



# Spectres en énergie des neutrons prompts de fission : optimisation du dispositif expérimental et application à $^{235}\text{U}$

Alix Sardet

► **To cite this version:**

Alix Sardet. Spectres en énergie des neutrons prompts de fission : optimisation du dispositif expérimental et application à  $^{235}\text{U}$ . Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris-Saclay, 2015. Français. <NNT : 2015SACLS002>. <tel-01274998>

**HAL Id: tel-01274998**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01274998>**

Submitted on 16 Feb 2016

**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 DE DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY  
préparée à l'Université Paris-Sud

NNT : 2015SACLS002

ÉCOLE DOCTORALE N° 576  
PHENIICS

LABORATOIRE CEA, DAM, ÎLE-DE-FRANCE

Spécialité de doctorat : Structure et réactions nucléaires

par

**Melle Alix Sardet**

**Spectres en énergie des neutrons  
prompts de fission :  
optimisation du dispositif expérimental  
et application à l' $^{238}\text{U}$**

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 2 octobre 2015 :

Composition du jury :

Directeur de thèse :	M. Thierry	ETHVIGNOT	Chercheur (CEA, DAM)
Encadrant de thèse :	M. Cyril	VARIGNON	Chercheur (CEA, DAM, DIF)
Président du jury :	M. Laurent	TASSAN-GOT	Directeur de Recherche (IPN Orsay)
Rapporteurs :	M. Xavier	LEDOUX	Chercheur (CEA, GANIL)
	M. Stephan	OBERSTEDT	Chercheur (JRC-IRMM)
Examineur :	M. Philippe	DESSAGNE	Directeur de Recherche (IPHC)
Invité :	M. Olivier	LITAIZE	Chercheur (CEA, Cadarache)





# Remerciements

Après trois ans et demi, une page se tourne et une grande aventure s'achève. Mais comme chacun le sait, je n'aurais pas pu entamer ma grande quête du savoir sans des guides, mes amis et ma famille. Ces quelques mots sont pour moi l'occasion de remercier, de manière non-exhaustive malheureusement, toutes ces personnes qui ont fait de cette thèse une expérience inoubliable.

Mes premières pensées se tournent vers ceux qui ont suivi et encadré mes premiers pas dans le monde de la recherche. Je parle bien sûr de Thierry G., Cyril et Benoît.

Merci Thierry d'avoir supervisé avec attention le début de ces travaux, pour ton aide et tes conseils, puis pour avoir pris le temps de relire ce mémoire.

Un très grand merci également à Cyril pour avoir repris le flambeau et pour tout le temps qu'il y a consacré. Je crois que je ne suis pas prête d'oublier les longues discussions que nous avons eu sur la détection des neutrons, l'optimisation des dispositifs expérimentaux mais aussi les heures passées à monter/démonter la chambre à fission, mettre et enlever des tresses de masses... Merci aussi pour tous les échanges, autres que professionnels, que nous avons eu, pour ta bonne humeur, ta gentillesse et ton écoute mais surtout... merci pour le café! Je vais devoir trouver une autre solution maintenant pour être servie et toi, tu n'auras plus de thésarde pour t'apporter une tasse encore fumante!

Si Thierry et Cyril étaient officiellement mes encadrants, ils n'étaient pas seuls à remplir cette lourde tâche. Benoît a été une présence constante tout au long de ces trois ans et demi. Merci de ta grande patience et ton investissement, de m'avoir accompagnée tout le long du chemin, fait découvrir de nouveaux horizons (comme le GANIL) et d'avoir répondu à mes nombreuses questions.

Mes remerciements s'adressent également à M. Thierry Ethvignot qui, malgré l'éloignement géographique, a accepté de diriger ces recherches et relu avec attention le présent mémoire.

Je remercie l'ensemble des membres du jury, et plus particulièrement Xavier et Stephan, pour le temps qu'ils ont consacré à la lecture de ce document et pour leurs remarques constructives. Merci d'avoir fait le déplacement jusqu'à Gif-sur-Yvette en ce vendredi 2 octobre 2015, pour l'intérêt que vous avez porté à mon travail et pour les riches échanges que cela a suscité.

Je ne peux manquer de remercier Éric B. et l'ensemble du Service de Physique Nucléaire.

Merci Laurent V. d'avoir, après bien des déboires, signé ce fameux papier m'autorisant à mener ce travail de thèse au sein de cette équipe. J'ai beaucoup apprécié toutes nos discussions, nos échanges mais aussi ta disponibilité. Tu as pris le temps de m'offrir un point de vue extérieur sur mon travail et de me prodiguer tes nombreux conseils. En quatre mots comme en cent, merci pour ton amitié!

Merci à l'ensemble du laboratoire DNE de m'avoir accueillie, soutenue et conseillée pendant cette thèse. Je crois qu'il serait difficile de trouver un environnement plus adéquat pour réaliser un tel travail. Je pars avec le souvenir de personnes motivées, toujours prêtes à transmettre leurs connaissances et ce, dans une joie et une bonne humeur permanente. Merci Gilbert B. pour ta disponibilité, ton humour mais aussi pour tes bons gâteaux! Merci Julien pour ta patience, d'avoir répondu à toutes mes (nombreuses) questions sur la chambre à fission et pour m'avoir poussée à dépasser mes limites. Merci Audrey pour ton aide sur l'analyse et l'interprétation des données de spectres neutrons. Merci Norbert d'avoir usiné avec patience toutes les pièces nécessaires aux expériences, et plus particulièrement celles des chambres à fission. Merci également à Sylvain et Thomas B. pour nos nombreux échanges et pour m'avoir fait partager leurs connaissances.

Et que dire de la fine équipe du LAES! Sans Alain, Didier, Popeye, Jacques, Philippe A. et Sergio, les différentes campagnes de mesures n'auraient pas pu se dérouler avec autant de bonne humeur et de rires (et les bombardes n'auraient pas été déplacées!).

Si le travail est important, les pauses le sont également et elles donnent naissance à d'autres échanges. Merci à Pierre C. d'avoir été un peu mon « chapelier fou » en mettant de l'eau à chauffer tous les matins pour mon thé, à Jean-Paul E. qui m'a aidé à entretenir mon japonais mais aussi à Pascal M., Jean-Michel, Véronique, Isabelle, Sophie et Gilbert G. que je retrouvais toujours pour un concentré de bonne humeur au café de 10h. Merci à Gérard de m'avoir fait une petite place dans son bureau et d'avoir su me faire partager son expérience et son enthousiasme. Merci à Jacques, Audrey et Marc D. pour le trafic de bandes-dessinées. Merci à Dos, Noël, Guillaume, Marc V. et David R. pour des déjeuners pour le moins... atypiques. Merci à Pascal R., Benjamin et Helder de m'avoir enseigné l'art de dresser les canidés. Merci à Jean-Gabriel pour les nombreux moments de détente qu'il a su instaurer, à David G. pour ses conseils au bowling, à Gabby grâce à qui j'avais de la concurrence pour la dernière place. Je remercie aussi Julie, Éric P., Andreas O., Daniel, Laurent G., Vincent, Olivier R., Adeline, David D.-P., Lucie, Thomas G., Michel S., Nathalie, Philippe M., Bernard D., Stéphane, Pierre P., Alain P., Dominique D., Brigitte F., Michèle C., Marta, Camille, Raphaël, Cathy, Isabelle, Matthieu L., Jon W., Laurent T.-G. et tant d'autres pour leur aide, leur amitié et leur soutien.

Je n'oublie pas non plus mon cher camarade François (Ah, le pouvoir de la mafia Phelma!). J'ai été ravie de partager ces deux années avec toi. Merci d'avoir été une oreille attentive, d'avoir décoré mon bureau mais surtout, un très grand merci pour ton amitié.

Merci aussi à Suzanne qui m'a accompagnée à mes débuts dans le service et que je revois toujours avec autant de plaisir.

Mes remerciements vont à Elsa qui a su m'encourager à poursuivre dans cette voie, répondre à toutes mes interrogations et me guider lors de mes premiers pas dans le monde du neutron.

Mes amis ont également, de près ou de loin, veillé sur cette thèse. Je pense aux parisiens bien sûr mais aussi à ceux qui ont cherché à me fuir pour ne pas me subir sur la fin. Certains ont fui dans le Sud, d'autres à l'étranger et ne parlons pas de celui qui a été jusque dans les Terres Australes! Merci à tous d'avoir été là tout du long, merci à ceux qui ont fait le déplacement le jour J, à ceux qui auraient voulu mais n'ont pas pu... bref, à tous ceux qui ont eu une petite pensée pour moi.

Je ne peux conclure ces remerciements sans une pensée affectueuse pour ma famille. Ils m'ont accompagnée et encouragée, aidée (surtout pour l'organisation du pot de thèse!) et soutenue tout au long de mes (longues) années d'études. Je vous dis donc un grand « Merci! ».

# Table des matières

<b>Introduction</b> . . . . .	<b>15</b>
<b>A Fission nucléaire et émission de neutrons prompts par les fragments de fission</b> . . . . .	<b>19</b>
<b>I Fission nucléaire et émission des neutrons prompts</b> . . . . .	<b>21</b>
<b>1 Désexcitation du noyau composé et fission nucléaire</b> . . . . .	<b>22</b>
1.1 Réactions nucléaires induites par neutron et noyau composé . . . . .	22
1.2 Fission nucléaire induite par neutron . . . . .	24
<b>2 Neutrons prompts de fission</b> . . . . .	<b>26</b>
2.1 Sources de neutrons prompts . . . . .	26
2.2 Distribution angulaire et de vitesse des neutrons prompts . . . . .	26
<b>II Modèles</b> . . . . .	<b>29</b>
<b>1 Modèles phénoménologiques</b> . . . . .	<b>30</b>
1.1 Spectre de Maxwell . . . . .	30
1.2 Spectre de Watt . . . . .	30
<b>2 Modèle semi-empirique de Madland-Nix</b> . . . . .	<b>32</b>
2.1 Spectre d'évaporation des neutrons par le noyau composé . . . . .	32
2.2 Distribution en température des fragments de fission . . . . .	33
2.3 Spectre en énergie des neutrons prompts . . . . .	34

<b>3</b>	<b>Outils de simulation . . . . .</b>	<b>36</b>
3.1	Le code FIFRELIN . . . . .	36
3.2	Le code GEF . . . . .	37
<b>4</b>	<b>Les différents modèles appliqués au cas de la fission spontanée du <math>^{252}\text{Cf}</math> . . . . .</b>	<b>38</b>
<b>B</b>	<b>Outils expérimentaux . . . . .</b>	<b>43</b>
<b>I</b>	<b>Technique du temps de vol . . . . .</b>	<b>45</b>
1	Technique du temps de vol appliquée aux mesures de PFNS . . . . .	46
2	Deux méthodes pour la mesure des PFNS . . . . .	48
2.1	Technique de mesure avec une cible passive. . . . .	48
2.2	Technique de mesure avec une cible active . . . . .	49
<b>II</b>	<b>Chambres à fission. . . . .</b>	<b>53</b>
1	Principe de fonctionnement d'une chambre à fission. . . . .	54
1.1	Principe de fonctionnement d'une chambre d'ionisation . . . . .	54
1.1.1	Création de paires électron-ion . . . . .	55
1.1.2	Mouvement des particules chargées et charge induite. . . . .	55
1.2	Discrimination $\alpha$ -fission. . . . .	56
1.2.1	Principe de la discrimination $\alpha$ -fission . . . . .	56
1.2.2	Facteurs limitant la discrimination $\alpha$ -fission . . . . .	57
2	Signal électrique en sortie d'une chambre à fission . . . . .	59
2.1	Formation du signal électrique . . . . .	59
2.1.1	Vitesse de dérive des porteurs de charge . . . . .	59
2.1.2	Conversion de la charge induite en amplitude . . . . .	60
2.1.3	Les quatre composantes du signal électrique . . . . .	61

2.2	Réponse temporelle des chambres à fission . . . . .	62
2.3	Traitement du signal . . . . .	63
<b>3</b>	<b>Développement et étude de la réponse de nouvelles chambres à fission multi-plateaux. . . . .</b>	<b>66</b>
3.1	Développement de nouvelles chambres à fission . . . . .	67
3.2	Évaluation des performances des nouvelles chambres . . . . .	71
3.2.1	Temps de réponse et résolution temporelle des chambres à fission . . . . .	72
3.2.2	Mesure de la qualité de la discrimination $\alpha$ -fission .	74
3.2.3	Distorsions sur le spectre en énergie des neutrons prompts . . . . .	77
3.2.4	Synthèse des performances et axes d'amélioration. .	82
<b>III</b>	<b>Détecteurs de neutrons. . . . .</b>	<b>85</b>
<b>1</b>	<b>Généralités sur les scintillateurs. . . . .</b>	<b>86</b>
1.1	Principe de détection d'un neutron . . . . .	86
1.2	Réponse en lumière d'un scintillateur . . . . .	86
1.3	Efficacité de détection neutron d'un scintillateur. . . . .	88
<b>2</b>	<b>Scintillateurs inorganiques : verres au lithium. . . . .</b>	<b>89</b>
2.1	Principe de fonctionnement . . . . .	89
2.1.1	Mécanisme de scintillation. . . . .	89
2.1.2	Réactions parasites et discrimination neutron- $\gamma$ . . .	90
2.1.3	Méthode des verres au lithium . . . . .	91
2.2	Étude de la réponse aux neutrons des verres au lithium. . .	92
2.2.1	Dispositif expérimental. . . . .	92
2.2.2	Reconstruction du spectre temps de vol neutron . .	93
2.2.3	Efficacité intrinsèque de détection. . . . .	96

<b>3</b>	<b>Scintillateurs organiques . . . . .</b>	<b>97</b>
3.1	Généralités . . . . .	97
3.1.1	Mécanisme de scintillation . . . . .	99
3.1.2	Caractéristiques de l'émission lumineuse et discrimination neutron- $\gamma$ . . . . .	100
3.2	Optimisation de la discrimination neutron- $\gamma$ sur les scintillateurs organiques. . . . .	101
3.2.1	Utilisation d'un écran en plomb pour atténuer les $\gamma$ de basse énergie . . . . .	102
3.2.2	Optimisation des portes d'intégrations utilisées pour la discrimination neutron- $\gamma$ . . . . .	104
3.3	Comparaison des performances de scintillateurs liquides de type BC501A et de scintillateurs cristallins de type p-terphenyle . . . . .	107
3.3.1	Résolution en temps des scintillateurs . . . . .	107
3.3.2	Résolution en énergie. . . . .	109
3.3.3	Étalonnage en énergie des scintillateurs avec le code GRESP . . . . .	112
3.3.4	Étude de la réponse aux neutrons et courbe de réponse en lumière . . . . .	113
3.3.5	Comparaison entre scintillateurs liquides de type BC501A et scintillateurs cristallins de type p-terphenyle . . . . .	124
<b>IV</b>	<b>Système d'acquisition numérique FASTER . . . . .</b>	<b>127</b>
1	Généralités sur le système FASTER . . . . .	128
2	Fonctionnement du module QDC de FASTER . . . . .	130
3	Configuration de l'acquisition FASTER lors des mesures de PFNS . . . . .	131
<b>V</b>	<b>Production de flux de neutrons monocinétiques . . . . .</b>	<b>135</b>
1	Réactions de production de neutrons monoénergétiques . . . . .	136
2	Principe de fonctionnement des accélérateurs électrostatiques de type Van de Graaff. . . . .	138

