

Université Paris Sud

ECOLE DOCTORALE 534 : MIPEGE

Laboratoire : Institut de Physique Nucléaire

DISCIPLINE: Physique Nucléaire

THESE DE DOCTORAT

soutenue le 27/09/2013 par

Lou Sai Leong

Document de synthèse

Distributions angulaires de
fragments de fission et validation de
sections efficaces de fission

Composition du jury :

Président	Yorick Blumenfeld
Rapporteur	Nicola Colonna
Rapporteur	Jean-luc Sida
Examineur	Katsuhisa Nishio
Examineur	Emmeric Dupont
Directeur de thèse	Laurent Tassan-Got

SYNTHESE

Partie I

Dans notre société actuelle, dont les besoins énergétiques ne cessent d'augmenter, la question de la production d'énergie fait écho à des préoccupations générales telles que le réchauffement climatique et l'émission de gaz à effet de serre tel que le dioxyde de carbone. L'une des réponses à cette problématique énergétique est le développement de l'énergie nucléaire au travers de la conception de systèmes innovants pour les réacteurs dits de génération IV. Toutefois, la conception de ces réacteurs de demain, plus efficaces et plus soucieux de l'environnement, ne se fera qu'avec le respect de conditions drastiques de sûreté. Ceci implique donc la nécessité de préciser les informations sur les réactions nucléaires impliquées dans ces systèmes. C'est ce qu'on englobe dans le vocable « données nucléaires ». Ces informations sur les réactions nucléaires nécessitent, en plus d'une large gamme de noyaux et d'énergie, un niveau élevé de précision.

Ce travail concerne l'étude des distributions angulaires de fragments de fission ainsi que la validation des sections efficaces de fission.

L'émission des fragments de fission est isotrope à basse énergie (au-dessous de 10 keV) à cause du moment orbital nul impliqué, et du fait que le neutron incident et le noyau-cible ne sont pas orientés. Par contre quand l'énergie du neutron incident augmente l'émission n'est plus isotrope et l'amplitude de l'anisotropie dépend à la fois du moment angulaire apporté par le neutron et des caractéristiques de spin des états conduisant à la fission. La mesure de cette anisotropie présente donc un intérêt direct en termes de structure nucléaire. En effet, ces mesures apportent des informations uniques sur les propriétés physiques des systèmes en cours de fission. De plus cette anisotropie impacte, au travers de l'efficacité de détection de la fission, la mesure d'un autre élément clé des bases de données nucléaires : la section efficace de fission.

L'anisotropie est quantifiée comme étant le rapport entre le nombre d'émissions de fragments de fission alignés sur la direction des neutrons incidents $W(0^\circ)$, sur le nombre d'émissions de fragments de fission orthogonales à cette direction $W(90^\circ)$.

L'expérience permettant la mesure des distributions angulaires de fragments fission induite par les neutrons (FFAD) a eu lieu sur l'installation n_TOF (neutron time of flight) construite au CERN près de Genève dans le but d'étudier les captures radiatives et la fission induite par des neutrons.

Les neutrons utilisés à n_TOF sont produits par des réactions de spallation, l'évaporation par les noyaux cibles lourds étant la principale source de neutrons. Cette réaction de spallation est induite par des protons de 20 GeV, accélérés par synchrotron à protons du CERN (PS), sur une cible épaisse de plomb (figure 1).

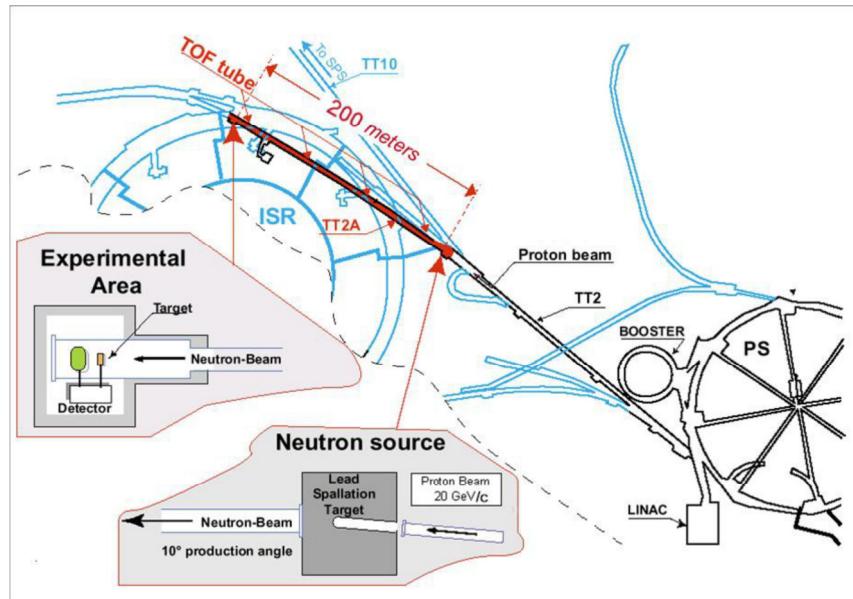


Figure 1 : l'installation n_TOF au CERN

Chaque collision éjecte rapidement des particules énergétiques (π , n, p, d, etc.) et les particules rapides émises au cours de la réaction se propagent dans la cible et induisent à leur tour d'autres réactions de spallation avec une énergie plus petite. Par conséquent, le proton incident de 20 GeV induit une gerbe dans la cible épaisse. Cette installation permet d'obtenir une source de neutron couvrant une gamme d'énergie sans équivalent au monde, depuis le thermique (25 meV) jusqu'au-delà de 1 GeV.

