardment » in « Targets for Neutron Beam Spallation Sources », Jül-Conf-34, Kernforschungsanlage Jülich GmbH (January 1980).
- [Auc96] A. Auce *et al.*, *Phys. Rev. B* **348** (1996) 697.
- [Bar81] J. Barish *et al.*, ORNL/TM-7882, Oak Ridge National Laboratory (July 1981).
- [Bar66] G.A. Bartholomew and P.R. Tunnicliffe, "The AECL Study for an Intense Neutron - Generator (ING) (Technical Details)", *Atomic Energy of Canada Limited Report AECL 2600* (1966).
- [Bar78] G.A. Bartholomew, J.S. Fraser and P.M. Garvey, "Accelerator Breeder Concept", *Atomic Energy of Canada Limited report AECL-6363* (1978).
- [Bar97] A.E.Barzakh *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. B* **126** (1997) 150; V.I. Tikhonov, private communication (April 1998).

- [Bau96] G.S. Bauer, Proc. 2nd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies, Kalmar, Sweden, June 3-7 1996, Ed. H. Condé, Uppsala University Press (1997); TECDOC-836 (1995) IAEA, Vienna, Austria (1995).
- [Bau72] G. Baur and D. Trautmann, *Nucl. Phys. A* **191** (1972) 321; *Nucl. Phys. A* **265** (1976) 101.
- [Ben97] J.R.J. Bennett, *Nucl. Instr. & Meth. B* **126** (1997) 126; J.R.J. Bennett *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. B* **126** (1997) 105.
- [Ber63] H.W. Bertini, *Phys. Rev.* **131** (1963) 1801.
- [Ber69] H.W. Bertini, *Phys. Rev.* **188** (1969) 1711.
- [Bla68] M. Blann, *Phys. Rev. Lett.* **21** (1968) 1357.
- [Bla72] M. Blann, *Phys. Rev. Lett.* **28** (1972) 757.
- [Bor97] F. Borne *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. A* **385** (1997) 339.
- [Bot84] A.H. Botha and H.N. Jungwirth, Proceedings of the 10th International Conference on Cyclotrons and their Applications, Michigan, USA, 1984, Ed. F. Marti, IEEE, New York (1984) 263.
- [Bow92] C.D. Bowman *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. A* **320** (1992) 336; C.D. Bowman, private communication (August 1999).
- [Bre81] D.J. Brenner, R.E. Prael, J.F. Discello and M. Zaider, « Improved Calculations of Energy Deposition from Fast Neutrons », in Proceedings Fourth Symposium on Neutron Dosimetry, EUR-7448, Munich-Neuherberg (1981).
- [Bri93] J. Briesmeister for Group X-6, « MCNP-A, A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport », Version 4A, LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory (1993).
- [Bro96] J.C. Browne *et al.*, Proc. 2nd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies, Kalmar, Sweden, June 3-7 1996, Ed. H. Condé, Uppsala University Press (1997).
- [Bur79] T.J. Burns, D.E. Bartine, J.P. Renier, "TMF-ENFP (Ternary Metal Fueled Electronuclear Fuel Producer) Concept Evaluation of a Nuclear Design for Electronuclear Fuel Production: Evaluation of ORNLs Proposed TMF-ENFP", Oak Ridge National Laboratory, *Report ORNL/TM-6828* (1979).
- [Cha99] M.B. Chadwick *et al.*, *Nuclear Science and Engineering* **131** (1999) 293; M.B. Chadwick, private communication (August 1999).