<b>3</b>	<b>Présentation des installations utilisées . . . . .</b>	<b>140</b>
3.1	Installations produisant des neutrons en cinématique directe : Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF et Van de Graaff 7 MV du JRC-IRMM . . . . .	140
3.2	Installation produisant des neutrons en cinématique inverse : source LICORNE de l'IPN Orsay . . . . .	144

## **C Mesures de spectres en énergie des neutrons prompts de fission . . . . .149**

<b>I</b>	<b>De la mesure aux spectres en énergie des neutrons prompts de fission . . . . .</b>	<b>151</b>
<b>1</b>	<b>Dispositifs expérimentaux . . . . .</b>	<b>152</b>
1.1	Cas d'un flux de neutrons non directionnel . . . . .	152
1.1.1	Mesure sur l' <sup>235</sup> U auprès du Van de Graaff 7 MV du JRC-IRMM . . . . .	152
1.1.2	Mesures sur l' <sup>238</sup> U auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF . . . . .	154
1.2	Cas d'un flux de neutrons collimaté ou directionnel . . . . .	157
1.3	Synthèse des campagnes de mesure . . . . .	159
<b>2</b>	<b>Des données expérimentales aux spectres en énergie . . . . .</b>	<b>163</b>
2.1	Construction du spectre temps de vol neutrons . . . . .	163
2.1.1	Discrimination $\alpha$ -fission . . . . .	164
2.1.2	Discrimination neutron- $\gamma$ . . . . .	166
2.2	Du temps à l'énergie . . . . .	167
2.2.1	Étalonnage en temps . . . . .	167
2.2.2	Correction de bruit de fond . . . . .	167
2.2.3	Conversion en énergie . . . . .	169
2.2.4	Correction de l'efficacité de détection . . . . .	169

<b>3</b>	<b>Correction des distorsions par simulations avec MCNPX-PoliMi . . . . .</b>	<b>.172</b>
3.1	Bruit de fond corrélé dans le cas des mesures avec la source LICORNE . . . . .	.172
3.2	Distorsions liées aux bombardements dans le cas des mesures en cinématique directe . . . . .	.176
<b>II</b>	<b>Résultats et interprétations . . . . .</b>	<b>.181</b>
<b>1</b>	<b>PFNS de l'<sup>238</sup>U. . . . .</b>	<b>.182</b>
1.1	Résultats des campagnes de mesures . . . . .	.182
1.1.1	Mesures auprès de l'accélérateur 4 MV du CEA, DAM, DIF . . . . .	.182
1.1.2	Mesures auprès de la source LICORNE . . . . .	.188
1.2	Commentaires sur les résultats des codes GEF et FIFRELIN . . . . .	.191
1.3	Énergie moyenne des neutrons prompts . . . . .	.191
<b>2</b>	<b>PFNS de l'<sup>235</sup>U. . . . .</b>	<b>.197</b>
	<b>Conclusion et perspectives . . . . .</b>	<b>.203</b>
	<b>Annexe . . . . .</b>	<b>.209</b>
<b>A</b>	<b>Méthode pour l'estimation de mesures de spectres neutrons. . . . .</b>	<b>.211</b>
A.1	Estimation du taux de fission et du taux de neutrons prompts . . . . .	.211
A.2	Taux d'émission des neutrons prompts et modélisation de leur distribution en énergie . . . . .	.212
<b>B</b>	<b>Estimation de taux de comptage auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF . . . . .</b>	<b>.214</b>
B.1	Rappel sur le dispositif expérimental . . . . .	.214
B.2	Spectres expérimentaux attendus . . . . .	.215

<b>C</b>	<b>Estimation des taux de comptage auprès de l'installation NFS</b>	<b>.216</b>
C.1	Dispositif expérimental	.216
C.2	Flux de neutrons incidents	.216
C.3	Taux d'émission des neutrons prompts et spectres expérimentaux attendus	.217
<b>D</b>	<b>Estimation de taux de comptage sur la ligne EAR2 de nTOF</b>	<b>.219</b>
D.1	Flux disponibles sur l'installation nTOF	.219
D.1.1	Flux en EAR1	.219
D.1.2	Flux en EAR2	.220
D.2	Estimation du taux de comptage dans la chambre à fission	.220
D.2.1	Temps moyen entre deux interactions - masse critique	.220
D.2.2	Taux de fission réel	.222
D.2.3	Probabilité de deux événements fission - Taux de fission effectif	.222
D.3	Estimation de mesures de spectres neutrons	.225
	<b>Liste des figures</b>	<b>.236</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>.238</b>
	<b>Références</b>	<b>.245</b>



## Introduction

La fission nucléaire est l'une des principales sources de production d'électricité dans le monde. Bien qu'utilisée quotidiennement, elle reste en partie mal comprise de par la complexité des phénomènes mis en jeu.

Afin de parvenir à une meilleure compréhension de ce processus, de nouvelles données nucléaires, plus précises, sont nécessaires. Celles-ci permettront également l'amélioration des modèles prédictifs utilisés par les codes de simulation des applications nucléaires (réacteurs conventionnels et de nouvelle génération, applications de non-prolifération, etc.). Certaines données, comme la section efficace de fission ou encore le nombre moyen de neutrons émis ( $\bar{\nu}$ ), sont connus avec une très bonne précision. En revanche, d'autres observables clés, telles que le spectre en énergie des neutrons prompts de fission (PFNS<sup>(1)</sup>), sont bien moins connues. Ces derniers figurent sur la liste de requête prioritaire de l'AIEA (Agence Internationale de l'Énergie Atomique) [1] et font l'objet d'un programme international de recherche, mis en place en 2009 [2]. Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre de cette dynamique internationale visant à améliorer les données sur les spectres de neutrons de fission.

Peu de données relatives aux mesures de PFNS sont actuellement disponibles. Celles-ci sont généralement précises mais peuvent, dans certains cas, présenter des divergences significatives. Ainsi, selon le jeu de données considéré, le résultat du processus d'évaluation peut être fondamentalement différent, comme on peut le constater avec l'évolution de la librairie européenne de données nucléaires JEFF<sup>(2)</sup> entre 1992 (version 2.2) et 2009 (version 3.1) en figure 1.

Des désaccords entre les données expérimentales et les librairies peuvent être observés dans les domaines d'énergies du spectre des neutrons prompts inférieur à 1 MeV et supérieur à 8 MeV (cf. figure 1). Ces caractéristiques se retrouvent sur un certain nombre d'actinides tels l'<sup>235</sup>U, l'<sup>238</sup>U, le <sup>239</sup>Pu ou encore le <sup>237</sup>Np.

---

(1). Prompt Fission Neutron energy Spectra.

(2). Joint Evaluated Fission and Fusion File

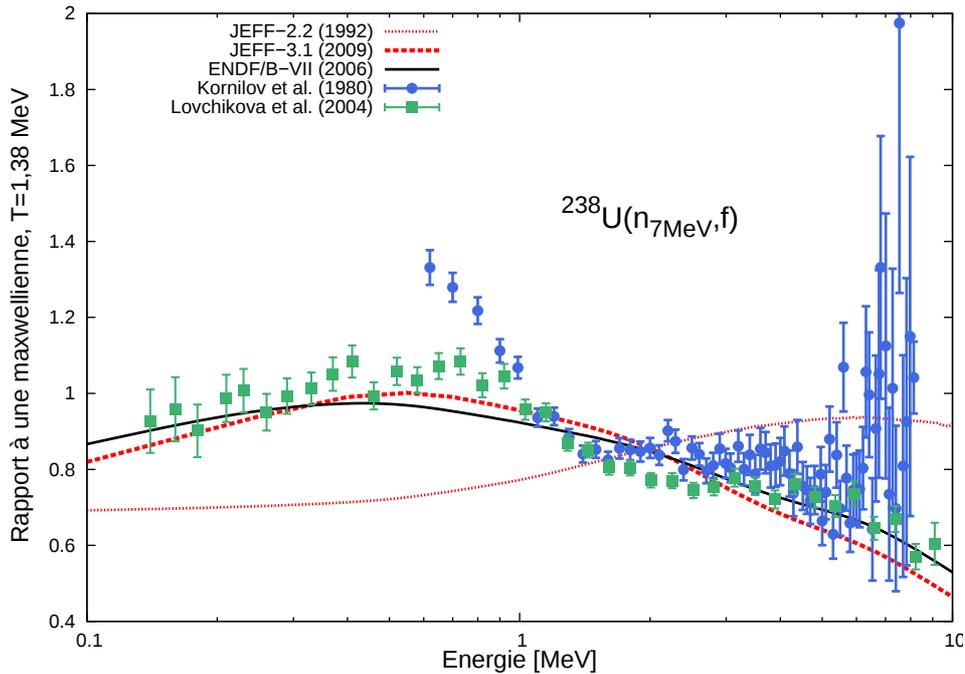


FIGURE 1 – PFNS pour la fission de l' $^{238}\text{U}$  induite par des neutrons de 7 MeV. Le spectre est ici représenté en rapport à une maxwellienne de température 1,38 MeV. Mesures et évaluations présentent des désaccords dans les zones de basse (<1 MeV) et de haute énergie (>6 MeV).

Ces désaccords entre les données et, a fortiori, entre les librairies sont d'autant plus problématiques que l'énergie des neutrons prompts est l'un des facteurs essentiels pour assurer la précision des calculs de criticité servant à la modélisation des cœurs de réacteurs nucléaires actuels, mais aussi de ceux des concepts innovants de la nouvelle génération. Selon le jeu de valeurs choisi, des variations du paramètre de criticité ( $k_{eff}$ ) de l'ordre de 300 pcm<sup>(3)</sup> sont observées (notamment sur les combustibles de type MOX<sup>(4)</sup>) [2].

Pour ces diverses raisons, l'AIEA recommande dans un rapport de 2009 [2] une évaluation précise des PFNS pour des énergies neutrons incidentes allant du thermique (25 meV) jusqu'à plusieurs centaines de MeV. La priorité est bien sûr donnée à l' $^{235,238}\text{U}$ , au  $^{239}\text{Pu}$ , mais aussi à l' $^{233}\text{U}$ , au  $^{232}\text{Th}$  ainsi qu'à certains actinides mineurs comme le  $^{237}\text{Np}$  ou encore l' $^{241}\text{Am}$ . Ces travaux ont vocation à permettre une meilleure compréhension du phénomène de fission et à améliorer la précision des bases de données nucléaires.

(3). pcm : pour cent mille

(4). MOX : Mixed Oxides. Combustible nucléaire constitué d'environ 8,5% de plutonium et 91,5% d'uranium appauvri

---

## Objectifs de la thèse

Ce travail a été consacré à l'optimisation d'un dispositif expérimental visant à mesurer les PFNS. Deux axes de développement principaux ont été retenus : (1) l'amélioration de la cible active utilisée pour détecter la fission et (2) l'optimisation de la détection des neutrons. Ces développements ont pour ambition de permettre la réalisation de mesures avec non seulement une faible erreur statistique (de l'ordre du pourcent) mais également une erreur systématique maîtrisée, ne dépassant pas 5%. Le dispositif ainsi optimisé a été utilisé pour réaliser de nouvelles mesures du spectre en énergie des neutrons prompts de fission de  $^{238}\text{U}$ .

Ce mémoire est divisé en trois parties, chacune subdivisée en plusieurs chapitres. La première partie, après quelques rappels sur la fission nucléaire, présente les caractéristiques de l'émission de neutrons prompts lors de ce processus. Quelques uns des modèles actuellement utilisés pour modéliser la distribution en énergie de ces neutrons sont ensuite introduits.

La seconde partie traite de la technique expérimentale utilisée mais également des résultats du développement de nouveaux détecteurs de type chambre d'ionisation, utilisés comme cible active de fission, ainsi que des études d'optimisation de la réponse des détecteurs neutrons, permettant d'abaisser le seuil de détection à environ 300 keV (au lieu de 500 keV) sur des scintillateurs organiques. Sont également présentés le système d'acquisition ainsi que les sources de neutrons utilisées, lors de ce travail de thèse, pour induire la fission.

Enfin, la dernière partie détaille la méthode utilisée pour analyser les données recueillies et présente les résultats des mesures de spectres en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission induite par neutrons de  $^{238}\text{U}$  et de  $^{235}\text{U}$ . Les résultats obtenus sont ensuite comparés aux différents modèles actuellement utilisés lors du processus d'évaluation.



## Partie A

# Fission nucléaire et émission de neutrons prompts par les fragments de fission



# Chapitre I

## Fission nucléaire et émission des neutrons prompts

La fission nucléaire est un processus au cours duquel un noyau atomique lourd se divise en au moins deux fragments de tailles variables. Ce phénomène s'accompagne d'une libération d'énergie d'environ 180-240 MeV. Entre 75 et 85% de cette énergie se retrouve sous forme d'énergie cinétique des fragments de fission. Le reste se répartit en émission de neutrons prompts (environ 10%) et de  $\gamma$ -prompts (environ 4%) par les fragments et sous forme de décroissances  $\beta^-$  et d'émission de neutrons retardés par les produits de fission (environ 8%).

Avant de nous intéresser aux caractéristiques de l'émission des neutrons prompts, nous reviendrons brièvement sur le phénomène de fission induite par neutrons.

# 1 Désexcitation du noyau composé et fission nucléaire

Entre 1934 et 1938, à Rome, Enrico Fermi étudie le bombardement de noyaux d'uranium par des neutrons, pensant obtenir des noyaux transuraniens. Ce n'est qu'en 1938 que Otto Hahn et Fritz Strassmann réalisent une identification chimique précise des produits de cette réaction, mettant en évidence le fait qu'un noyau d'uranium ainsi bombardé par des neutrons se scinde en deux noyaux, plus légers. Ce phénomène fut nommé « fission nucléaire » par Lise Meitner et son neveu Otto Frisch, en 1939.

Certains noyaux lourds ( $A > 230$ ), comme par exemple le  $^{252}\text{Cf}$ , peuvent fissionner sans apport d'énergie par une particule extérieure. Cette fission est qualifiée de « spontanée ». D'autres noyaux, comme l' $^{235}\text{U}$ , l' $^{238}\text{U}$  ou encore le  $^{239}\text{Pu}$ , ne peuvent fissionner qu'après avoir capturé une autre particule. On parle alors de fission « induite ». Par la suite, nous nous intéresserons essentiellement au processus de fission induite par neutron.

## 1.1 Réactions nucléaires induites par neutron et noyau composé

Considérons un neutron d'énergie cinétique  $E_n$  en interaction avec un noyau de masse  $A$  dont les nucléons sont répartis sur différentes orbites dans le puits de potentiel. Alors le neutron peut :

- être réfléchi par le potentiel du noyau  $A$ . Il conserve son énergie dans le référentiel du centre de masse et le noyau  $A$  reste dans son état fondamental. Ce processus est appelé « diffusion élastique potentielle » et survient essentiellement pour des énergies  $E_n > 20$  MeV.
- être capturé par le noyau  $A$  pour former le noyau  $A+1$ . Ce phénomène est le plus probable pour des énergies  $E_n < 20$  MeV.