Le système expérimental est placé à 185 m en aval de la cible de spallation et les neutrons se propagent dans un tuyau dans lequel règne un vide primaire. Un aimant placé sur la ligne dévie les particules chargées et un système de collimation permet de définir les dimensions de la du faisceau de neutrons à un diamètre de 8 cm (figure 2).

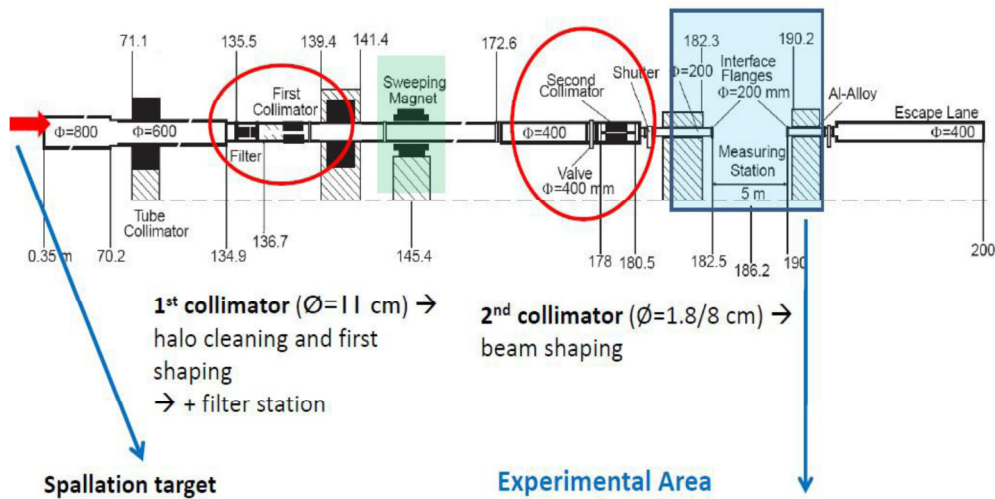


Figure 2 : ligne de propagation des neutrons avec l'aimant et les collimateurs

Dans notre dispositif expérimental, la distribution angulaire des fragments de fission induite par les neutrons (FFAD) a été mesurée grâce à des compteurs à avalanche à plaques parallèles (PPAC), conçus et construits à l'IPN d'Orsay (France), pour la mesure des sections efficaces de fission.

Les PPAC (Parallel Plate Avalanche Counters) se composent de trois électrodes : une anode centrale entourée de 2 cathodes avec un espacement de 3,2 mm. Chaque électrode est constituée d'une feuille mince de mylar d'une épaisseur de 1,7 μm , rendue conductrice par un dépôt sous vide d'une couche d'aluminium. Les cathodes sont constituées de bandes d'aluminium de largeur 2 mm pour la localisation des fragments. Chaque feuille aluminisée est collée sur un cadre en époxy qui assure à la fois l'espacement parallèle entre électrodes, la lecture des signaux et la connexion de haute tension (550 V). Ce cadre supporte également les préamplificateurs. L'espace entre les plaques est rempli d'un gaz à basse pression (octofluoropropane à 4 mbar) qui, lorsqu'un fragment de fission le traverse, est ionisé et produit une trace de paires d'ions primaires. Les électrons dérivent vers l'anode entrent en collision avec des molécules neutres de gaz, générant plus de paires d'ions. Les électrons libérés par ce procédé d'ionisation secondaire sont également accélérés par le champ électrique et se multiplient à leur tour. La faible pression de gaz, combinée avec le champ électrique élevé (550 V sur 3,2 mm), permet de créer les conditions d'un régime proportionnel appelé avalanche électronique (Townsend avalanche).

La cathode est sensible à l'influence des charges produites lors de la dérive et la multiplication des électrons et ions et cette influence est centrée sur la position de l'avalanche. Chaque bande de cathode acquiert une partie de la charge induite, et fournit des informations précises sur la position du fragment de fission. Les 2 cathodes ont des bandes orientées respectivement suivant X et Y,

permettant une détermination dans le plan XY. La lecture de la localisation des fragments de fission sur les bandes s'effectue par une ligne à retard, conçue et construite à l'IPN, chaque bande étant reliée à un point intermédiaire de cette ligne de retard. La différence de temps des signaux atteignant les extrémités de la ligne est utilisée pour déterminer la position, X ou Y suivant l'électrode.