- 
- [Cha70] J. Chaumont, PhD thesis, CNRS, Orsay (1970) unpublished.
- [Cha81] A. Chatterjee, K.H. Murthy, S.K. Gupta, *Pramana* **16** (1981) 391.
- [Che68] K. Chen *et al.*, *Phys. Rev.* **166** (1968) 949.
- [Clo83] P. Cloth *et al.*, « The KFA-Version of the High Energy Transport Code HETC and the Generalized Evaluation Code SIMPEL », Jül-Spez-196, Kernforschungsanlage Jülich GmbH (March 1983).
- [Clo82] M.R. Clover, R.M. DeVries, N.J. DiGiacomo and Y. Yariv, *Phys. Rev. C* **26** (1982) 2138.
- [Con95] « Concept for Advanced Exotic Beam Facility Based on ATLAS », Argonne National Laboratory, *working "yellow" paper*, (February 1995); J.A. Nolen, private communication (April 1998).
- [Cug87] J. Cugnon, *Nucl. Phys. A* **462** (1987) 751.
- [Cug97] J. Cugnon, C. Volant and S. Vuillier, *Nucl. Phys. A* **625** (1997) 729.
- [Dan47] S.M. Dancoff, *Phys. Rev.* **72** 1117 (1947) 1117.
- [Dre62] L. Dresner, ORNL/TM-196, Oak Ridge National Laboratory (April 1962).
- [Eat87] T. W. Eaton, H.L. Ravn and the ISOLDE Collaboration, *Nucl. Instr. & Meth. B* **26** (1987) 190.
- [Eur96] Euratom du Conseil; directive 96/29; *Journal Officiel des Communautés Européennes L* **159** (1996) 18.
- [Eur99] *European Spallation Source (ESS) - a Next Generation Neutron Source for Europe*, available at « <http://www.isis.rl.ac.uk/ESS/> » (July 1999).
- [Fas93] A. Fasso *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. A* **332** (1993) 459.
- [För91] S.V. Förtsch *et al.*, *Phys. Rev. C* **43** (1991) 691.
- [Fra81] J.S. Fraser *et al.*, "A Review of Prospects for an Accelerator Breeder", Chalk River Nuclear Laboratories, *Report AECL-7260* (1981).
- [Gil65] A. Gilbert and A.G.W. Cameron, *Can. Journ. of Phys.* **43** (1965) 1446.
- [Gil88] J.S. Gilmore, G.J. Russell, H. Robinson, and R.E. Prael, "Fertile-to-Fissile and Fission Measurements for Depleted Uranium and Thorium Bombarded by 800-MeV Protons", *Nucl. Sci. Engin.* **99** (1988) 41.
- [Gla95] S. Glasstone, *Principles of Nuclear Reactor Engineering* (D. Van Nostrand, New York, 1995).
- [Gla55] R.J. Glauber, *Phys. Rev.* **99** (1955) 1515.

- [Gom98] I.C. Gomes, J.A. Nolen, « Influence of the incident particle energy on the fission product mass distribution », Proceed. of the 2nd Int. Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology, Gatlinburg, TN USA, September 20-23, 1998; J.A. Nolen, private communication (May 1999).
- [Gri66] J.J. Griffin, *Phys. Rev. Lett.* **17** (1966) 478.
- [Has96] A. Hassenein *et al.*, *Journal of Nuclear Materials* **233-237** (1996) 1547; J.Nolen, private communication (June 1999).
- [Heb78] L.C. Hebel *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **50** (1978) 1.
- [Hen94] J.S. Hendricks, S.C. Frankle, J.D. Court, « ENDF/B-VI Data for MCNP », Los Alamos National Laboratory, LA-12891 (December 1994).
- [Ign75] A.V. Ignatyuk, G.N. Smirenkin, and A.S. Tishin, *Sov. J. Nucl. Phys.* **21** (1975) 256.
- [Joh97] R.C. Johnson, J.S. Al-Khalili, J.A. Tostevin, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 2771.
- [Kal81] C. Kalbach and F.M. Mann, *Phys. Rev. C* **23** (1981) 112; C. Kalbach, *Phys. Rev. C* **23** (1981) 124.
- [Kal85] C. Kalbach, « PRECO-D2: Program for Calculating Preequilibrium and Direct Reaction Double Differential Cross Sections », Los Alamos National Laboratory report **LA-10248-MS** (1985).
- [Kal88] C. Kalbach, *Phys. Rev. C* **37** (1988) 2350.
- [Kho99] G.L. Khorasanov *et al.*, « Lead and Tin Targets for Reducing Polonium Waste » Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print).
- [Kin79] R. Kinsey, « Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File, ENDF », Brookhaven National Laboratory, BNNL-NCS-50496, 2nd Edition ENDF/B-V (October 1979).
- [Kol85] R. Kolowitz *et al.*, Hanford Report HEDL-TME 84-29 (1985); J.Nolen, private communication (September 1999).
- [Law60] E.O. Lawrence, E.M. McMillan, and L.W. Alvarez, Electronuclear Reactor, United States Patent No. 2-933-442 (April 1960).
- [Led98] X. Ledoux *et al.*, « Spallation neutron production by 0.8, 1.2 and 1.6 GeV protons », submitted to *Phys. Rev. Lett.* (October 1998).
- [Ler99a] S. Leray, private communication (August 1999).