C'est ce dernier processus qui va essentiellement nous intéresser. Le noyau  $A+1$  formé est dans un état excité. Si l'on note  $B_n$  l'énergie de liaison du neutron au noyau  $A+1$ , alors l'énergie d'excitation  $E^*$  du noyau  $A+1$  est donnée par  $E^* = E_n + B_n$ . Ce noyau a une durée de vie de l'ordre de  $10^{-15}$ s, durée assez longue à l'échelle nucléaire pour que l'énergie d'excitation se distribue sur les degrés de liberté, en prenant en compte les lois de conservation de l'énergie et de spin. Le noyau  $A+1$  est alors appelé noyau composé, selon le modèle présenté par N. Bohr en 1936 [3], et son mode de formation n'influence pas son mode de désexcitation. Cette dernière peut s'effectuer selon plusieurs processus :

- la diffusion élastique résonnante : ré-émission d'un neutron emportant toute l'énergie excédentaire ;
- la diffusion inélastique : ré-émission d'un neutron emportant une partie de l'énergie. Le noyau reste dans un état excité mais à un niveau moindre et reviendra au fondamental par émission de  $\gamma$  ;
- la capture radiative : émission d'un ou plusieurs  $\gamma$  ;
- **la fission** : si la barrière de fission du noyau  $A+1$  est notée  $B_f(A+1)$  alors, le phénomène de fission peut se produire lorsque  $E^* > B_f(A+1)$  ;
- d'autres réactions (plus rares) : émission de particules chargées ou de plusieurs neutrons.

Les probabilités relatives à ces divers processus sont données par leurs sections efficaces. Celles-ci dépendent de l'énergie de la particule incidente mais également de la nature de l'actinide A (cf. figure A.1).

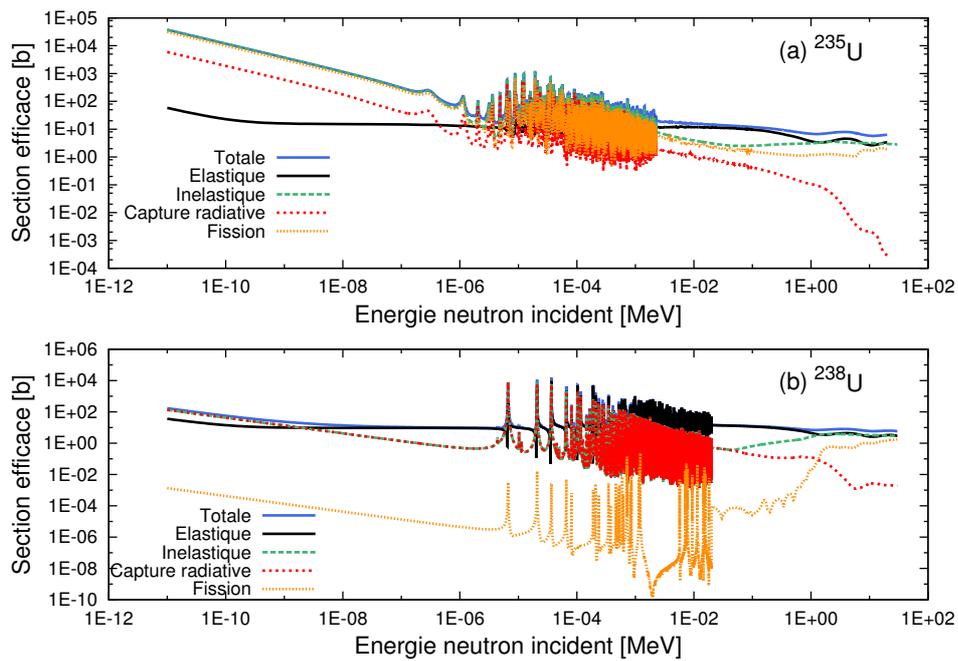


FIGURE A.1 – Sections efficaces en fonction de l'énergie du neutron incident de l' $^{235}\text{U}$  (a) et l' $^{238}\text{U}$  (b) issues de la librairie européenne JEFF-3.1.2.

## 1.2 Fission nucléaire induite par neutron

Lors de la désexcitation du noyau par fission, ce dernier se divise en au moins deux fragments. Ceux-ci, dans un état excité, vont alors émettre des neutrons et des  $\gamma$  jusqu'à rejoindre l'état fondamental (cf. figure A.2).

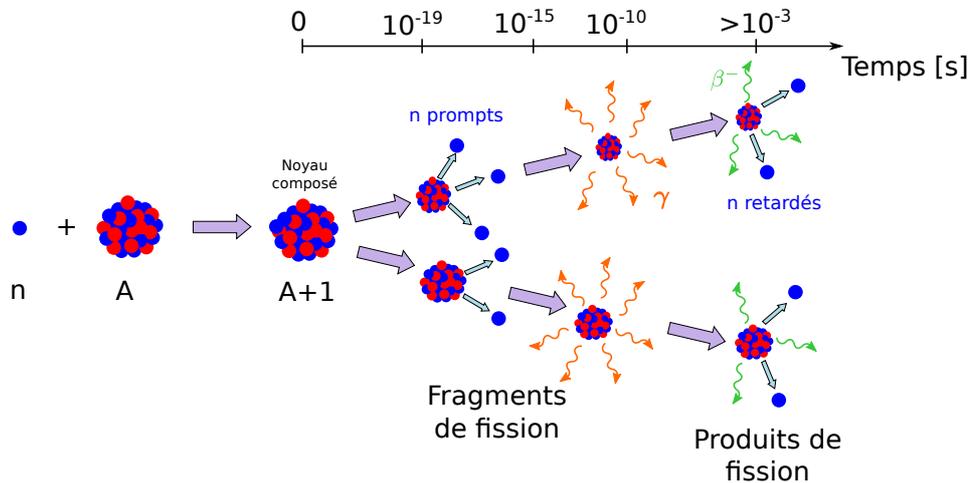


FIGURE A.2 – Chronologie du phénomène de fission induite par neutron. Les neutrons prompts sont émis par les fragments de fission à un temps de l'ordre de  $10^{-15}$  s après la formation du noyau composé.

Dans certains cas, l'énergie d'excitation du noyau est telle que le neutron le moins lié est éjecté du noyau : si l'énergie du neutron incident  $E_n$  est supérieure à l'énergie de liaison du neutron au noyau  $A+1$   $B_n$ , alors le noyau  $A+1$  libère un neutron. Si de plus,  $E^* - B_n > B_f(A)$ , c'est-à-dire si l'énergie d'excitation diminuée de l'énergie de liaison du neutron émis reste supérieure à la barrière de fission du noyau  $A$ , alors le noyau  $A$  (et non plus le noyau  $A+1$ ) peut fissionner (cf. figure A.3). Ce phénomène se nomme fission de seconde chance et se traduit par la condition suivante : il peut y avoir fission de seconde chance si  $E_n > B_f(A)$ . Pour les actinides, l'ouverture de cette fission de seconde chance se fait aux alentours de 6 MeV ( $\simeq B_n$ ) et se traduit par une brusque augmentation de la section efficace de fission.

Avec l'augmentation de l'énergie du neutron incident  $E_n$ , on observe l'ouverture de la  $n$ -ième chance de fission : le noyau composé émet  $(n-1)$  neutrons avant que le noyau  $(A+2-n)$  ne fissionne.

Lorsqu'un tel phénomène se produit, il y a plusieurs épisodes de libération des neutrons : l'évaporation de neutrons par le noyau  $A+1$  et la fission du noyau  $(A+2-n)$ . Les neutrons émis par le noyau  $A+1$  viennent donc s'ajouter à l'émission des neutrons prompts de fission.

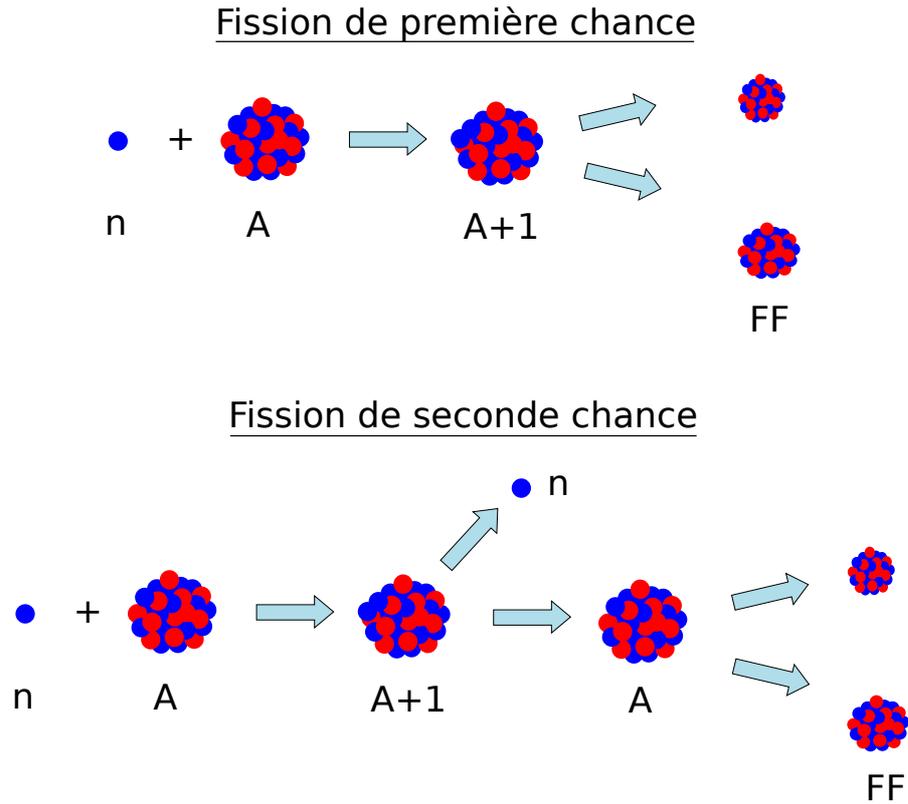


FIGURE A.3 – Principe des multi-chances de fission. Illustration pour les fissions de première et de seconde chance. Dans le cas d’une fission de seconde chance le noyau  $A+1$  émet un neutron puis le noyau  $A$  fissionne. La notation FF signifie fragments de fission.

La complexité de la fission tient à ce que selon l’actinide fissionnant et l’énergie du neutron incident, les distributions isotopiques des fragments de fission, le nombre moyen de neutrons émis, les spectres en énergie des neutrons prompts... varient. Des études doivent être menées au cas par cas pour chaque actinide et pour chaque énergie du neutron incident sur une gamme allant du thermique (25 meV) à quelques centaines de MeV.

## 2 Neutrons prompts de fission

Lors de la fission nucléaire, induite ou spontanée, des neutrons sont émis. Lorsque cette émission survient dans un temps très court (moins de quelques nanosecondes) après la scission du noyau initial, les neutrons sont qualifiés de prompts par opposition aux neutrons retardés, émis après désintégration  $\beta^-$  des produits de fission (cf. figure A.2). Dans cette partie, nous nous intéresserons dans un premier temps aux sources d'émission de ces neutrons avant de nous intéresser aux caractéristiques cinématiques de cette émission.

### 2.1 Sources de neutrons prompts

Lors du processus de fission, il existe trois épisodes de libération de neutrons : (1) l'émission par le noyau composé de neutrons de scission ou ternaires ; (2) une émission par les fragments durant leur phase d'accélération ; (3) et enfin une évaporation par les fragments de fission accélérés.

Les travaux ici présentés portent sur la fission induite par des neutrons de basse énergie ( $< 20$  MeV). Les neutrons prompts sont essentiellement émis par les fragments de fission complètement accélérés. Ces derniers atteignent 90% de leur vitesse maximale en environ  $5 \times 10^{-21}$  s. Les neutrons, eux, sont émis à des temps de l'ordre de  $10^{-15}$  s après la formation du noyau composé (cf. figure A.2). Dans le référentiel du laboratoire, leur énergie cinétique moyenne est d'environ 2 MeV pour une énergie d'émission la plus probable d'environ 700 keV. Ces valeurs varient peu dans la région des actinides [4].

### 2.2 Distribution angulaire et de vitesse des neutrons prompts

Des études ont été menées, dès les années 1960 [5], afin de déterminer les distributions angulaires et de vitesse des neutrons de fission. Les expériences alors menées ont permis d'établir que ces distributions sont fortement piquées selon l'axe de fission (ie : la direction des fragments de fission).

Ce phénomène est bien reproduit en supposant une **émission isotrope** des neutrons dans le **référentiel du centre de masse** par les fragments de fission complètement accélérés.

Lors du passage dans le **référentiel du laboratoire**, la vitesse des neutrons combinée à celle des fragments de fission donne des distributions angulaires et de vitesse **anisotrope**, piquées selon l'axe de fission. Ce phénomène est illustré de manière schématique en figure A.4.

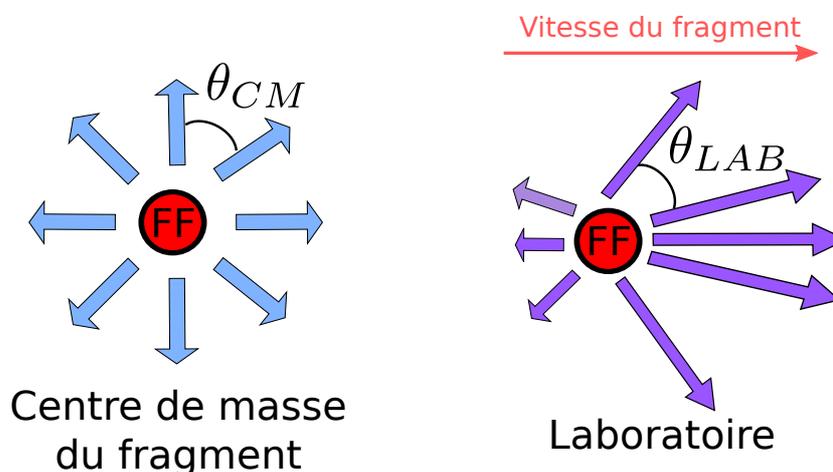


FIGURE A.4 – Distributions angulaire et de vitesse des neutrons prompts de fission. Passage du référentiel du centre de masse du fragment de fission (FF) au référentiel du laboratoire. L'émission isotrope des neutrons devient anisotrope selon l'axe de fission.

Néanmoins, dans l'hypothèse d'une émission isotrope par les fragments de fission accélérés, des déviations sont observées entre les résultats expérimentaux et les modèles. Ces dernières restent cependant faibles (environ 10% des neutrons) et peuvent s'expliquer par l'émission isotrope de neutrons de haute énergie par une source ne partageant pas le mouvement des fragments de fission.

Lors des travaux menés au cours de la thèse, l'axe de fission n'était pas fixé. La distribution angulaire des neutrons prompts dans le référentiel du laboratoire peut donc être considérée comme isotrope. En revanche, leur vitesse (et donc leur énergie) dans le référentiel du laboratoire dépend bien de l'axe de fission : la forme du spectre en énergie des neutrons prompts n'est pas la même dans le référentiel du centre de masse du fragment que dans le référentiel du laboratoire. Les spectres présentés dans la partie C de ce mémoire correspondent aux distributions dans ce dernier référentiel.

**En résumé...**

- La fission nucléaire est une division du noyau en au moins deux fragments de masses variables.
- Elle peut être induite ou spontanée.
- Dans la fission induite par des neutrons de basse énergie, les neutrons prompts sont principalement émis par les fragments de fission accélérés.
- Lorsque l'axe de fission est fixé, leur émission est :
  - isotrope dans le référentiel du centre de masse du fragment.
  - anisotrope dans le référentiel du laboratoire.
- L'axe de fission n'est pas fixé lors des mesures réalisées au cours de la thèse. Ainsi, seule la vitesse des neutrons, et donc la forme de leur distribution en énergie, varie entre le référentiel du centre de masse du fragment et celui du laboratoire.

# Chapitre II

## Modèles

Lors de la fission d'un noyau induite par des neutrons de basse énergie, les neutrons prompts sont principalement émis en vol par les fragments de fission accélérés. Leur distribution en énergie est difficile à déterminer, tant d'un point de vue expérimental que théorique, car elle dépend de nombreux facteurs : type de fragmentation, énergie d'excitation des fragments émis, vitesse du fragment émetteur et sa combinaison avec la vitesse du neutron émis, etc.