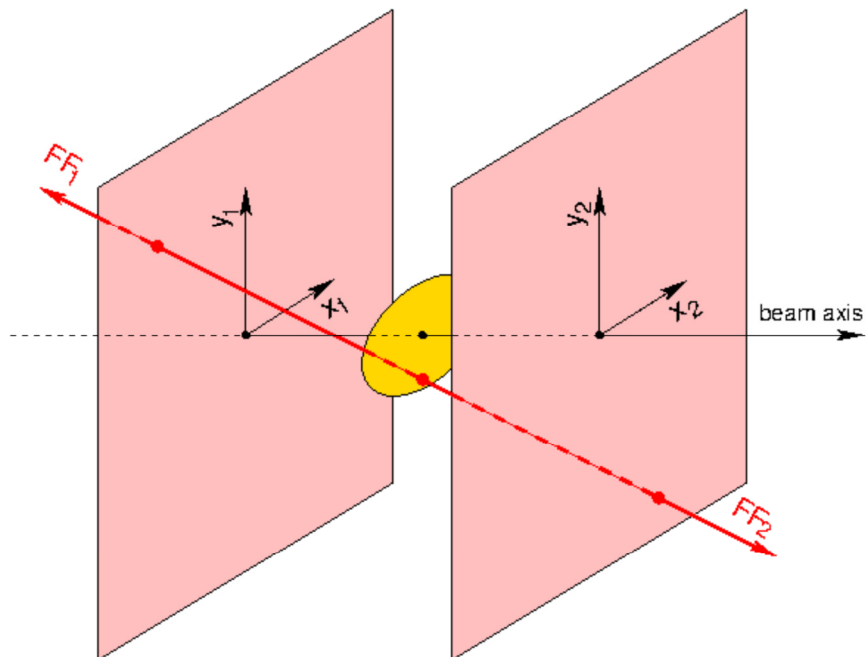


Figure 3 : principe de localisation des 2 fragments de fission pour reconstruire la direction de fission

Les contraintes de compacité, de grand angle solide de détection, de grande surface de cible (diamètre 8 cm) pour bénéficier de la taille du faisceau, de rapidité en temps pour observer les fissions de haute énergie nous ont amené à reconstruire la direction de fission comme la droite joignant les points de passage des fragments de fission détectés en coincidence dans les détecteurs placés de chaque côté de la cible, comme illustré sur la figure 3. Cette méthode exige donc une détection corrélée des 2 fragments de fission car le point d'émission est inconnu sur une grande surface, elle exige donc des cibles très minces de sorte que les fragments de fission émis puissent traverser la cible et rejoindre le PPAC.

Néanmoins, ce type de détection possède une efficacité proche de 50% seulement à cause de la perte des fragments de fission stoppés dans la feuille support de cible ou le mylar des électrodes pour les trajectoires très inclinées. En particulier le système est aveugle aux trajectoires inclinées à plus de 60° par rapport à la perpendiculaire aux détecteurs et cibles. C'est la raison pour laquelle

nous avons opté pour une géométrie où les détecteurs et cibles sont inclinés à 45° par rapport à l'axe du faisceau, comme illustré dans la figure 4. Ceci ne permet pas d'augmenter l'efficacité globale mais permet de couvrir toute la gamme des angles de fission entre 0° et 90° .

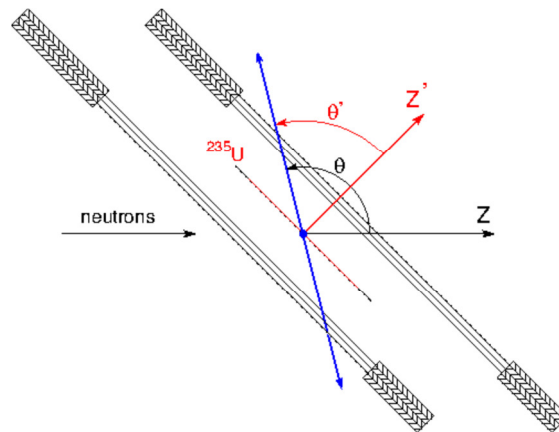


Figure 4 : schéma d'une cellule de détection avec une cible placée entre deux PPACs inclinés à 45° par rapport au faisceau incident

Le système dans son ensemble est constitué de 9 cibles et 10 détecteurs, chaque détecteur « regardant » 2 cibles, sauf ceux situés aux extrémités. L'ensemble contenait les cibles suivantes : ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th , ^{237}Np , $5 \times ^{232}\text{Th}$. Une vue réaliste de la chambre de détection ouverte est montrée à la figure 5.

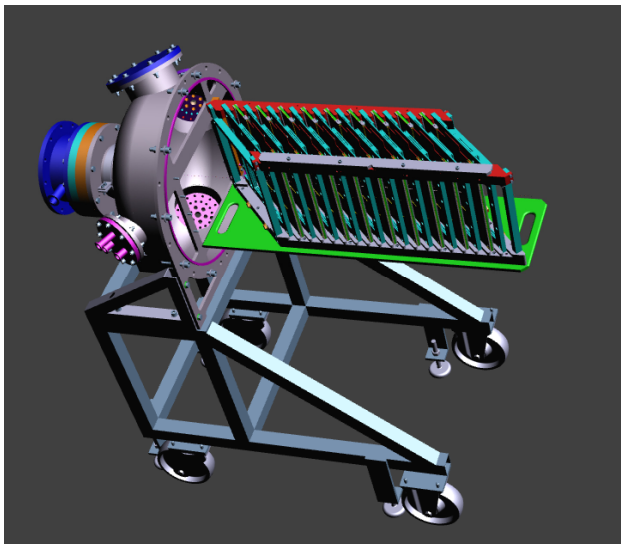


Figure 5 : vue réaliste du système cibles+détecteurs

Comme l'efficacité de détection dépend de l'angle il est essentiel de la déterminer avec précision pour en déduire les distributions angulaires. Nous avons développé pour cela une méthode basée sur le fait que la distribution angulaire dépend seulement de l'angle θ par rapport au faisceau alors que l'efficacité ne dépend que de l'angle θ' par rapport à la normale aux cibles et détecteurs (figure 4)