- 
- [Ler99b] S. Leray, Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print), available from Proceedings ADTTA'99 at "[http://www.fjfi.cvut.cz/con\\_adtt99/](http://www.fjfi.cvut.cz/con_adtt99/)";  
S. Leray, Proceedings of the Workshop "Innovative Options in the Field of Nuclear Fission Energy", Centre de Physique des Houches, France, April 27 - May 1, 1998, Ed. J.-P.Schapira, *J. Phys. IV France* **9** (1999) pr7-3.
- [Ler98] R. Leroy and A.C.C Villari, private communication (December 1998).
- [Lev99] V.I. Levanov *et al.*, « The Estimation of Radiation Danger of Gaseous and Volatile Radionuclides in the ADS », Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print).
- [Lew52] W.B. Lewis, The Significance of the Yield of Neutrons from Heavy Nuclei Excited to High Energies, Atomic Energy of Canada Limited Report AECL 968 (1952).
- [Lot98] B. Lott *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. A* **414** (1998) 117.
- [Mag99] J. Magill, "A Short History of Accelerator Driven Systems", Institute for Transuranium Elements, Karlsruhe, available at: "<http://itumagill.fzk.de/ADS/>" (1999).
- [Mar97a] E. Martinez, These le Grade de Docteur de l'Universite de Caen, Caen (May 1997); available by request from DPTA/SPN, Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), 91680 Bruyères-le-Châtel, France.
- [Mar97b] E. Martinez *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. A* **385** (1997) 345.
- [McI88] V. McLane, C.L. Dunford, P.F. Rose, « Neutron Cross Sections », Academic Press, INC., New York (1988) 717.
- [Meu75] J.P. Meulders, P. Leleux, P.C. Macq and C. Pirart, *Phys. Med. Biol.* Vol. **20**, No. **2** (1975) 235.
- [Mic97] R. Michel and P. Nagel, International Codes and Model Intercomparison for Intermediate Energy Activation Yields, NEA/OECD, NSC/DOC(97)-1 (1997); M. Blann, H. Gruppelar, P. Nagel, and J. Rodens, *International Code Comparison for Intermediate Energy Nuclear Data*, NEA/OECD, Paris (1994).
- [Mig76] A. Mignerey *et al.*, *Nucl. Phys. A* **273** (1976) 125.
- [Mit98] W. Mittig, *J. Phys G: Nucl. Part. Phys.* **24** (1998) 1331.
- [Muk88] T. Mukaiyama *et al.*, « Conceptual study of actinide burner reactors », International Reactor Physics Conference, Jackson Hole, WY (USA), 18-22 September 1988; T. Mukaiyama, private communication (July 1999).

- [Nif97] Proceedings of the International Workshop on "Research with Fission Fragments", Benediktbeuern, Germany, 28-30 October 1996, Eds. T. von Egidy, D. Habs, F.J. Hartmann, K.E.G. Löbner, H. Nifenecker, World Scientific (1997) 54.
- [Nif99] H. Nifenecker, S. David, J.M.Loiseaux, A. Giorni, "Hybrid Nuclear Reactors", Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble (ISN) **ISN 99.04**, (January 1999), submitted to *Progress in Particle and Nuclear Physics* at the request of the editor.
- [Nol93] J.A. Nolen, Proceedings of the 3rd International Conference on RNB, Gif-sur-Yvette, France, 24-27 May 1993, Ed. D.J. Morrissey, Editions Frontiers (1993) 111.
- [Nol99] J.A. Nolen, private communication (September 1999).
- [OEC99] « Report of the Study group on Radioactive Nuclear Beams », OECD Megascience Forum (February 1999).
- [Oka98] H. Okamura *et al.*, *Phys. Lett. B* **325** (1994) 308; H. Okamura *et al.*, *Phys. Rev. C* **58** (1998) 2180.
- [Orl99] Y.I Orlov *et al.*, « Problems of Heavy Coolants Technology in ADS », Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print).
- [Par98] W.S. Park *et al.*, « HYPER (HYbrid Power Extraction Reactor); a system for clean nuclear energy », July 1998 submitted to *Nuclear Science and Engineering*; W.S. Park, private communication (July 1998).
- [Pia94] PIAFE Collaboration, "Piafe Project: Physics Case", SARA/ISN, Institute des Sciences Nucléaires de Grenoble (June 1994)
- [Pia98] PIAFE Project Report, Eds. U.Köster and J.A.Pinston, (March 1998).
- [Pie94] L. Pienkowski *et al.*, *Phys. Lett. B* **336** (1994) 147.
- [Pil89] J.V. Pilcher *et al.*, *Phys. Rev. C* **40** (1989) 1937.
- [Pra88] R.E. Prael and M. Bozoian, Los Alamos National Laboratory, report LA-UR-88-3238 (September 1988).
- [Pra89] R.E. Prael and H. Lichtenstein, « User Guide to LCS: The LAHET Code System, » Los Alamos National Laboratory report **LA-UR-89-3014** (September 1989); R.E. Prael, private communication (April 1997).
- [Pra93] R.E. Prael, *Proceedings of the Workshop on Simulating Accelerator Environments*, LA-12835-C, New Mexico, USA, (January 1993), LA-12835-C (1993) 204.