A ce jour, de nombreux modèles ont été développés, visant à donner une représentation la plus précise possible de ces distributions. Cette partie présente différents modèles permettant de décrire la distribution en énergie des neutrons prompts dans le référentiel du laboratoire. Ces modèles sont ceux utilisés lors de l'interprétation des données recueillies dans la partie C de ce document.

# 1 Modèles phénoménologiques

Les modèles phénoménologiques sont les plus couramment utilisés. Il s'agit de modèles dont les paramètres sont ajustés sur les spectres expérimentaux. Nous présentons ici les deux modèles empiriques utilisés pour représenter la distribution en énergie des neutrons prompts.

## 1.1 Spectre de Maxwell

La description la plus simple est celle d'une distribution de Maxwell [6], c'est-à-dire d'une simple loi de température. La température  $T$  est le seul paramètre ajustable du modèle.

Si l'on note  $E$  l'énergie cinétique du neutron prompt dans le référentiel du laboratoire, la probabilité  $P_{Maxwell}(E)$  d'émettre un neutron prompt dans l'intervalle  $[E; E+dE]$  est donnée par l'équation A.1, où la température  $T$  est exprimée en MeV. L'énergie cinétique moyenne des neutrons est donnée par  $\langle E_{Maxwell} \rangle = \frac{3}{2}T$ . L'énergie la plus probable  $E_p$  vaut  $\frac{T}{2}$ .

$$P_{Maxwell}(E) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} T^{-3/2} \sqrt{E} e^{-\frac{E}{T}} \quad (\text{A.1})$$

*Exemple de la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  :* En supposant une température nucléaire  $T=1,42$  MeV, l'énergie cinétique moyenne des neutrons émis est de  $\langle E \rangle = 2,13$  MeV et l'énergie la plus probable vaut  $E_p = 0,71$  MeV.

## 1.2 Spectre de Watt

Du fait de deux paramètres ajustables, un spectre de Watt [7] permet une représentation légèrement plus réaliste des données qu'une distribution maxwellienne.

En supposant un spectre d'évaporation des neutrons maxwellien dans le référentiel du centre de masse et en considérant que tous les fragments ont la même énergie cinétique par nucléon  $E_f$ , la distribution en énergie des neutrons prompts peut être modélisée, dans le référentiel du laboratoire, par l'équation A.2.  $T_e$  représente la température du fragment *après* évaporation d'un neutron.

$$P_{Watt}(E) = \frac{2T_e^{-\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi A}} e^{-\frac{AT_e}{4}} e^{-\frac{E}{T_e}} \text{sh}(\sqrt{AE}) \quad (\text{A.2})$$

où  $A = \frac{4E_f}{T_e^2}$ .

L'énergie moyenne est donnée par  $\langle E_{Watt} \rangle = \frac{3}{2}T_e + E_f$ .

Néanmoins, ce modèle repose sur l'hypothèse simpliste que tous les fragments ont la même énergie cinétique par nucléon. En réalité, cette énergie cinétique est fonction du système fissionnant et dépend de la masse du fragment considéré. Ainsi, dans le cas du  $^{252}\text{Cf}$ , l'énergie cinétique moyenne par nucléon du fragment léger est de l'ordre de

0,951 MeV contre 0,542 MeV pour le fragment lourd [8].

*Exemple de la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  :* En supposant une énergie moyenne par nucléon de 0,747 MeV et une température nucléaire  $T_e=1,42$  MeV, l'énergie cinétique moyenne des neutrons émis vaut  $\langle E_{Watt} \rangle = 2,87$  MeV.

Les modèles phénoménologiques sont ajustés au cas par cas pour chaque actinide et chaque énergie du neutron incident.

## 2 Modèle semi-empirique de Madland-Nix

D'autres modèles, qualifiés de semi-empiriques, sont plus riches en physique mais restent ajustés sur les spectres expérimentaux. Ce sont ces modèles qui sont couramment utilisés afin d'établir des données nucléaires évaluées.

La plupart d'entre eux s'appuient sur la description des spectres en énergie des neutrons prompts établie par David Madland et J. Rayford Nix [9] au Los Alamos National Laboratory en 1979. Les points principaux de ce modèle, dit de « Madland-Nix », sont décrits dans les paragraphes suivants.

### 2.1 Spectre d'évaporation des neutrons par le noyau composé

Le fondement du modèle de Madland-Nix est le spectre d'évaporation des neutrons par un noyau d'énergie d'excitation résiduelle  $T$  (énergie après évaporation d'un neutron aussi appelée température nucléaire). Un tel spectre a été décrit par Weisskopf en 1937 [10] (cf. équation A.3). Il dépend de l'énergie des neutrons dans le référentiel du centre de masse  $\varepsilon$ , de la probabilité d'émission d'un neutron par le noyau composé (donnée par la section efficace du processus inverse de formation du noyau composé  $\sigma_c$ ) et d'une constante de normalisation  $c(T)$ .

$$\phi(\varepsilon, T) = c(T)\sigma_c(\varepsilon)\varepsilon e^{-\frac{\varepsilon}{T}} \quad (\text{A.3})$$

Si la section efficace  $\sigma_c$  est considérée constante, le paramètre  $c(T)$  vaut alors  $\frac{1}{\sigma_c T^2}$ . Dans le cas contraire,  $c(T)$  s'écrit :  $c(T) = \frac{1}{\int_0^\infty \sigma_c(\varepsilon')\varepsilon' e^{-\frac{\varepsilon'}{T}} d\varepsilon'}$  et doit être calculé numériquement.

Le terme en exponentielle provient d'une description statistique de la structure du noyau émetteur et de celle du noyau fils. Cette approche n'est valide que lorsque la densité de niveau du système après émission d'un neutron est grande. Pour des noyaux lourds ( $A > 100$ ), cette condition est satisfaite lorsque l'énergie d'excitation initiale  $E^*$  du noyau composé diminuée de l'énergie de liaison d'un neutron est supérieure à 3 MeV, soit  $E^* - B_n > 3 \text{ MeV}$  [10]. Dans le cadre de la fission, les fragments de fission constituent les noyaux émetteurs. Si l'approche de Weisskopf est justifiée pour la description de l'émission des premiers neutrons ( $E^* \geq 10\text{-}20 \text{ MeV}$ ), elle peut être mise en défaut pour l'émission des derniers neutrons ( $E^* \approx B_n + \text{quelques MeV}$ ).

Ainsi qu'indiqué plus haut, la température  $T$  représente ici l'énergie résiduelle du noyau *après* émission d'un neutron et diffère de l'énergie d'excitation du noyau *avant* émission. En effet, plus le neutron, du fait de son émission, évacue une part importante de l'énergie d'excitation du noyau composé, plus l'énergie résiduelle de ce dernier est faible.

La probabilité d'émission d'un neutron  $\phi(\varepsilon)$  augmente avec  $\sigma_c$  (augmentation de la probabilité de perdre un neutron) et avec  $T$  (après émission d'un neutron, l'énergie d'excitation résiduelle reste grande, le noyau composé est donc à même de réémettre un neutron).

## 2.2 Distribution en température des fragments de fission

Ainsi que nous venons de le voir, le spectre d'évaporation des neutrons dépend de la température résiduelle des fragments de fission. Or, celle-ci n'est pas identique pour l'ensemble des fragments. Afin de représenter correctement le spectre en énergie des neutrons prompts, il faut intégrer le spectre d'évaporation déterminé par Weisskopf sur la distribution en température des fragments de fission  $P(T)$ .

Cette dernière n'est malheureusement pas connue, contrairement à la distribution en énergie cinétique des fragments de fission déterminée par Terrel en 1958 [6]. Cependant, comme nous allons le voir par la suite, il est possible de convertir cette distribution en énergie cinétique en une distribution de température. Pour cela, le modèle du gaz de Fermi, qui relie la température  $T$  à l'énergie d'excitation moyenne des fragments lourd et léger  $\langle E^* \rangle$ , est utilisé.

### Énergie d'excitation moyenne des fragments de fission

Initialement, la distribution en énergie d'excitation  $E^*$  des fragments de fission est gaussienne et sa valeur moyenne vaut :

$$\langle E^* \rangle = \langle E_r \rangle + B_n + E_n - \langle TKE \rangle \quad (\text{A.4})$$

Dans l'équation A.4,  $\langle E_r \rangle$  représente l'énergie moyenne relâchée.  $E_r$  correspond à la différence entre la masse de l'état fondamental du noyau fissionnant et des masses des fragments de fission dans leur état fondamental. Cette énergie est moyennée en calculant l'intégrale du produit de ces énergies avec les distributions en charge et en masse des fragments de fission.

$B_n$  et  $E_n$  correspondent respectivement à l'énergie de liaison et à l'énergie cinétique du neutron incident. Ces paramètres valent zéro dans le cas de la fission spontanée. Autrement, ils sont extraits des données expérimentales ou calculés à partir du modèle de la goutte liquide.

$\langle TKE \rangle$  renvoie à l'énergie cinétique moyenne des fragments de fission. Lorsqu'elle n'a pas été mesurée, elle peut être calculée suivant :

$$\langle TKE \rangle = c_1 \frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}} + c_2 \quad (\text{A.5})$$

En effet, l'énergie cinétique des fragments de fission résulte de la répulsion coulombienne entre les noyaux. Elle est donc proportionnelle à  $Z^2$  et inversement proportionnelle à la distance séparant les deux fragments, ici approximée par le rayon du noyau ( $Z, A$ ) fissionnant selon la formule  $R = r_0 A^{\frac{1}{3}}$ , où  $r_0$  représente le « rayon » d'un neutron ou d'un proton. Les coefficients  $c_1$  et  $c_2$  sont ajustés par la méthode des moindres carrés sur les données expérimentales.

### De la distribution en énergie cinétique à la distribution en température

La distribution en température des fragments de fission  $P(T)$  peut être obtenue en utilisant le modèle du gaz de Fermi qui relie l'énergie d'excitation des fragments  $E^*$  à la température  $T$  selon  $E^* = aT^2$  avec  $a$  le paramètre de densité de niveaux. Terrel [6] remarque qu'en approximant  $P(T)$  par la distribution triangulaire :

$$P(T) = \begin{cases} 2\frac{T}{T_m^2} & \text{si } T \leq T_m \\ 0 & \text{si } T > T_m \end{cases} \quad (\text{A.6})$$

alors la température maximale  $T_m$  est reliée à l'énergie d'excitation initiale moyenne des fragments  $\langle E^* \rangle$  suivant :

$$T_m = \sqrt{\frac{\langle E^* \rangle}{a}} \quad (\text{A.7})$$

avec  $a = \frac{A}{C}$  où  $C$  est une constante réelle ajustable, proche de 11 MeV.

Cette équation traduit le fait que plus l'énergie moyenne d'excitation des fragments avant évaporation d'un neutron est grande, plus l'énergie résiduelle d'excitation maximale est grande. En revanche, la densité de niveau est proportionnelle à l'énergie cinétique des fragments et donc à leur énergie d'excitation (cf. équation A.4).

## 2.3 Spectre en énergie des neutrons prompts

### Calcul du spectre dans le référentiel du laboratoire

Le spectre en énergie des neutrons prompts dans le référentiel du centre de masse du fragment en mouvement est alors obtenu en intégrant l'équation A.3 sur la distribution en température résiduelle donnée par l'équation A.6, soit :

$$\varphi(\varepsilon) = \int_0^\infty \phi(\varepsilon, T)P(T)dT \quad (\text{A.8})$$

L'énergie moyenne dans le centre de masse des neutrons vaut alors  $\langle \varepsilon \rangle = \frac{4}{3}T_m$ .

Ce spectre est ensuite transposé dans le référentiel du laboratoire à l'aide de la relation A.9 [6], en supposant les neutrons émis isotropiquement par les fragments de fission ayant une énergie moyenne par nucléon  $E_f$ .

$$N(E, E_f) = \int_{(\sqrt{E}-\sqrt{E_f})^2}^{(\sqrt{E}+\sqrt{E_f})^2} \frac{\varphi(\varepsilon)}{4\sqrt{E_f\varepsilon}} d\varepsilon \quad (\text{A.9})$$

avec  $N(E, E_f)$  le spectre en énergie des neutrons prompts dans le référentiel du laboratoire.

En combinant les équations A.3, A.6, A.8 et A.9, le spectre en énergie des neutrons prompts de fission dans le laboratoire peut alors être décrit par :

$$N(E, E_f, \sigma_c) = \frac{1}{2T_m^2\sqrt{E_f}} \int_{(\sqrt{E}-\sqrt{E_f})^2}^{(\sqrt{E}+\sqrt{E_f})^2} \sqrt{\varepsilon}\sigma_c(\varepsilon) \left[ \int_0^{T_m} c(T)T e^{-\frac{\varepsilon}{T}} \right] d\varepsilon \quad (\text{A.10})$$

en rappelant que  $T_m$  correspond à la température maximale du fragment et vaut  $\sqrt{\frac{\langle E^* \rangle}{a}}$ ,  $E_f$  est l'énergie moyenne par nucléon des fragments,  $\sigma_c$  la section efficace du processus inverse de formation du noyau composé et  $c(T)$  une constante de normalisation.

### Prise en compte des différentes températures pour les fragments

Ainsi qu'évoqué au paragraphe 1.2, l'énergie cinétique des fragments par nucléon  $E_f$  dépend de l'actinide fissionnant et de la masse du fragment considéré. Cela doit être pris en compte lors de la transformation dans le référentiel du laboratoire.

Le modèle de Madland-Nix suppose que le nombre de neutrons prompts émis par chaque fragment est approximativement le même. Alors  $N(E)$ , le spectre en énergie des neutrons prompts dans le référentiel du laboratoire, est donné par :

$$N(E) = \frac{1}{2} [N(E, E_f^L, \sigma_c^L) + N(E, E_f^H, \sigma_c^H)] \quad (\text{A.11})$$

où les indices L et H réfèrent respectivement au fragment léger (*light*) et au fragment lourd (*heavy*).

La détermination de l'énergie cinétique moyenne par nucléon de chaque fragment se fait au prorata de leurs masses. En effet, le fragment léger emporte plus d'énergie cinétique en raison de la conservation de l'impulsion dans le centre de masse. Cela se traduit par :

$$\langle E_f^L \rangle = \frac{\langle A_H \rangle \langle TKE \rangle}{\langle A_L \rangle A} \quad \text{et} \quad \langle E_f^H \rangle = \frac{\langle A_L \rangle \langle TKE \rangle}{\langle A_H \rangle A} \quad (\text{A.12})$$

$\langle A_H \rangle$  et  $\langle A_L \rangle$  correspondent aux nombres de masses moyens entiers des fragments lourd et léger.

L'énergie moyenne des neutrons dans le référentiel du laboratoire est alors donnée par :

$$\langle E \rangle = \frac{1}{2} [E_f^L + E_f^H] + \frac{4}{3} T_m \quad (\text{A.13})$$

### Variantes du modèle de Madland-Nix

Il existe de nombreux raffinements de ce modèle. Nous citerons principalement :

- le *modèle de Madland-Nix généralisé* [11] : prise en compte des distributions en masse, charge et énergie cinétique des fragments de fission.  
Une version améliorée de ce modèle, le *modèle « point-by-point »*, a été développée par Annabella Tudora [12].
- le *modèle de Madland-Nix multimodal* : modèle prenant en compte les différents modes de fission.

### 3 Outils de simulation

Les modèles évoqués précédemment sont ajustés au cas par cas sur les spectres expérimentaux. Ainsi, lorsque peu de données sont disponibles ou lorsque celles-ci sont peu fiables, les réponses obtenues peuvent être erronées. De nouveaux outils de modélisation utilisant des méthodes de simulation sont actuellement développés [13, 14, 15, 16] afin de répondre à ce problème.