Le fait qu'un angle θ donné puisse être atteint avec différentes valeurs de θ' permet un découplage entre les variations de nombre de trajectoires dues à la distribution angulaire et dues à l'efficacité de détection.

Par exemple pour un $\cos\theta'$ donné, on a une efficacité fixée qui est la même pour tous les $\cos\theta$ à cause du fait que les fragments ont à parcourir la même épaisseur de matériau pour atteindre l'espace de détection. Pour ces $\cos\theta$ décrits avec le même $\cos\theta'$ la variation du nombre de coups est directement proportionnelle à la distribution angulaire. Réciproquement pour un $\cos\theta$ donné le nombre de fissions émises est donné et la variation du nombre détecté en fonction des $\cos\theta'$ qui y conduisent reflète directement l'efficacité de détection. Ceci est illustré dans la figure 6 qui montre le domaine accessible géométriquement dans le plan $(\cos\theta, \cos\theta')$.

Cette méthode a permis d'obtenir la dépendance de l'efficacité de détection en fonction de l'angle θ' de manière indépendante pour chaque cible et pour différents domaines en énergie des neutrons. La figure 7 illustre cette dépendance dans le cas des cibles de ^{232}Th .

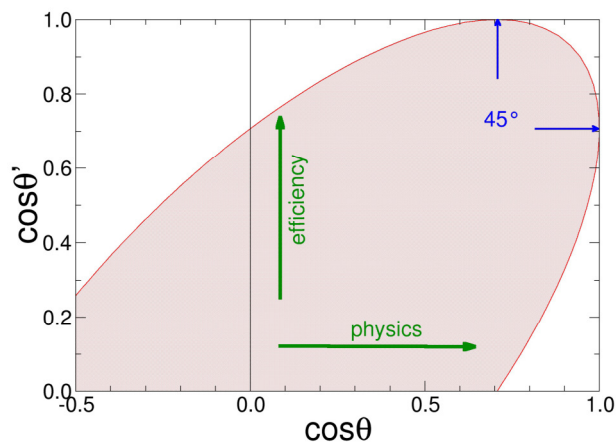


Figure 6 : la surface coloriée représente la zone accessible dans le plan $(\cos\theta, \cos\theta')$

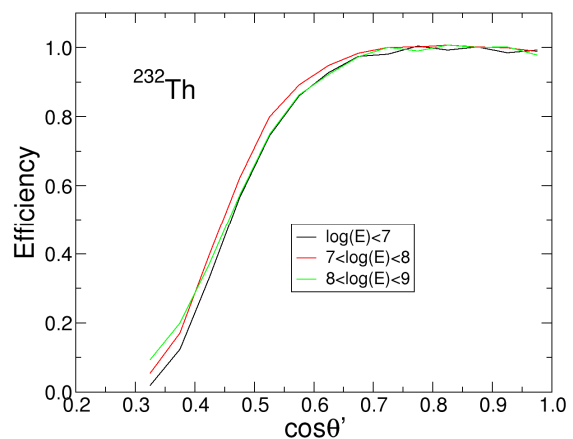


Figure 7 : dépendance en $\cos\theta'$ de l'efficacité de détection pour les 6 cibles de ^{232}Th , et pour 3 domaines en énergie des neutrons

Cette méthode est particulièrement puissante car elle n'a pas besoin de cible ou de distribution de référence. Elle prend bien en compte les particularités de chaque cible, comme par exemple la rugosité de l'état de surface.

Après correction de l'efficacité de détection nous avons obtenu les distributions angulaires des fragments de fission par intervalles d'énergie des neutrons et nous avons ajusté ces distributions par des polynômes de Legendre symétriques

d'ordre 4. De ces distributions nous avons extrait l'anisotropie qui représente une valeur synthétique de la distribution angulaire et c'est ce paramètre que nous représentons et discutons dans la suite de ce travail.

La figure 8 représente la variation de cette anisotropie avec l'énergie dans le cas de ^{232}Th . La comparaison entre l'anisotropie (graphe supérieur) et la section efficace (graphe inférieur) illustre clairement une forte corrélation entre la valeur de l'anisotropie et les ouvertures des différentes chances de fission (émission d'un ou plusieurs neutrons avant fission). En effet, l'émission des neutrons enlève une quantité d'énergie d'excitation qui réduit la température T du noyau diminue après chaque émission. Le paramètre de spin K_0 devient alors très petit expliquant pourquoi l'anisotropie augmente fortement au niveau des énergies de fission de n^{e} chance où les neutrons émis laissent le noyau faiblement excité. Ce phénomène est particulièrement visible pour la première et seconde chance de fission.