- 
- [Pra94] R.E. Prael, *Intermediate Energy Nuclear Data : Models and Codes, Proceedings of a Specialists' Meeting*, Issy-les-Moulineaux, France, (June 1994), OECD (1994) 145.
- [Pra98] R.E. Prael, private communication (May 1997 and November 1998).
- [Put97] J.C. Putaux *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. B* **126** (1997) 113.
- [R&D98] "R&D for the SPIRAL Phase-II : neutron-rich beams in high charge-states made by Deuterons", the EU contract ERB4062PL975009, April 1998 - May 2001 ; information available at "<http://www.ganil.fr/spiral2/>"; M.-G. Saint-Laurent *et al. Nouvelles du Ganil* **65** (1999) 9.
- [Rao79] V.K. Rao *et al.*, *Phys. Rev. C* **19** (1979) 1372.
- [Rav94] H.L. Ravn *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. B* **88** (1994) 441.
- [Rea97] Proceedings of the International Workshop on "Research with Fission Fragments", Benediktbeuern, Germany, 28-30 October 1996, Eds. T. von Egidy, D. Habs, F.J. Hartmann, K.E.G. Löbner, H. Nifenecker, World Scientific (1997).
- [Ric98] M.V. Ricciardi and S.Monti, « Analysis on Exotic Nuclide Production using Monte Carlo Simulations », ENEA, **DT-SBD-5** (1998); M.V. Ricciardi, private communication (March 1999).
- [Rid98a] D. Ridikas and W. Mittig, *Nucl. Instr. & Meth. A* **418** (1998) 449; *GANIL preprint P 97 19*, GANIL, Caen (May 1997), available from CERN Library Catalogue at "<http://alice.cern.ch/>"
- [Rid98b] D. Ridikas and W. Mittig, Proceedings of the 2nd International Conference on Exotic Nuclei and Atomic Masses (ENAM'98), Shanty Creek Resort, Bellaire, Michigan, USA, 23-27 May 1998, Ed. B.M. Sherrill, American Institute of Physics (1998) 1003; *GANIL preprint P 98 22*, GANIL, Caen (July 1998), available from CERN Library Catalogue at "<http://alice.cern.ch/>".
- [Rid99c] D. Ridikas, W. Mittig and J.A. Tostevin, *Phys. Rev. C* **59** (1999) 1555; *GANIL preprint P 98 28*, GANIL, Caen (September 1998), available from CERN Library Catalogue at "<http://alice.cern.ch/>".
- [Rid99d] D. Ridikas and W. Mittig, *Heavy Ion Physics* (April 1999) (in print at the request of the editor); GANIL (Caen, France) preprint No. *GANIL P 99 12* (1999) 1-21, available from CERN Library Catalogue at "<http://alice.cern.ch/>".
- [Rid99e] D. Ridikas, « Production de neutrons par faisceaux de deutons : une alternative aux protons. Application a la production d'énergie et aux faisceaux