Dans cette partie, nous évoquerons principalement les codes GEF et FIFRELIN qui seront utilisés par la suite (cf. partie C).

#### 3.1 Le code FIFRELIN : FISSION FRAGMENT EVAPORATION LEADING TO AN INVESTIGATION OF NUCLEAR DATA

FIFRELIN [14] est un code de simulation Monte Carlo développé au CEA, Cadarache.

Ce code permet de modéliser la désexcitation des fragments de fission après accélération coulombienne. Leurs distributions en masse et en énergie cinétique sont échantillonnées à partir des données expérimentales. La charge nucléaire  $Z$  est, quant à elle, échantillonnée sur une distribution gaussienne corrigée des effets de parité protons et neutrons.

Sont également échantillonnés le spin et la parité des fragments. L'énergie d'excitation intrinsèque de ces derniers est traitée dans le cadre du modèle du gaz de Fermi (cf. paragraphe 2.2) : le noyau est considéré comme un gaz de nucléons sans interaction. L'énergie d'excitation intrinsèque des fragments est alors calculée selon  $E_{\text{int}} = aT^2$ . Le paramètre de densité de niveaux  $a$  est déterminé en utilisant le modèle d'Ignatyuk [17]. Le partage de cette énergie d'excitation entre les deux fragments est réalisé selon une loi déterminant l'évolution des températures des noyaux lourd et léger en fonction de la masse du noyau lourd.

L'émission de neutrons prompts par ces fragments est modélisée soit à l'aide d'une distribution de Weisskopf, en prenant en compte ou non la section efficace du processus inverse de formation du noyau composé (cf. paragraphe 2.1), soit selon le formalisme d'Hauser-Feshbach. Dans le premier cas, les probabilités de transitions sont calculées à partir de modèles de fonction de force et de densités de niveaux. Ce modèle ne permet pas de prendre en compte la dépendance en moment angulaire total avant et après émission d'un neutron. A l'inverse, le mode Hauser-Feshbach utilise des coefficients de transmission, déterminés dans le cadre du modèle optique. Ces coefficients sont tabulés sur une grille en  $(l, j, E_n)$  (soit : moment orbital, moment angulaire total et énergie du neutron). La dépendance en moment angulaire total est donc prise en compte lors du calcul.

L'énergie des neutrons ainsi échantillonnée dans le centre de masse est ensuite transposée dans le référentiel du laboratoire en utilisant des relations de cinématique tenant compte du recul des fragments de fission.

Lors d'une simulation avec un spectre de Weisskopf, l'évaporation de neutrons s'achève lorsque l'énergie d'excitation du fragment atteint une limite basse. Les fragments de fission sont des noyaux en rotation. La limite en-deçà de laquelle l'évaporation de neutrons par le fragment cesse correspond à la somme de son énergie de rotation et de l'énergie de liaison du neutron. Les  $\gamma$  ne sont évaporés qu'une fois cette évaporation neutron achevée. On parle de calcul « non couplé ».

A l'inverse, lors de calculs en mode Hauser-Feschbah, la compétition neutron- $\gamma$  est explicitement prise en compte dès le début de la cascade. On parle donc de calcul « couplé ».

## 3.2 Le code GEF : GEneral description of Fission observables

Le code GEF [16] propose une modélisation statistique de la désexcitation des fragments de fission.

La description de la section efficace inverse d'absorption du noyau composé est réalisée à l'aide de la méthode de calcul Monte Carlo présentée par Dostrovsky [18]. Pour de faibles énergies d'excitation des fragments de fission, la densité de niveaux est modélisée en utilisant la description de température constante proposée par von Egidy et Bucurescu [19]. Pour des énergies plus importantes, le modèle de gaz de Fermi, tel que paramétré par Ignatyuk [17] est utilisé. Lorsque l'énergie d'excitation est supérieure à l'énergie de liaison du neutron, la compétition neutrons- $\gamma$  est prise en compte.

La transformation des énergies neutrons dans le référentiel du laboratoire est réalisée en calculant numériquement la trajectoire des fragments lors de la phase d'accélération suivant la scission.

La puissance du code GEF tient à ce qu'un seul jeu de paramètres permet de modéliser de manière consistante l'ensemble des systèmes fissionnants : les calculs sont réalisés à partir de formules analytiques s'appuyant sur les propriétés des fragments de fission et sur un certain nombre de systèmes fissionnants. Les distributions en masses et les observables neutron sont globalement bien reproduites avec ce seul jeu de paramètres.

## 4 Les différents modèles appliqués au cas de la fission spontanée du $^{252}\text{Cf}$

La figure A.5 présente la comparaison entre l'évaluation, réalisée en 1989 par W. Mannhart [20], du spectre en énergie des neutrons émis lors de fission du  $^{252}\text{Cf}$  avec les différents modèles présentés dans ce chapitre. Cette évaluation est un standard recommandé par l'AIEA. A ce titre, elle sera retenue comme le spectre de référence du  $^{252}\text{Cf}$  lors des analyses de données présentées dans les parties suivantes de ce mémoire.

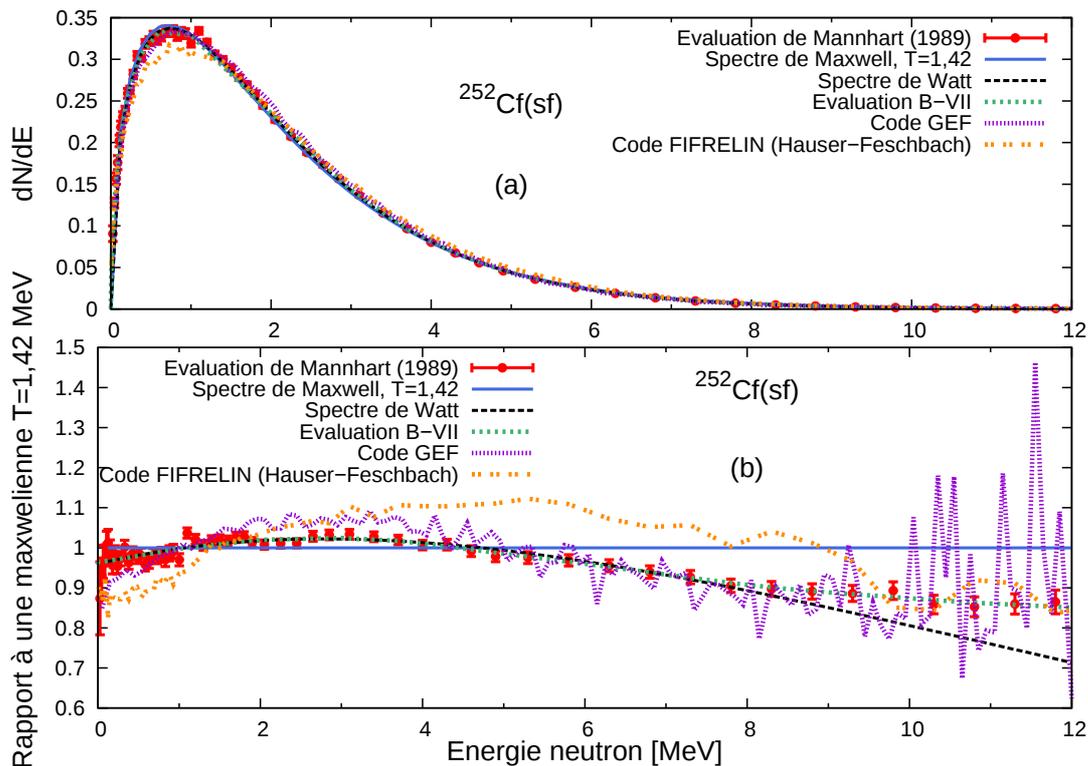


FIGURE A.5 – Fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  : représentation des spectres obtenus en utilisant les différents modèles présentés dans ce chapitre et comparaison à l'évaluation de Mannhart [20].

La partie (a) de cette figure représente la distribution de l'énergie des neutrons prompts en terme de probabilité. Afin de mieux appréhender les différences entre les différents modèles, ceux-ci sont représentés en rapport à une distribution maxwellienne de température  $T = 1,42$  MeV sur la partie (b) de la figure.

Alors que la fission du  $^{252}\text{Cf}$  est l'un des standards sur lesquels les différents modèles sont ajustés, ceux-ci ne reproduisent pas parfaitement le résultat de l'évaluation de Mannhart. Ce comportement est attendu des modèles phénoménologiques (Maxwell et Watt) qui comportent peu de physique et présentent peu de paramètres ajustables. En revanche, des désaccords sont également visibles avec des modèles plus élaborés (modèle de Madland-Nix utilisé pour l'évaluation B-VII, codes de simulations GEF et FIFRELIN). Par ailleurs, ces modèles présentent trois prédictions différentes de la distribution en énergie des neutrons prompts de fission du  $^{252}\text{Cf}$ .

Cette dépendance du spectre en énergie des neutrons prompts au modèle utilisé se retrouve sur la plupart des actinides (majeurs et mineurs). Il est donc essentiel de réaliser de nouvelles mesures qui permettront de mieux comprendre le phénomène de fission mais également de contraindre ces différents modèles. A cet effet, un programme international sur les spectres a été mis en place par l'AIEA [2]. Dans la seconde partie de ce document, nous présentons la technique et les outils expérimentaux utilisés, ainsi que les améliorations apportées à ces derniers afin de réaliser des mesures précises.

### En résumé...

- La description de la distribution en énergie des neutrons prompts de fission est difficile à réaliser de manière purement théorique.
- Les différents modèles utilisés sont ajustés sur les données expérimentales :
  - Les modèles phénoménologiques sont ajustés pour chaque actinide et chaque énergie du neutron incident.
  - Les modèles semi-empiriques incorporent plus de physique mais restent ajustés actinide par actinide. Ils sont utilisés lors de l'évaluation des données nucléaires.
- De nouveaux outils de modélisations, utilisant des méthodes de calculs statistiques, sont actuellement en cours de développement.

 **Les points clés de la partie A :**

- Dans la fission de basse énergie, les neutrons prompts sont principalement (90%) émis par les fragments de fission accélérés.
- L'émission des neutrons par les fragments de fission est :
  - isotrope dans le référentiel du centre de masse du fragment.
  - anisotrope dans le référentiel du laboratoire (composition de la vitesse du neutron avec celle du fragment émetteur).
- Les distributions en énergie ne sont pas parfaitement reproduites par des modèles phénoménologiques.
- Des modèles plus complexes, car incorporant plus de physique, sont utilisés pour l'évaluation des données nucléaires. Ces modèles n'en restent pas moins ajustées sur les données expérimentales.



## Partie B

# Outils expérimentaux



# Chapitre I

## Technique du temps de vol

Le neutron étant une particule non chargée, sa détection est chose peu aisée [21]. La technique la plus communément utilisée est celle du *temps de vol*. Dans ce chapitre nous présentons cette technique et ses avantages avant de nous intéresser aux différentes façons dont elle peut être mise en œuvre pour la mesure de PFNS.

# 1 Technique du temps de vol appliquée aux mesures de PFNS

Une cible d'actinide, dont on souhaite étudier la fission, est placée dans un flux de neutrons produit par un accélérateur de particules (mesures microscopiques [22, 23, 24, 25, 26]) ou un réacteur nucléaire expérimental (mesures intégrales [27]). Des détecteurs de neutrons rapides sont disposés autour de la cible. La détermination de l'énergie des neutrons prompts émis lors du processus de fission est réalisée en mesurant le temps de parcours  $\Delta t$  du neutron sur la distance  $L$  séparant son point de création (i.e. la cible d'actinide) et son point de détection (cf. figure B.1).

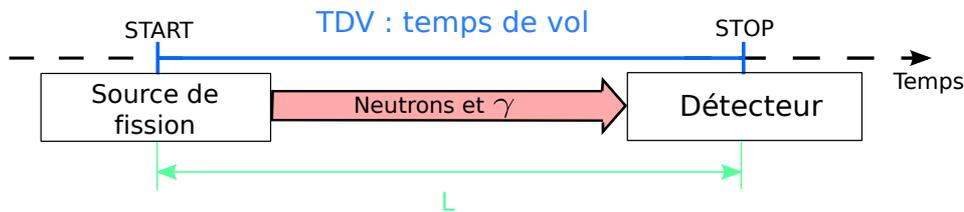


FIGURE B.1 – Schéma de principe de la technique du temps de vol. On mesure le temps de vol TDV mis par une particule pour parcourir la distance  $L$  entre son point d'émission et le détecteur.

Ces deux paramètres connus, l'énergie du neutron (en MeV) se calcule selon la formule relativiste (B.1) :

$$E_n = (\gamma - 1)m_n c^2 = \left( \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{L^2}{\Delta t^2 c^2}}} - 1 \right) m_n c^2 \quad (\text{B.1})$$

où  $m_n = 939,565330 \text{ MeV}/c^2$  est la masse du neutron ;  $\Delta t$  le temps de vol du neutron en  $ns$  ;  $L$  la distance de vol en  $m$  et  $c = 0,299792458 \text{ m/ns}$  la vitesse de la lumière.

La cible d'actinide n'est pas ponctuelle. Le lieu d'émission du neutron n'est donc pas connu avec précision. Par la suite, l'émission sera considérée comme provenant du centre de la cible.

De même, le point d'interaction du neutron dans le détecteur dépend en moyenne de son énergie. En première approximation, l'interaction peut être considérée comme ayant lieu au centre du détecteur neutron.

La résolution en énergie  $\sigma_E$  de la mesure est donnée par l'équation B.2.

$$\left( \frac{\sigma_E}{E} \right)^2 = 2 \left[ \left( \frac{\sigma_L}{L} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{\Delta t}}{\Delta t} \right)^2 \right] \quad (\text{B.2})$$

$\sigma_L$  représente l'erreur sur la distance d'interaction. En supposant une source ponctuelle et que la probabilité d'interaction est uniforme dans un détecteur neutron d'épaisseur  $e$ ,

$\sigma_L$  vaut  $\frac{e}{2\sqrt{3}}$ .  $\sigma_{\Delta t}$  représente la résolution en temps du système et doit être mesurée. D'après l'équation B.2, la résolution en énergie se dégrade avec l'augmentation de l'énergie du neutron détecté mais s'améliore avec l'accroissement de la distance de vol. A titre d'exemple, cette évolution est présentée en figure B.2 pour un détecteur d'épaisseur  $e = 5$  cm placé à 1 m (en bleu) et à 2 m (en rouge) de la source de production, pour deux résolutions en temps typiques : 1,2 ns et 6 ns. Dans ce dernier cas, la résolution en énergie se dégrade rapidement avec l'augmentation de l'énergie du neutron détecté.