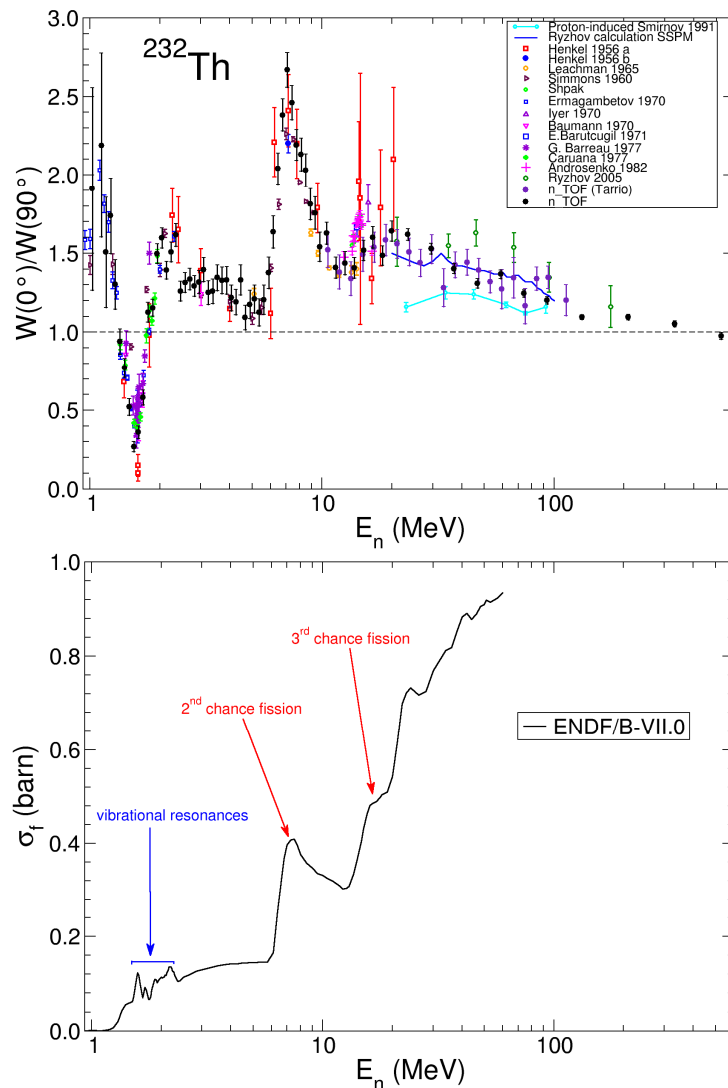


Figure 8 : Haut : variation de l'anisotropie pour ^{232}Th comparée aux résultats antérieurs. Bas : section efficace de fission avec la même échelle en énergie

On observe également un « trou », c'est-à-dire que l'anisotropie devient inférieure à 1 et l'émission à 90^0 est favorisée, autour de 1.6 MeV. Ce résultat avait déjà été observé et correspond à des états de résonances vibrationnelles ayant K proche de J .

On remarquera également que pour les énergies intermédiaires comprises entre 20-200MeV, les seules données existant avant n-TOF étaient celle de Ryzhov. L'anisotropie que nous mesurons (n_TOF) est bien inférieure à celle trouvée par Ryzhov. Pour expliquer quantitativement ses données Ryzhov avait développé un modèle de calcul de l'anisotropie, nommé SSPSM (standard saddle-point statistical model), qui inclut l'émission de prééquilibre et calcule les populations de noyaux fissionnant en traitant explicitement le spin. Le modèle prédisait une anisotropie nettement inférieure à ses mesures, sans qu'une explication claire soit trouvée à cet écart. Nos données sont en très bon accord avec son modèle comme le montre la figure 9.

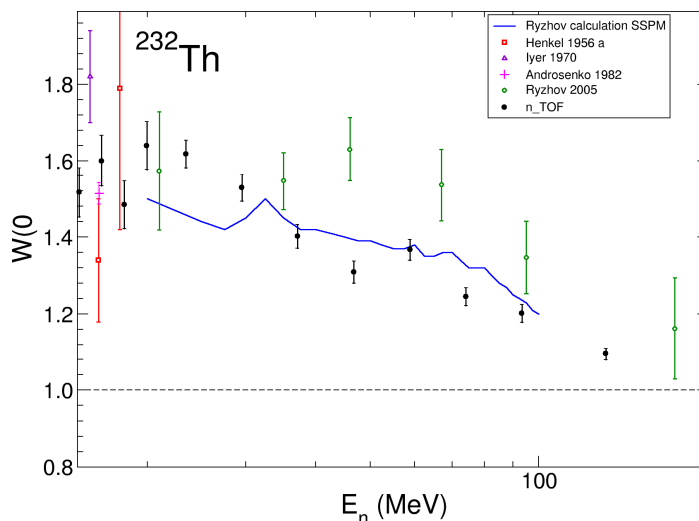


Figure 9 : anisotropie aux énergies intermédiaires, comparée aux données et au modèle de Ryzhov

Il est intéressant de comparer les anisotropies de fission induites par neutrons et par protons car cela apporte des informations sur le mécanisme de réaction du nucléon incident. En effet à haute énergie le nucléon incident n'est pas capturé dans le noyau cible, il le traverse en y déposant une partie de son impulsion et de son énergie, et en éjectant des nucléons. A une énergie donnée la collection des pré-fragments produits et fissionnant est donc indépendante de la nature du nucléon incident et on n'attend aucune différence dans l'anisotropie entre protons et neutrons. Au contraire à basse énergie un noyau composé est formé et l'anisotropie peut être différente car le noyau composé est différent. La transition entre ces deux régimes n'est pas bien connue, en particulier la zone en énergie où elle se produit.