- radioactifs », *Journées Thematique de l'I.P.N. d'Orsay : "Les Dechets Nucleaires : un Nouvel Enjeu de Recherches"*, IPN Orsay, France, 28 May 1999.
- [Rid99f] D. Ridikas and W. Mittig, Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print), available from Proceedings ADTTA'99 at "[http://www.fjfi.cvut.cz/con\\_adtt99/](http://www.fjfi.cvut.cz/con_adtt99/)".
- [Roo66] P.G. Roos and N.S. Wall, *Phys. Rev.* **140** (1965) B1237.
- [Rub95] C. Rubbia *et al.*, « Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier », *preprint CERN/AT/95-44* (ET) (1995); *preprint CERN/AT/95-53* (ET) (1995); *preprint CERN/AT/97-01* (ET) (1997); *preprint CERN/AT/98-02* (ET) (1998).
- [Sal99] M. Salvatores, Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print), available from Proceedings ADTTA'99 at "[http://www.fjfi.cvut.cz/con\\_adtt99/](http://www.fjfi.cvut.cz/con_adtt99/)";  
M. Salvatores, Proceedings of the Workshop "Innovative Options in the Field of Nuclear Fission Energy", Centre de Physique des Houches, France, April 27 - May 1, 1998, Ed. J.-P.Schapira, *J. Phys. IV France* **9** (1999) pr7-3;  
M. Salvatores *et al.*, *Nucl. Instr. & Meth. A* **414** (1998) 5.
- [Sar97] E. Sartori, OECD/NEA – Data Bank in Paris, private communication (May 1997).
- [Seg82] R.E. Segel *et al.* *Phys. Rev. C* **26** (1982) 2424.
- [Ser47a] R. Serber, *Phys. Rev.* **72** (1947) 1008.
- [Ser47b] R. Serber, *Phys. Rev.* **72** (1947) 1114.
- [Spa99] *Spallation Neutron Source (SNS) Status Report*, Oak Ridge National Laboratory, USA, available at « <http://www.ornl.gov/sns/> » (July 1999).
- [Sta54] Status of the MTA process, *report LRL-102*, Livermore Research Laboratory (February 1954); C.M. Van Atta, « A brief history of the MTA project », unpublished; C.M Van Atta, J.D. Lee, W. Heckrotte, "The Electronuclear Conversion of Fertile to Fissile Material", *Lawrence Livermore Laboratory Report UCRL-52144* (1976).
- [Tal92] W.L. Talbert, H.H. Hsu and F.C. Prenger, *Nucl. Instr. & Meth. B* **70** (1992) 175.

- 
- [Tan85] I. Tanihata *et al.*, Phys. Lett. **B 160** (1985) 360; I. Tanihata *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2676; I. Tanihata *et al.*, Phys. Lett. **B 206** 592 (1988) 592.
- [Tos98a] J.A. Tostevin *et al.*, Phys. Lett. **B 424** (1998) 219.
- [Tos98b] J.A. Tostevin, S. Rugmai, and R.C. Johnson, Phys. Rev. **C 57** (1998) 3225.
- [Tra72] B.L. Tracy *et al.*, Phys. Rev. **C 5** (1972) 222.
- [Urb93] T.J. Urbatsch *et al.*, « Estimation and Interpretation of  $k_{eff}$  Confidence Intervals in MCNP », Los Alamos National Laboratory, *report* LA-12657 (1993).
- [Vol98] C. Volant, private communication (October 1998).
- [Wat73] F.M. Waterman *et al.*, Phys. Rev. **C 8** (1973) 2419.
- [Wil98] W.B. Wilson, T.R. England and K.A. Van Riper, « Class on CINDER'99 CODE and Associated Programs and Data for transmutation Calculations », Los Alamos National Laboratory, Theoretical Division, Nuclear Theory and Applications Group T-2 (July 1998); W.B. Wilson, private communication (September 1998).
- [Wil99] W.B. Wilson, T.R. England and K.A. Van Riper, « Status of CINDER'90 Codes and Data, » Los Alamos National Laboratory *preprint* LA-UR-99-361 (1999), submitted to Proc. of 4th Workshop on Simulating Accelerator Radiation Environments, September 13-16, 1998, Knoxville, Tennessee, USA; W.B. Wilson, private communication (October 1998).
- [Wu79a] J.R. Wu, C.C. Chang and H.D. Holmgren, Phys. Rev. **C 19** (1979) 370.
- [Wu79b] J.R. Wu, C.C. Chang and H.D. Holmgren, Phys. Rev. **C 19** (1979) 698.
- [Yar79] Y. Yariv and Z. Fraenkel, Phys. Rev. **C 20** (1979) 2227.
- [Yar81] Y. Yariv and Z. Fraenkel, Phys. Rev. **C 24** (1981) 488.
- [Yar99] Y. Yariv, private communication (April 1999).
- [Yef99] E.I. Yefimov *et al.*, « Development of the Lead-Bismuth Target », Proceedings of the 3rd Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technologies (ADTT'99), Praha, Czech Republic, 7-11 Jun. 1999 (in print); E.I. Yefimov, private communication (July 1999).
- [Zem51] M.W. Zemansky, « Heat and Thermodynamics », Mc Graw-Hill, INC. (1951) 81.