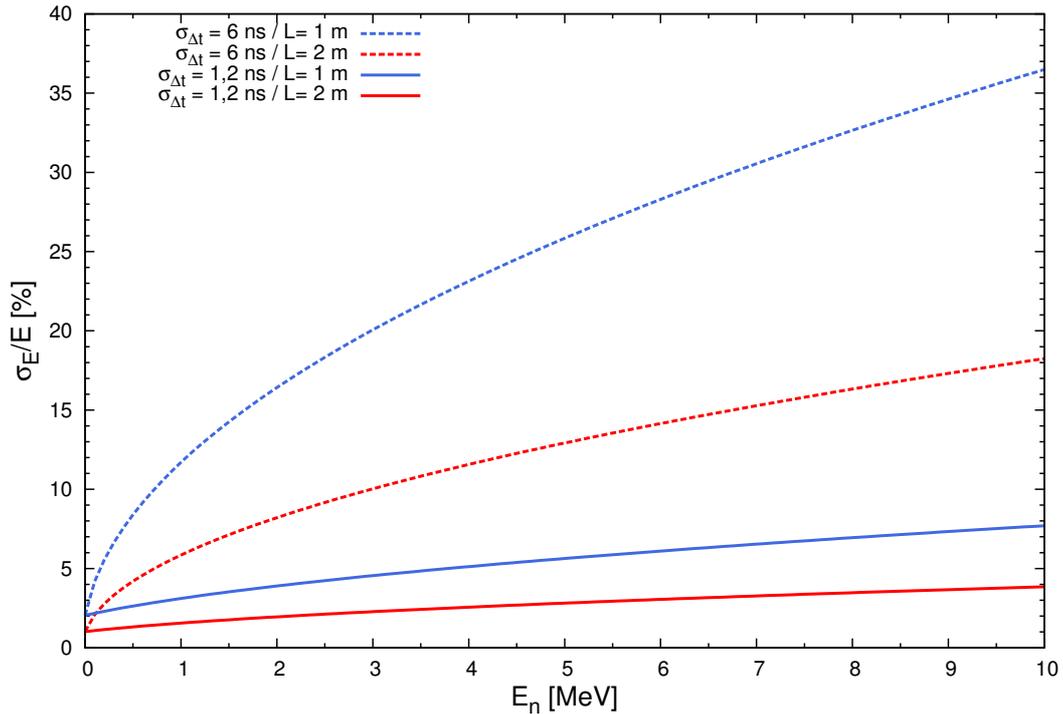


FIGURE B.2 – Évolution de la résolution en énergie en fonction de la base de vol et de la résolution en temps du dispositif expérimental. Les courbes en pointillés correspondent à une résolution en temps de l'ordre de 6 ns, les courbes en traits pleins à 1,2 ns.

La technique du temps de vol présente l'avantage d'offrir une bonne résolution en énergie, principalement pour des neutrons de basse énergie et ce, même avec de faibles distances de vol. Néanmoins, plus cette distance est courte, plus la résolution en énergie se dégrade. Éloigner le détecteur neutrons de la cible d'actinide permet d'améliorer la résolution en énergie mais conduit à une diminution de l'angle solide de détection et donc de l'efficacité du dispositif.

Il est essentiel de parvenir à un bon compromis entre ces deux effets de manière à optimiser l'efficacité de détection tout en minimisant la résolution sur l'énergie mesurée. Ce choix est effectué à partir de courbes, telles que celles présentées en figure B.2, en fonction de l'énergie des neutrons que l'on souhaite mesurer.

## 2 Deux méthodes pour la mesure des PFNS

Pour la mesure de PFNS, la technique du temps de vol peut être employée de deux façons différentes :

- soit avec une *cible passive* ([22, 28]). La cible est alors constituée d'un échantillon massif (plusieurs centaines de grammes<sup>(1)</sup>) de l'actinide étudié. Par définition, l'instant de la fission du noyau n'est pas connu.
- soit avec une *cible active* ([23, 24, 25, 26]). Une faible quantité de l'actinide étudié est placée dans une enceinte de détection afin qu'un signal puisse être recueilli lors d'une fission.

### 2.1 Technique de mesure avec une cible passive

Lors de mesures avec une cible passive, celle-ci ne génère pas de signal indiquant l'instant de la fission (i.e. celui de l'émission du neutron). Il n'est alors pas possible de mesurer par temps de vol l'énergie du neutron l'ayant induite. Les neutrons incidents doivent donc être monoénergétiques. La mesure de l'énergie des neutrons prompts de fission est réalisée par le biais d'une mesure du temps de vol entre la source, fournissant le flux de neutrons incidents, et le détecteur neutron (cf. figure B.3). La source (un accélérateur de particules dans notre cas) doit fonctionner en mode pulsé, de manière à fournir une référence en temps.

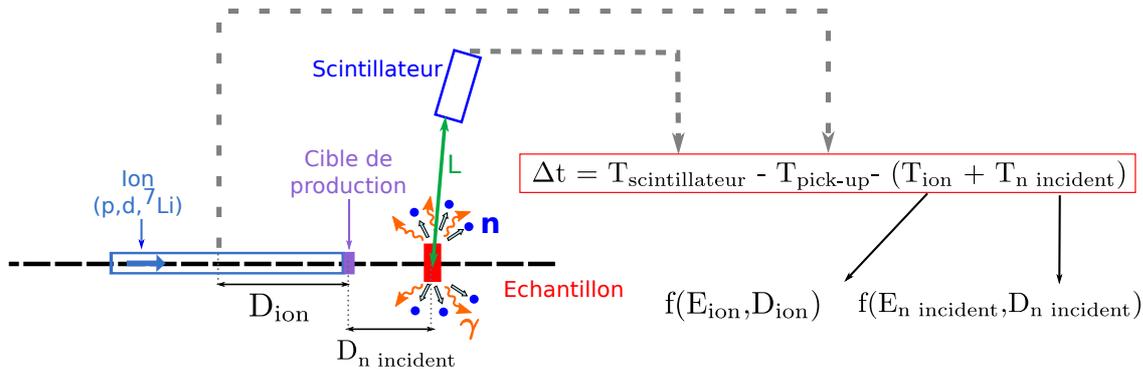


FIGURE B.3 – Technique de mesure des PFNS avec une cible passive. L'accélérateur, en mode pulsé, fournit une référence en temps utilisée pour démarrer la mesure du temps de vol ( $\Delta t$ ). Celle-ci est arrêtée par les détecteurs neutrons. Au temps mesuré devraient, en principe, être retranchés le temps de vol de l'ion ainsi que celui du neutron incident. Ces temps peuvent être calculés, connaissant l'énergie des ions ( $E_{ion}$ )/neutrons incidents ( $E_{n\ incident}$ ) ainsi que la distance qu'ils parcourent ( $D_{ion}/D_{n\ incident}$ ). En pratique, le pic  $\gamma$ -prompts émis par la cible est utilisé pour recalibrer le spectre.

(1). De l'ordre de la mole

Cette technique présente l'avantage de permettre l'utilisation d'échantillons massifs (plusieurs centaines de grammes) et donc d'obtenir un fort taux de fission. Des mesures avec une précision statistique de l'ordre de quelques pourcents peuvent alors être réalisées en un temps relativement court, et ce, même pour des énergies des neutrons émis supérieures à 6 MeV.

Cette méthode a cependant trois inconvénients majeurs : (1) la résolution en énergie de la mesure dépend de la qualité de la résolution temporelle sur la pulsation du faisceau. (2) Des processus de diffusion peuvent avoir lieu au niveau de la cible. Étant donné qu'il est impossible de différencier ces neutrons diffusés des neutrons de fission, le seuil de détection des détecteurs neutrons doit être réglé de manière à ne mesurer que les neutrons ayant une énergie supérieure à celle des neutrons incidents. (3) Si la cible est trop épaisse, des phénomènes d'auto-absorption ou de multiple diffusion peuvent se produire et induire des fissions à une énergie autre que celle souhaitée. Les spectres mesurés doivent alors être corrigés de ces effets. Plus de détails sur la méthode utilisée pour corriger ces différents effets sont donnés dans la référence [22].

Utiliser une cible passive ne permet donc pas d'obtenir de données sur la partie basse énergie ( $E_n \leq 0,7$  MeV) du spectre de neutrons émis pour les noyaux non fissiles.

## 2.2 Technique de mesure avec une cible active

Afin d'accéder à la partie basse énergie du spectre en énergie des neutrons prompts de fission, il faut donc utiliser une cible active.

Celle-ci se compose d'une enceinte de détection contenant l'actinide étudié, sous forme de dépôts. Ceux-ci doivent être suffisamment minces pour que les fragments de fission n'y soient pas absorbés, et donc qu'ils puissent générer un signal hors des dépôts. La quantité de matière utilisable s'en retrouve fortement limitée (au plus quelques grammes). Par ailleurs, les matériaux constitutifs de l'enceinte peuvent venir perturber la mesure (diffusion des neutrons incidents sur l'enceinte, distorsion du spectre en énergie des neutrons de fission, etc.).

Ce type de cible permet de repérer l'instant d'émission des neutrons prompts, ainsi chaque neutron prompt détecté est associé à la fission au cours de laquelle il a été émis (cf. figure B.4). Les neutrons incidents diffusant sur la cible active étant non corrélés en temps avec la fission, ils contribuent au spectre mesuré sous la forme d'un bruit de fond plat qui peut être soustrait. Il est donc possible de mesurer des énergies neutrons sortantes inférieures à l'énergie du neutron incident et d'investiguer la zone de basse énergie ( $< 1$  MeV) avec des moyens de détection adaptés (cf. chapitre III).

Un autre avantage de cette technique est que le temps de vol mesuré est directement celui recherché (i.e. celui des neutrons prompts de fission). Il n'est donc pas nécessaire que l'accélérateur fournisse une référence en temps. Ce dernier, lorsqu'il produit un flux de neutrons monocinétiques, peut donc être utilisé en mode continu (plus intense), ce qui permet de partiellement compenser la réduction de la masse d'actinide.

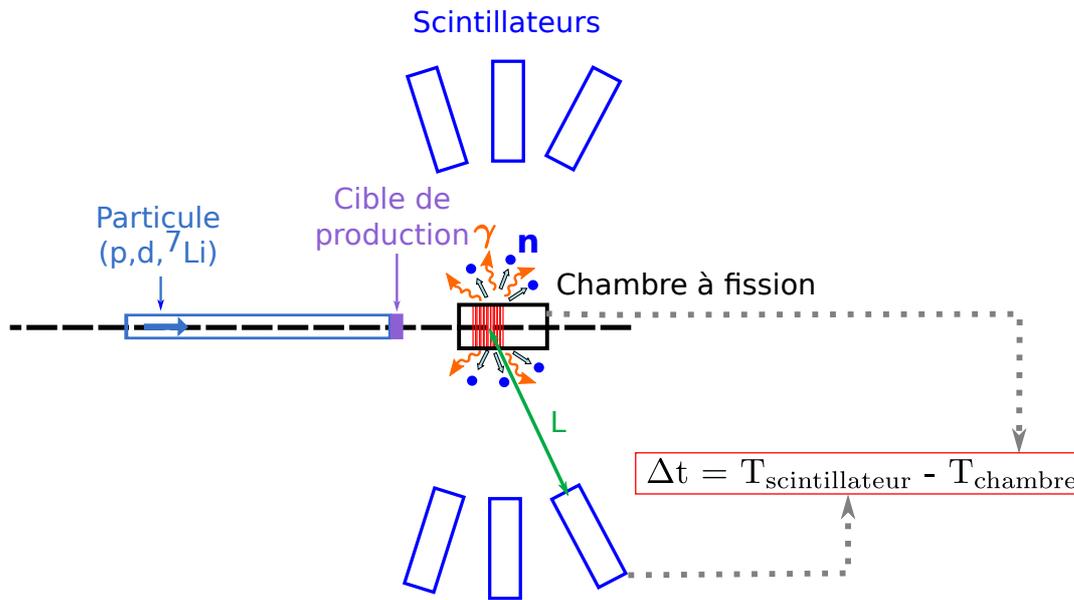


FIGURE B.4 – Technique de mesure des PFNS avec une cible active. Les neutrons produits par l’accélérateur au niveau de la cible de production induisent la fission de l’actinide contenu dans la cible active, ici représentée par une chambre à fission. Le signal résultant déclenche une mesure de temps de vol ( $\Delta t$ ) qui est arrêtée par les scintillateurs disposés autour de la chambre.

En revanche, lorsque le flux de neutrons produits n’est pas monocinétique, une référence en temps (et donc un fonctionnement en mode pulsé) reste nécessaire pour déterminer l’énergie du neutron ayant induit la fission. Cette technique, appelée « technique du double temps de vol » a été notamment utilisée lors des mesures avec le détecteur FIGARO [25, 26]. Elle permet, lors d’une unique campagne de mesure, de récolter des données pour plusieurs énergies neutron incidentes. Le dispositif utilisé étant le même, ces données sont directement comparables (mêmes erreurs systématiques).

Le principal inconvénient des mesures avec une cible active est que les masses d’actinide utilisées sont faibles (de quelques fractions de milligrammes à quelques grammes). Obtenir des mesures ayant une faible incertitude statistique en cible active impose donc des comptages de longue durée à des flux de neutrons incidents élevés.

Les avantages et inconvénients des techniques en cible passive et en cible active sont résumés dans le tableau B.1.

Pour les mesures effectuées au cours de la thèse, nous avons choisi d’utiliser la technique de la cible active. Les chapitres suivants présentent les améliorations apportées à cette cible ainsi que sur la détection des neutrons prompts de fission.

TABLEAU B.1 – Techniques de mesures de PFNS : avantages et inconvénients des mesures avec une cible passive et une cible active.

Cible	Avantages	Inconvénients
Passive	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Échantillons massifs</li> <li>• Mesures avec une faible incertitude statistique en peu de temps</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Impose d'utiliser l'accélérateur en mode pulsé avec un flux de neutrons monoénergétiques</li> <li>• Résolution en énergie de la mesure qui dépend de la résolution en temps de la pulsation faisceau</li> <li>• Possibilité de mesurer uniquement des neutrons prompts ayant une énergie supérieure à celle des neutrons incidents (problèmes de diffusion)</li> <li>• Incertitude sur l'énergie du neutron ayant induit la fission (problème de multiple diffusion au sein de la cible).</li> </ul>
Active	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mesures de neutrons prompts ayant une énergie inférieure à celle du neutron incident</li> <li>• Accélérateur en mode continu si le flux de neutrons est monocinétique</li> <li>• Possibilité d'acquérir des données sur plusieurs énergies neutron incidentes en une mesure (neutrons incidents non monocinétiques et accélérateur en mode pulsé)</li> <li>• Possibilité de mettre des actinides de nature différente dans une même enceinte</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Faibles quantités de matière <math>\Rightarrow</math> temps de comptage longs et flux importants</li> <li>• Enceinte de détection de la fission qui vient distordre le spectre mesuré</li> </ul>

**En résumé...**

- La distribution en énergie des neutrons prompts est mesurée par temps de vol : on mesure une durée de parcours qui est ensuite convertie en énergie.
- La mesure peut être réalisée :
  - avec une cible passive : seules les énergies de neutrons de fission supérieures à l'énergie du neutron incident sont alors accessibles.
  - avec une cible active : il est alors possible de mesurer l'énergie des neutrons prompts sur une gamme allant du keV à plusieurs dizaines de MeV. Une bonne précision statistique impose cependant de longs temps de comptage.

# Chapitre II

## Chambres à fission

Comme nous l'avons vu précédemment, l'énergie des neutrons prompts de fission est mesurée par temps de vol. Celui-ci est mesuré directement entre l'instant d'émission du neutron et sa détection. Pour cela, une cible active, permettant de repérer l'instant de la fission, est nécessaire. Notre choix s'est porté sur un détecteur de type « chambre à fission ». Il s'agit d'une chambre d'ionisation (enceinte remplie de gaz ionisable) contenant la source même des événements à détecter. L'enceinte comporte plusieurs plateaux, sur lesquels a été déposé en couche mince l'actinide dont on souhaite étudier la fission. Cette dernière peut être soit spontanée, soit induite par un flux de neutrons. Pour répondre aux besoins de la thèse, précision sur la composante basse énergie du spectre des neutrons prompts et faible distorsion sur l'ensemble du spectre, de nouvelles chambres à fission, optimisées pour les mesures de PFNS, ont été développées.