La figure 10 montre une différence significative entre le résultat n_TOF et l'anisotropie mesurée en protons qui est plus faible.

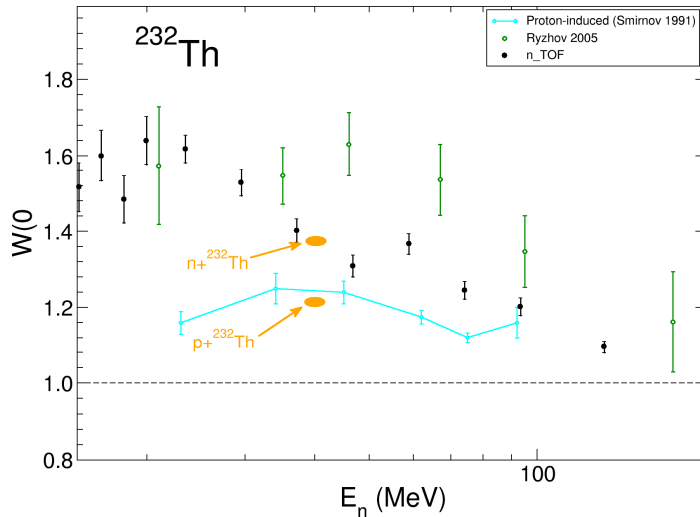


Figure 10 : comparaison des anisotropies induites par neutrons et par protons

Cet effet peut être expliqué théoriquement. Quand la fissilité du noyau fissionnant diminue, sa barrière de fission augmente et l'énergie thermique disponible au point-selle diminue, ainsi que sa température. Ceci a pour conséquence une diminution du paramètre K_0 et l'anisotropie augmente. La différence entre neutrons et protons peut ainsi s'interpréter comme une différence de fissilité, qui n'est possible que si le nucléon est capturé.

Ces considérations avaient amené Eismont à bâtir une systématique des anisotropies de fission en fonction de la fissilité du système composite. Cette systématique est illustrée dans la figure 11.

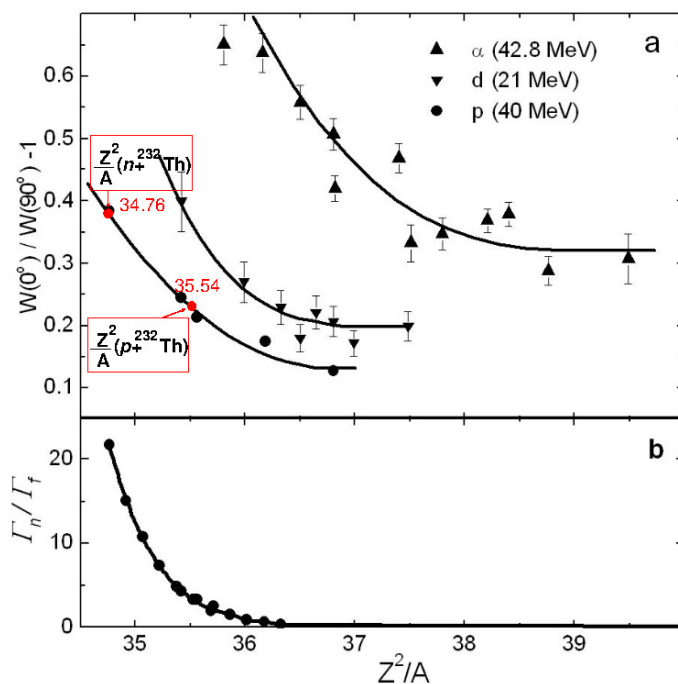


Figure 11 : systématique en fissilité de l'anisotropie de fission

Il est intéressant de voir si cette systématique permet de rendre compte quantitativement des anisotropies observées. Nous nous sommes basés sur la dépendance en protons incidents, les autres projectiles apportant des effets importants de moment orbital à cause de leur masse plus élevée. La systématique est applicable aux nucléons à 40 MeV. Nous avons reporté sur la courbe (figure 11) les points rouges correspondant à la fissilité des systèmes $n+^{232}\text{Th}$ et $p+^{232}\text{Th}$, ce qui permet d'en extraire des anisotropies déduites de la systématique. Ces valeurs sont reportées (en orange) dans le diagramme d'anisotropie de la figure 10. On voit que pour le cas des protons on tombe quasiment sur le résultat de Smirnov, ce qui n'est pas surprenant car celui-ci faisait partie intégrante de la systématique. Par ailleurs la prédiction pour $n+^{232}\text{Th}$ est tout à fait en accord avec notre mesure, alors que les données de Ryzhov sont largement en excès.