## Résumé

Ce travail de thèse se compose d'une partie théorique et d'une partie expérimentale. Nous combinons et utilisons les codes de transport de haute énergie LAHET, de basse énergie MCNP et le code d'activation CINDER. Nos calculs de validation des codes montrent que LAHET néglige la dissociation coulombienne du deutéron. En ajoutant cette contribution, nous obtenons un bon accord avec les données. Nous concluons également que LAHET reproduit bien la production d'isotopes si le modèle de fission ORNL est utilisé pour des cibles avec  $Z > 90$ . Le modèle de fission RAL donne des distributions isotopiques trop larges et ne reproduit pas les données en valeur absolue.

Nous examinons différentes combinaisons de faisceaux (projectile, énergie), de cibles de spallation et de coeur de réacteur pour la production de neutrons, l'amplification d'énergie et la production de faisceau radioactif par fission. Nous montrons que les réactions  $(d, xn)$  pourraient apporter un certain nombre d'avantages importants, comparées aux réactions  $(p, xn)$ . Nous concluons que l'utilisation de deutérons au lieu de protons devrait conduire à des intensités de faisceau primaire plus élevées, à un prix réduit du système et à moins de problèmes de radioprotection.

Dans le projet SPIRAL Phase-II au GANIL, nous proposons la combinaison  $d(100\text{MeV}) + \text{Be} \rightarrow xn + \text{U}$  pour une production optimum de noyaux riches en neutron dans la région de masse  $75 \leq A \leq 160$ . Cependant, la production de gaz de tritium dans la cible de conversion devrait être soigneusement étudiée. Nous prouvons également que l'utilisation des cibles de conversion de métal plus lourd peut poser des problèmes de radioprotection plus graves.

Notre travail expérimental est directement relié aux investigations théoriques. Nous mesurons les distributions en énergie de protons produits par des deutérons de 100 et de 200 MeV sur 8 cibles minces (Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb et U) et dans la région angulaire  $8^\circ \leq \theta_p \leq 120^\circ$ . Les deux expériences ont été réalisées au LNS (Saclay, France) et au NAC (Faure, Afrique du Sud). Les données de bonne qualité (10% en valeur absolue et un seuil en énergie de 4-8 MeV) sont bien reproduites par le modèle LAHET amélioré pour les réactions  $(d, xp)$  et, par conséquent, pour les réactions  $(d, xn)$ .

**Mots-clés :** réactions directes (physique nucléaire), sources de neutrons, fission nucléaire, faisceaux d'ions radioactifs.

## Abstract

This thesis work consists of two parts: a) theoretical, and b) experimental. We combine and use the high energy transport code LAHET, the low energy transport code MCNP, and the activation code CINDER. Our benchmarking calculations show that LAHET neglects the Coulomb dissociation for deuterons. By adding this missing term, we obtain a good agreement with the available data. We also conclude that LAHET describes well the data for isotope production yields if the ORNL fission model is employed for nuclei with  $Z > 90$ . The "default" RAL fission model gives too broad isotopic distributions and fails to reproduce the data in absolute value.

We examine different combinations of beams, beam energies, spallation target and multiplying medium materials in order to optimize the neutron production, energy amplification and isotope production via neutron induced fissions. We show that the  $(d, xn)$  reactions could bring a number of important advantages when compared to the  $(p, xn)$  reactions. We conclude that the use of deuterons instead of protons should result in higher primary beam intensities, lower costs of the system and facilitate radioprotection problems.

Within the SPIRAL Phase-II project at GANIL, we propose  $d(100\text{MeV}) + \text{Be} \rightarrow xn + \text{U}$  as an optimum combination for the production of neutron rich nuclei in the mass region  $75 \leq A \leq 160$ . However, the production of tritium gas in the target-converter should be considered carefully. The use of heavier metal targets-converters may cause more severe problems of radioprotection.

Our experimental work is closely related to the theoretical investigations. We measure the complete proton spectra for 100 and 200 MeV deuteron induced reactions on 8 thin targets (Be, C, Al, Ni, Nb, Ta, Pb and U) and in the angular region  $8^\circ \leq \theta_p \leq 120^\circ$ . The experiments were carried at LNS (Saclay, France) and at NAC (Faure, South Africa). Good quality data (within 10% in absolute value and with 4-8 MeV energy threshold) support our improved LAHET physics modelling for  $(d, xp)$  and, consequently, for  $(d, xn)$  reactions.

**Keywords :** direct reactions (nuclear physics), neutron sources, nuclear fission, radioactive ion beams.