Dans ce chapitre, nous présentons le principe de fonctionnement de ces chambres, avant de nous intéresser à leur conception. Enfin, nous présentons les résultats de l'étude que j'ai réalisée afin d'évaluer leurs performances.

# 1 Principe de fonctionnement d'une chambre à fission

Les chambres à fission se composent de plusieurs éléments de type « chambre d'ionisation », rassemblés dans une même enceinte. Une particularité supplémentaire est que la source (ici le dépôt d'actinide) est contenue à l'intérieur de l'enceinte de détection.

La figure B.5 en présente une cellule élémentaire. Les paragraphes suivants sont consacrés à la description du principe de détection et des points essentiels de ce schéma.

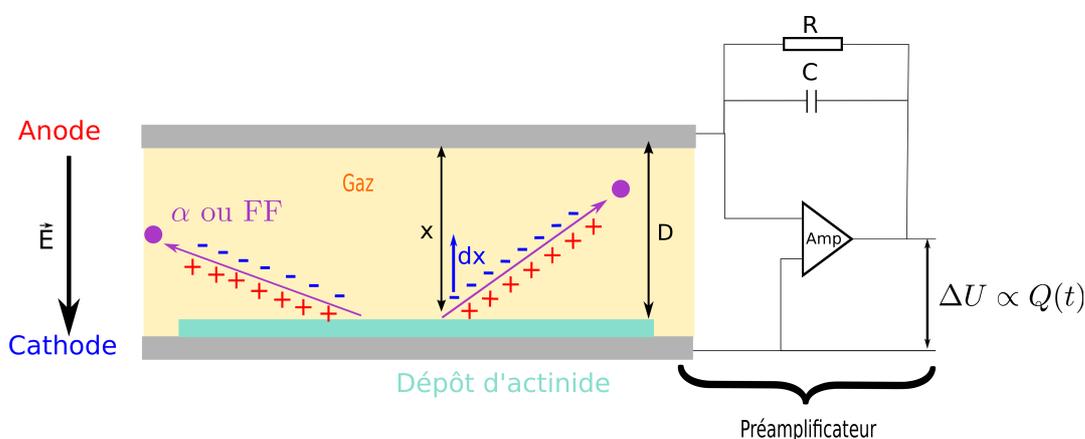


FIGURE B.5 – Principe de fonctionnement d'une chambre à fission. Une particule chargée ( $\alpha$  ou fragment de fission (FF)), émise par l'actinide déposé sur la cathode, ionise le gaz le long de sa trajectoire.  $D$  représente la distance entre l'anode et la cathode et  $x$  la distance entre l'anode et le point de création de la paire électron/ion. La charge induite résultante est intégrée au moyen d'un circuit préamplificateur, avant d'être mesurée sous la forme d'une différence de potentiel. (Amp : amplificateur).

## 1.1 Principe de fonctionnement d'une chambre d'ionisation

Les chambres d'ionisation permettent de repérer le passage d'une particule chargée en mesurant la charge totale induite sur l'anode (ou la cathode) par le déplacement des électrons et des ions créés, le long de la trajectoire de cette particule, dans le milieu de détection. Ce dernier, de type gazeux, est soumis à un champ électrique permettant la dérive et la collecte des charges.

La charge mesurée est recueillie sous forme d'une différence de potentiel, en sortie d'un circuit préamplificateur.

### 1.1.1 Création de paires électron-ion

Lors du passage d'une particule chargée dans le gaz, celui-ci est ionisé, d'où la création de paires électron/ion. Le nombre de paires créées dépend de l'énergie déposée par la particule dans le milieu et de l'énergie effective à fournir pour créer une paire. Cette dernière est, pour les gaz, de l'ordre de 30 eV/paire [29]. La seconde colonne du tableau B.2 présente quelques valeurs du nombre de paires créées en supposant un potentiel d'ionisation du gaz de 30 eV.

TABLEAU B.2 – Ordres de grandeur du nombre de paires électron/ion créées et des charges induites résultantes en fonction de l'énergie déposée dans un détecteur gazeux. Les valeurs sont données pour un potentiel d'ionisation du gaz de 30 eV et en supposant les charges créées à une distance  $\frac{D}{2}$  de l'anode.

Énergie déposée [MeV]	Nombre de paires ( $e^-$ /ion)	Q [pC]
5 <sup>(1)</sup>	$1,67 \times 10^5$	0,01
20	$6,67 \times 10^5$	0,05
70 <sup>(2)</sup>	$2,34 \times 10^6$	0,20
100 <sup>(3)</sup>	$3,34 \times 10^6$	0,28

### 1.1.2 Mouvement des particules chargées et charge induite

Afin d'éviter que les électrons et les ions ne se recombinent directement aux atomes du gaz, un champ électrique  $\vec{E}$  est nécessaire. Celui-ci est créé en appliquant une différence de potentiel entre deux plateaux, distants de  $D$  (cf. figure B.5). Les électrons créés vont migrer vers l'anode (plateau au potentiel le plus élevé) et les ions vers la cathode (plateau relié à la masse).

Or, selon le théorème de Ramo-Shockley, le déplacement d'une charge  $q$  sur une distance  $dx$  orthogonale à l'anode induit un courant :

$$I = \frac{dQ}{dt} = q \frac{1}{D} \frac{dx}{dt} \quad (\text{B.3})$$

L'équation précédente fait intervenir  $dQ$ , la charge induite sur l'anode à distance par le mouvement de la charge  $q$ . Celle-ci s'exprime selon  $dQ = q \frac{1}{D} dx$  et dépend de la localisation de la charge  $q$  entre les plateaux.

Considérons un électron créé à une distance  $x$  de l'anode. A cet instant  $t_1$ , il induit une charge  $dQ_1$ . Il migre ensuite de  $dx$  sous l'effet du champ  $\vec{E}$ . Au temps  $t_2$ , il se trouve à une distance  $(x-dx) < x$  de l'anode et induit donc une charge  $dQ_2 < dQ_1$ , et ainsi de suite jusqu'à sa collection à un temps  $t_n$ . La charge induite totale due à l'électron est la

- 
- (1). Énergie moyenne des  $\alpha$  émis par l' $^{238}\text{U}$
  - (2). Énergie moyenne du fragment lourd
  - (3). Énergie moyenne du fragment léger

somme de ces contributions :  $Q_e = \int_x^D dQ_i$ . Il en va de même pour les ions.

Ainsi, pour une particule créant une charge  $q$  à une distance  $x$  de l'anode :

- la charge induite totale due aux électrons vaut  $Q_e = q \frac{D-x}{D}$ .
- la charge induite totale due aux ions vaut  $Q_i = q \frac{x}{D}$ .
- la charge induite totale est la somme de celle induite par les ions et de celle induite par les électrons. Elle vaut  $Q_e + Q_i = q$  et est indépendante du champ  $\vec{E}$ .

Par la suite,  $Q$  représentera l'intégralité de la charge induite par les électrons issus de l'ionisation du gaz par une particule  $\alpha$  ou un fragment de fission émis par l'actinide implanté sur les plateaux contenus dans l'enceinte.

A titre d'exemple, la troisième colonne du tableau B.2 présente quelques valeurs de la charge  $Q$  en supposant un potentiel d'ionisation du gaz de 30 eV et que les paires électron/ion sont créées au milieu des plaques.

## 1.2 Discrimination $\alpha$ -fission

Les actinides peuvent non seulement fissionner mais également émettre des particules  $\alpha$ . Pour la mesure de PFNS, afin de ne déclencher l'acquisition des signaux que sur les fissions, et non sur les décroissances  $\alpha$ , il faut donc pouvoir discriminer entre ces deux types d'émission.

### 1.2.1 Principe de la discrimination $\alpha$ -fission

Les fragments de fission ont une énergie moyenne d'environ 100 MeV contre seulement 5 MeV pour des particules  $\alpha$ . Si l'on considère que toute cette énergie est déposée dans le milieu, alors la charge induite  $Q$  par un fragment est plus grande que celle induite par une particule  $\alpha$ . Il est ainsi possible de discriminer la nature de la particule ionisante.

En théorie, le spectre en énergie des  $\alpha$  émis par les actinides peut être considéré comme monoénergétique. En effet, pour le  $^{252}\text{Cf}$ , les  $\alpha$  émis ont, en moyenne, une énergie de 6 MeV [30] contre seulement 4 MeV pour l' $^{238}\text{U}$ . En première approximation, la charge induite  $Q$  peut être considérée comme identique à chaque désintégration  $\alpha$ , pour un actinide donné.

En revanche, pour les fragments de fission, la charge  $Q$  est répartie selon la distribution en énergie cinétique des fragments. Celle-ci varie entre 20 et 200 MeV.

La distribution en charge induite devrait donc présenter deux zones bien distinctes : un pic à faible charge, correspondant aux désintégrations  $\alpha$ , et une large distribution à forte charge, correspondant aux fragments de fission. Cette distribution théorique est représentée en lignes pointillées sur la figure B.6.

### 1.2.2 Facteurs limitant la discrimination $\alpha$ -fission

En pratique, trois paramètres viennent influencer sur la charge  $Q$  et compliquer la discrimination  $\alpha$ -fission :

1. la distribution angulaire lors de l'émission des  $\alpha$  et des fragments de fission.
2. l'épaisseur des dépôts.
3. les phénomènes d'empilement.

#### Distribution angulaire lors de l'émission des $\alpha$ et des fragments de fission

Comme nous l'avons vu en section 1.1.2, la charge totale induite  $Q$  dépend du point de création de la charge.

Considérons une particule créant  $N$  paires électron/ion, le long de sa trajectoire. La charge totale induite par les électrons correspond à la somme des charges induites par chacun des  $N$  électrons.

- ① Lors d'une émission perpendiculaire au dépôt, les électrons créés au plus proche de l'anode vont rapidement être collectés. Ils cessent alors d'exercer une influence électrostatique et ne contribuent plus à la charge totale induite  $Q_1$ .
- ② Lors d'une émission en incidence rasante, l'ensemble des électrons est créé au niveau de la cathode et parcourt la distance  $D$  séparant l'anode de la cathode. Tous les électrons sont collectés en même temps et, pendant toute la traversée de l'espace inter-plateaux  $D$ , tous exercent une influence électrostatique, contribuant ainsi à la charge totale induite  $Q_2$ .

Pour un même nombre de paires électron/ion formées, la charge induite  $Q_2$ , obtenue lors d'une émission en incidence rasante, est plus importante que la charge  $Q_1$ , obtenue lors d'une émission orthogonale au dépôt.

Ainsi, l'émission de  $N$  particules monoénergétiques ne se traduira pas par un pic fin, d'amplitude  $N$ , à la charge  $Q$  mais par une distribution, représentative de la distribution angulaire de ces particules.

#### Épaisseur des dépôts

Dans le cas de dépôts relativement épais ( $>100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), tels ceux que nous avons utilisés dans la chambre  $^{238}\text{U}$  (cf. section 3, page 66), les  $\alpha$  et fragments de fission perdent de l'énergie dans les dépôts. Cette perte d'énergie est d'autant plus grande que l'angle d'émission est rasant. Les fragments peuvent perdre suffisamment d'énergie pour que la charge induite associée soit équivalente à celle induite par une particule  $\alpha$ . Il n'est alors plus possible de déterminer si le signal recueilli est issu de l'ionisation du gaz par un fragment de fission ou par une particule  $\alpha$ .

### Phénomènes d'empilement

Ces phénomènes correspondent à l'émission, dans un intervalle de temps très court, de plusieurs particules chargées. Celles-ci exercent alors en même temps une influence électrostatique sur les plateaux. Dans le cas d'un empilement  $\alpha$  (détection simultanée d'au moins deux  $\alpha$ ), la charge induite apparente peut être équivalente à celle générée par un fragment de fission et il n'est alors pas possible de discriminer entre ces deux types d'émission.

La distribution en charge obtenue en pratique est représentée en lignes continues sur la figure B.6.

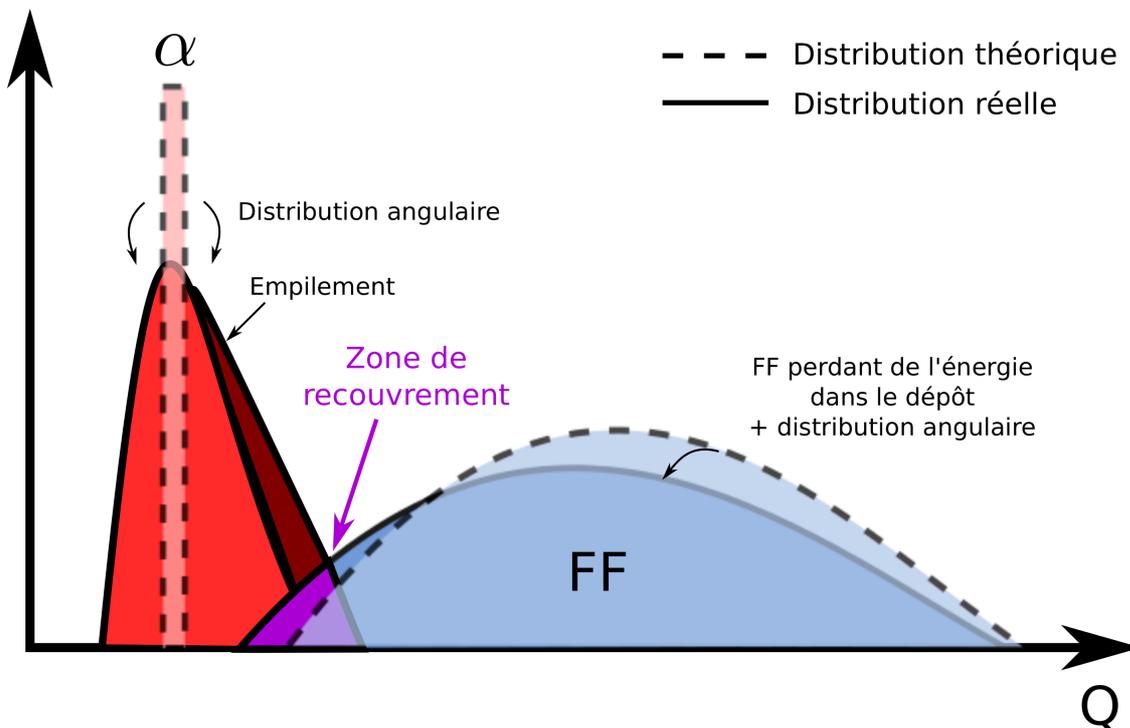


FIGURE B.6 – Distribution de la charge induite  $Q$  dans les chambres à fission. En raison de la distribution angulaire des émissions et de phénomènes d'empilement, la discrimination entre particules  $\alpha$  et fragments de fission (FF) est dégradée.

La zone représentée en violet correspond au recouvrement des réponses aux  $\alpha$  et aux fragments de fission. Cette zone, résultant de la conjugaison des trois effets mentionnés ci-dessus, est observée sur les chambres que nous avons développées (cf. section 3.2.2, page 74).

## 2 Signal électrique en sortie d'une chambre à fission

Les paires électron/ion, issues de l'ionisation du gaz, dérivent dans le champ électrique  $\vec{E}$ . Le signal recueilli correspond au courant induit par le mouvement de ces porteurs de charge entre les électrodes.