On peut tirer une conséquence de cette comparaison entre protons et neutrons incidents. L'accord avec la systématique en fissilité montre que le noyau fissionnant est lié au noyau composé résultant de l'absorption du nucléon. Cela signifie qu'à 40 MeV le nucléon est capturé avec une très grande probabilité par le noyau cible. Cela n'exclut pas la présence d'émission de prééquilibre, mais celle-ci s'effectue après capture du noyau incident et elle a des caractéristiques voisines dans les deux cas. Cette observation est en accord avec la systématique de transfert de moment linéaire où le transfert commence à s'écarter significativement du transfert total à partir de 30-40 MeV, indiquant que jusque là le nucléon incident est capturé.

Partie II

Le ^{237}Np est un isotope radioactif de longue période (2 Ma) produit en abondance dans nos centrales nucléaires. Son incinération est une option possible pour limiter son impact dans un stockage à long terme. Ceci implique une bonne connaissance de ses sections efficaces pour les neutrons, et plus spécifiquement de la section efficace de fission. Ceci a motivé plusieurs expériences qui ont été réalisées ces dernières années, et en particulier auprès de l'installation n_TOF au CERN.

Alors que la plupart des données antérieures sont tout à fait cohérentes entre elles (avec une incertitude de l'ordre de 3-4%), les valeurs mesurées à n_TOF, qui sont les dernières mesurées sur ^{237}Np , montrent un excès de plus de 6% par rapport aux résultats antérieurs sur toute la gamme en énergie au-dessus du seuil de fission, comme illustré dans la figure 12.

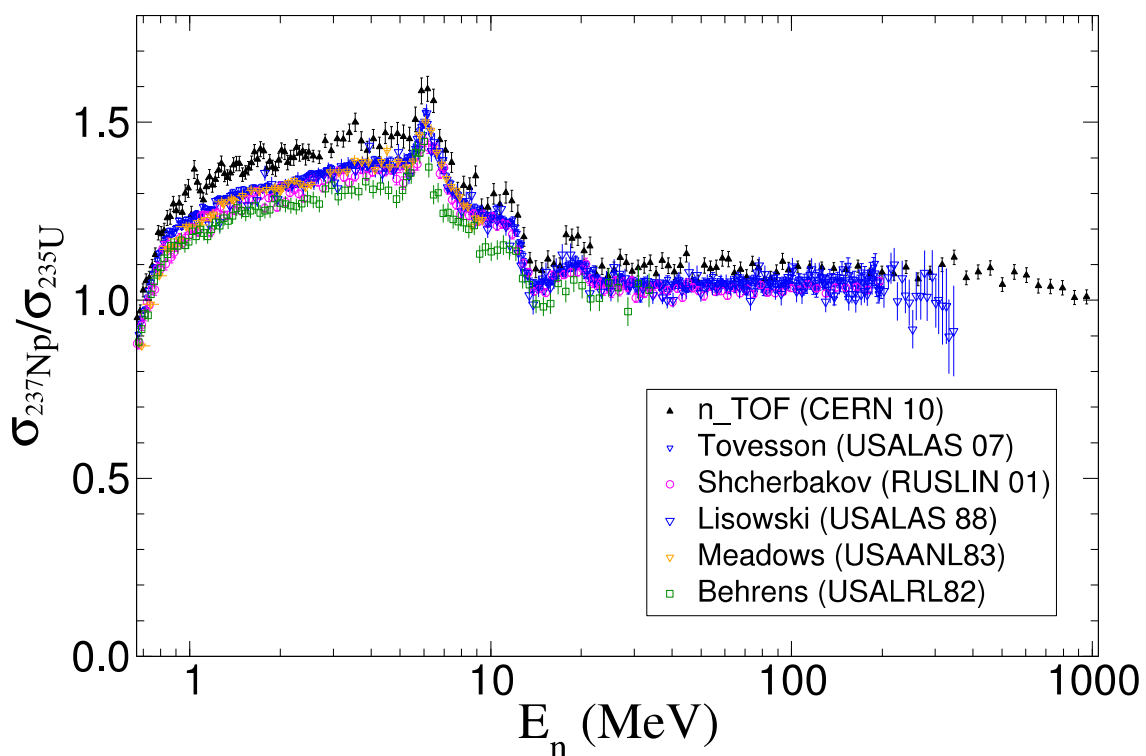


Figure 12 : rapport des sections efficaces de fission du ^{237}Np et ^{235}U

Dans la mesure où plusieurs des résultats antérieurs sont re-normalisés l'un par rapport à l'autre, la mesure n_TOF devrait être prise en considération sérieusement. Pour tester sa validité nous avons utilisé deux types de mesures intégrales.

La première est liée à une expérience de criticité menée à Los Alamos, qui a fait l'objet d'une description très détaillée, et qui a été promue en « benchmark » pour le test des données nucléaires.

Le système est constitué d'une sphère de 6 kg de ^{237}Np entouré de coquilles d'uranium hautement enrichi en ^{235}U pour atteindre la criticité en configuration compacte, comme schématisé par la figure 13.

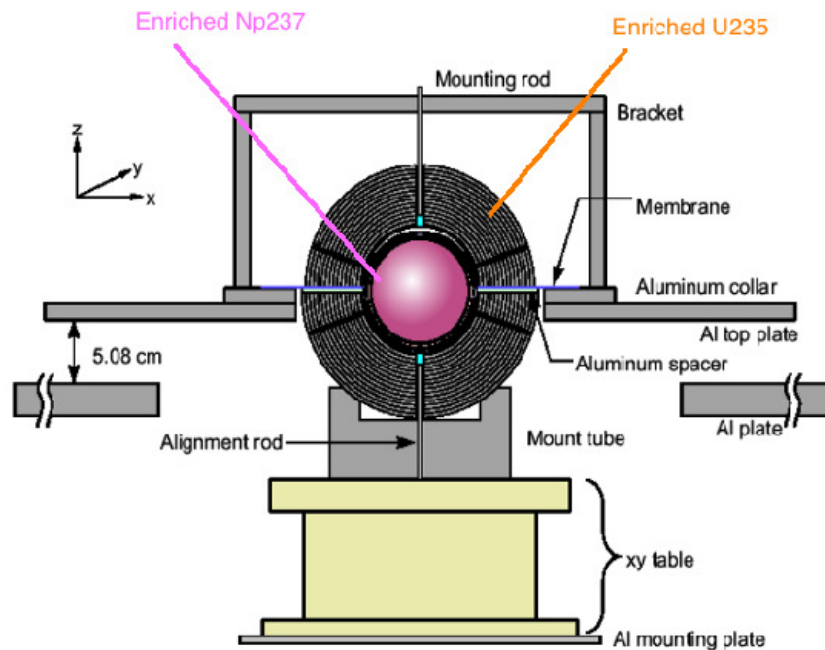


Figure 13 : massif critique en configuration compacte après rapprochement de la $\frac{1}{2}$ sphère inférieure et la boule de ^{237}Np avec la $\frac{1}{2}$ sphère supérieure

Nous avons simulé la propagation des neutrons en tenant compte de toutes les sections efficaces connues et répertoriées dans la bibliothèque évaluée ENDF/B-VII. Le facteur global de multiplication keff a ainsi été calculé à l'aide du code Monte Carlo MCNP et comparé à la valeur expérimentale. Un écart de -0.76% a été trouvé (pour une incertitude expérimentale de 0.36%), en accord avec des calculs effectués par d'autres auteurs auparavant.

Nous avons répété le calcul en remplaçant la section efficace de fission du ^{237}Np par celle mesurée à n_TOF. L'écart est alors réduit à +0.25%, donc légèrement en excès, mais inférieur à l'incertitude expérimentale.

Des auteurs avaient invoqué d'autres raisons pour expliquer l'écart qui avait été observé avec les valeurs standard de sections efficaces. Par exemple la section efficace inélastique dans ^{235}U . Nous avons testé cette hypothèse en modifiant de manière aléatoire les sections efficaces correspondant aux différents niveaux excités et en sélectionnant les configurations pour lesquelles la criticité d'une

boule d'uranium hautement enrichi en ^{235}U restait inchangée (la criticité d'une telle configuration est connue et mesurée avec précision). Les configurations de sections efficaces ainsi sélectionnées étaient appliquées au « benchmark » ^{237}Np . Nous avons pu ainsi quantifier la modification nécessaire pour obtenir un accord sans toucher à la section efficace de fission du ^{237}Np . Nous avons alors regardé si ces modifications des sections efficaces inélastiques étaient compatibles avec les mesures associées et notre conclusion est négative, invalidant ainsi l'hypothèse qui avait été avancée.

Nous avons testé également une augmentation possible de la multiplicité de neutrons dans la fission du ^{237}Np . Là encore l'augmentation nécessaire est contradictoire avec les mesures de multiplicité de neutrons.

L'autre manière de tester la section efficace de fission est de se référer aux expériences de mesures de taux de fissions de ^{237}Np dans des flux de neutrons dont le spectre en énergie est bien connu et même parfois aussi l'intensité. C'est le cas par exemple au centre d'un massif critique de ^{235}U où le spectre est bien connu par simulation, ou avec une source de ^{252}Cf qui produit des neutrons en nombre et spectre connu par fission spontanée.

Nous montrons que pour une comparaison valable les nombres d'atomes des cibles doivent être connus de manière absolue, par exemple par comptage d' α de radioactivité, et non à partir de sections efficaces de référence.

Les résultats de cette comparaison en utilisant la section efficace issue de n_TOF ne sont pas univoques, mais dans plusieurs cas l'information sur la méthode d'estimation de la quantité d'atomes dans la cible est absente. Dans deux cas, où toute l'information est disponible et où les cibles ont été étalonnées en valeur absolue, la section efficace n_TOF donne un bien meilleur accord avec la valeur mesurée pour le taux de fission.

Bien que cette étude ne puisse déboucher sur une conclusion définitive à cause de la sensibilité de la criticité à d'autres données nucléaires et à cause de la situation expérimentale confuse sur les taux de fission délivrant des résultats contradictoires, elle permet de considérer qu'une section efficace de fission de ^{237}Np plus élevée de 5% est plausible et devrait être testée sérieusement par des expériences complémentaires.