### 2.1 Formation du signal électrique

Contrairement à la charge induite  $Q$ , le courant induit  $I$  dépend de  $\vec{E}$  selon :

$$\begin{aligned} I &= \left(\frac{dQ}{dt}\right)_{e^-} + \left(\frac{dQ}{dt}\right)_{ions} \\ &= \frac{q(t)v_{e^-}}{D} + \frac{q(t)v_{ions}}{D} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Dans l'équation B.4,  $v_{e^-/ions}$  est la vitesse de dérive des électrons/ions. On peut l'estimer à partir de la charge  $e$  de la particule en Coulomb ( $C$ ), de sa masse  $m$  en  $kg$ , de la durée  $\tau$  entre deux collisions et du champ  $\vec{E}$ , selon l'équation B.5 :

$$v = \frac{e}{m}\tau E = \mu E \quad (\text{B.5})$$

Dans cette équation,  $\mu$  est la mobilité du porteur de charge.

#### 2.1.1 Vitesse de dérive des porteurs de charge

La mobilité  $\mu$  dépend de la masse et de la charge du porteur, mais aussi des paramètres thermodynamiques de la chambre (pression et densité du gaz) et, en principe, du champ électrique  $\vec{E}$ .

Cette dernière dépendance est essentiellement satisfaite par les électrons qui ont un libre parcours moyen (durée de déplacement avant la première collision) supérieur à celui des ions. Ils peuvent donc gagner, sous l'effet du champ  $\vec{E}$ , plus d'énergie cinétique entre deux collisions que les ions. En conséquence, leur mobilité est, sauf pour de faibles champs électriques où le gain en énergie cinétique est faible, dépendante de  $\vec{E}$ . Au contraire, la mobilité des ions ne dépend pas de  $\vec{E}$ .

La figure B.7, issue d'un calcul avec le logiciel GARFIELD [31] du CERN, présente, pour différents types de gaz, l'évolution de la vitesse de dérive des électrons en fonction du champ réduit (en V/cm.bar) appliqué.

Il est important de souligner que, en raison de leur libre parcours moyen très élevé en regard de celui des ions, la mobilité des électrons est environ 1 000 fois plus grande que celle des ions. Autrement dit, leur vitesse de dérive est plus élevée : de l'ordre de 1 à 10 cm/ $\mu s$  pour les électrons contre 10<sup>-3</sup> cm/ $\mu s$  pour les ions.

Le mouvement des ions étant beaucoup plus lent que celui des électrons, le temps nécessaire à la collection de l'intégralité des charges est très long (environ 100  $\mu s$  pour une distance de 1 mm).

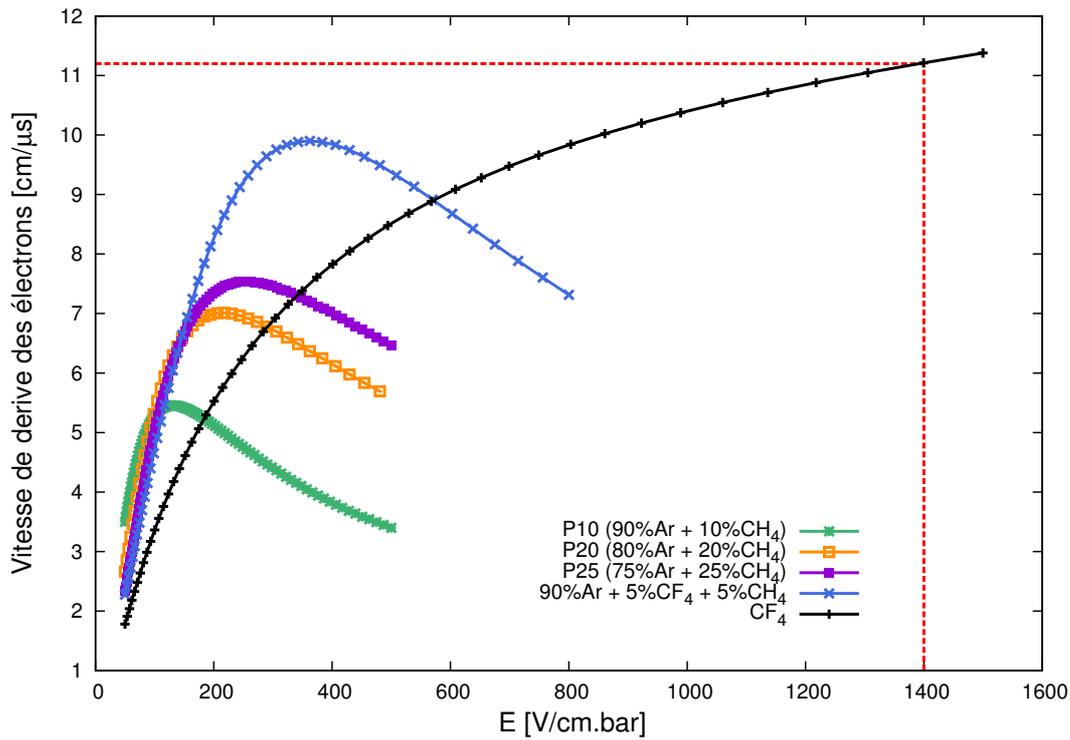


FIGURE B.7 – Vitesse de dérive des électrons en fonction du champ réduit appliqué, pour différents types de gaz. Le gaz retenu pour le fonctionnement des nouvelles chambres est le  $\text{CF}_4$  avec un champ réduit de 1 400 V/cm.bar. Les raisons de ce choix seront présentées en section 3 de ce chapitre.

### 2.1.2 Conversion de la charge induite en amplitude

Le courant ainsi induit sur l'anode est transformé en une différence de potentiel  $\Delta U$  grâce à un préamplificateur de charge. Il s'agit d'un amplificateur intégrateur (cf. figure B.5 permettant de transformer la charge induite  $Q$  en un potentiel  $U$  selon  $U = \frac{Q}{C}$ .  $\frac{1}{C}$  représente la sensibilité du préamplificateur, c'est-à-dire le coefficient de conversion charge-potentiel. La capacité  $C$  permet d'intégrer le signal et la résistance  $R$  de le différencier, via la décharge de  $C$ .

Lors des mesures de fragments de fission, les particules ionisant le gaz ont une énergie variant entre la dizaine et la centaine de MeV. Afin d'obtenir des signaux ayant une centaine de millivolts d'amplitude, la sensibilité des préamplificateurs utilisés jusqu'à présent était de l'ordre de 0,5 V/pC (cf. table B.3 ci-après).

TABLEAU B.3 – Ordres de grandeur des amplitudes des signaux en sortie d'une chambre à fission. Le calcul des charges  $Q$  est effectué avec les mêmes hypothèses que dans le tableau B.2 et l'amplitude en considérant une sensibilité de 0,5 V/pC.

Énergie [MeV]	$Q$ [pC]	Amplitude [mV]
5	0,01	5
20	0,05	25
70	0,20	100
100	0,28	140

### 2.1.3 Les quatre composantes du signal électrique

La figure B.8 présente schématiquement le signal électrique, induit par les électrons et les ions, en sortie du circuit de préamplification.

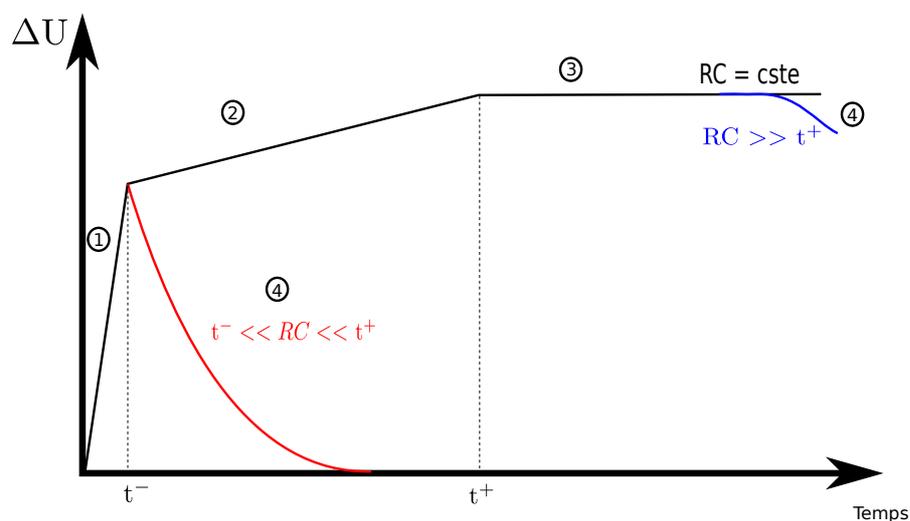


FIGURE B.8 – Forme du signal d'une chambre d'ionisation en sortie d'un préamplificateur de charge.  $t^-$  représente le temps de dérive des électrons et  $t^+$  celui des ions. La forme du signal dépend de la constante  $RC$  du préamplificateur.

Ce signal peut se décomposer en quatre parties distinctes :

- ① La première partie du signal est essentiellement due aux mouvements des électrons, ceux-ci migrant environ 1 000 fois plus vite que les ions.
- ② Dans la deuxième partie du signal, la montée est plus lente car due au mouvement des ions.
- ③ Le signal atteint lentement sa valeur asymptotique. Toutes les charges sont finalement collectées.
- ④ La chambre étant connectée au préamplificateur de charge, au bout d'un temps  $RC$  caractéristique de ce circuit, le signal décroît.

La différenciation du signal dépend donc de la constante RC du circuit de préamplification.

## 2.2 Réponse temporelle des chambres à fission

Le temps de réponse du détecteur, pris entre 0 et 100% de l'amplitude maximale du signal, correspond au temps maximal de dérive des électrons et ne dépend que du gaz, de la distance séparant l'anode de la cathode et du champ  $\vec{E}$  appliqué.

Ainsi, pour une distance  $D$  de 2,5 mm et du gaz  $\text{CF}_4$  (tétrafluorométhane) avec un champ réduit de 1400 V/cm.bar (soit 350 V à pression atmosphérique), la vitesse de dérive des électrons est d'environ 11 cm/ $\mu\text{s}$  (cf. figure B.7), et l'intégralité du signal, issu du mouvement des électrons, est collectée en  $t_c = 23$  ns au niveau du détecteur et ce, quel que soit l'angle d'émission de la particule chargée (cf. figure B.9).

En revanche, étant donné que la forme du signal dépend de l'angle d'émission de la particule chargée [32], le temps de montée défini entre 10 et 90% devient dépendant de l'angle.

Comme nous l'avons vu précédemment, la charge induite  $Q$  (i.e. l'amplitude du signal) dépend de l'angle d'émission (cf. paragraphe 1.2.2). Or celle-ci est la somme des contributions de chacun des électrons créés lors de l'ionisation du gaz par la particule chargée. Lors d'une émission normale au dépôt, des électrons sont générés proches de l'anode. Ils sont rapidement collectés et ont apporté leur contribution à la charge  $Q_1$ . Au contraire, lors d'une émission en incidence rasante, tous les électrons sont générés au niveau de la cathode et leur collecte a lieu au temps  $t_c$ . La valeur nominale de leurs contributions individuelles à la charge  $Q_2$  est donc atteinte à  $t_c$ . Ainsi, les 90% de l'amplitude maximale du signal sont atteints avec un temps de montée  $t_2$  plus long que le temps  $t_1$  nécessaire lors d'une émission en incidence normale.

Le temps de montée effectif du signal recueilli en sortie de la chambre correspond à la convolution du temps de réponse du détecteur (qui dépend de l'angle d'émission) et de celui du circuit de préamplification. Ainsi, plus l'angle d'émission varie, moins bonne sera la résolution temporelle de la chambre à fission.

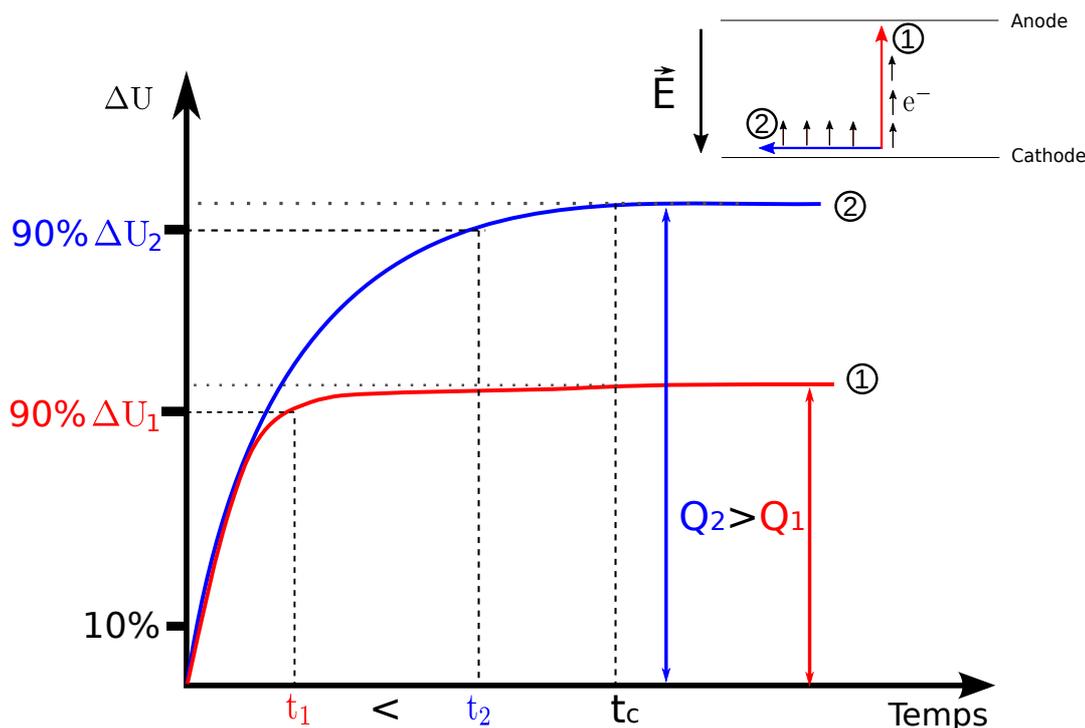


FIGURE B.9 – Influence de l'angle d'émission des particules  $\alpha$  ou des fragments de fission sur le temps de montée du signal et sur la charge collectée. Le signal rouge correspond à une émission orthogonale au plateau sur lequel l'actinide est déposé. Le signal bleu correspond à une émission rasante.  $t_c$  représente le temps de collecte des électrons.

### 2.3 Traitement du signal

Pour les mesures de PFNS, les chambres à fission doivent permettre de repérer l'instant de la fission mais également de discriminer ces événements des désintégrations  $\alpha$ . Il faut donc extraire du signal obtenu en sortie du préamplificateur une information temps ainsi qu'une information énergie.

Usuellement, ceci est réalisé en divisant le signal puis en le mettant en forme dans un amplificateur linéaire rapide à grande bande passante pour la composante temporelle, et dans un amplificateur de spectroscopie pour la composante énergie. Les systèmes d'acquisition numérique maintenant disponibles permettent de numériser le signal directement en sortie du préamplificateur et, via des algorithmes de traitement, de coupler les propriétés de ces deux types d'amplificateurs sans avoir à diviser le signal.

La fonction première de ces amplificateurs est de mettre en forme le signal de manière à optimiser le rapport signal/bruit. Pour cela, le signal est tout d'abord intégré, ce qui permet d'éliminer les bruits haute fréquence. Il est ensuite différencié, de manière à éliminer les bruits basse fréquence.

Le signal a alors une forme quasi-gaussienne dont le temps de montée est environ égal à

la constante de mise en forme choisie. Le temps de descente est, en revanche, beaucoup plus rapide que celui en sortie du préamplificateur. Ce point est essentiel afin d'éviter les problèmes d'empilement, ainsi qu'illustré en figure B.10. La durée totale du signal est d'environ 3 fois la valeur de la constante de mise en forme.

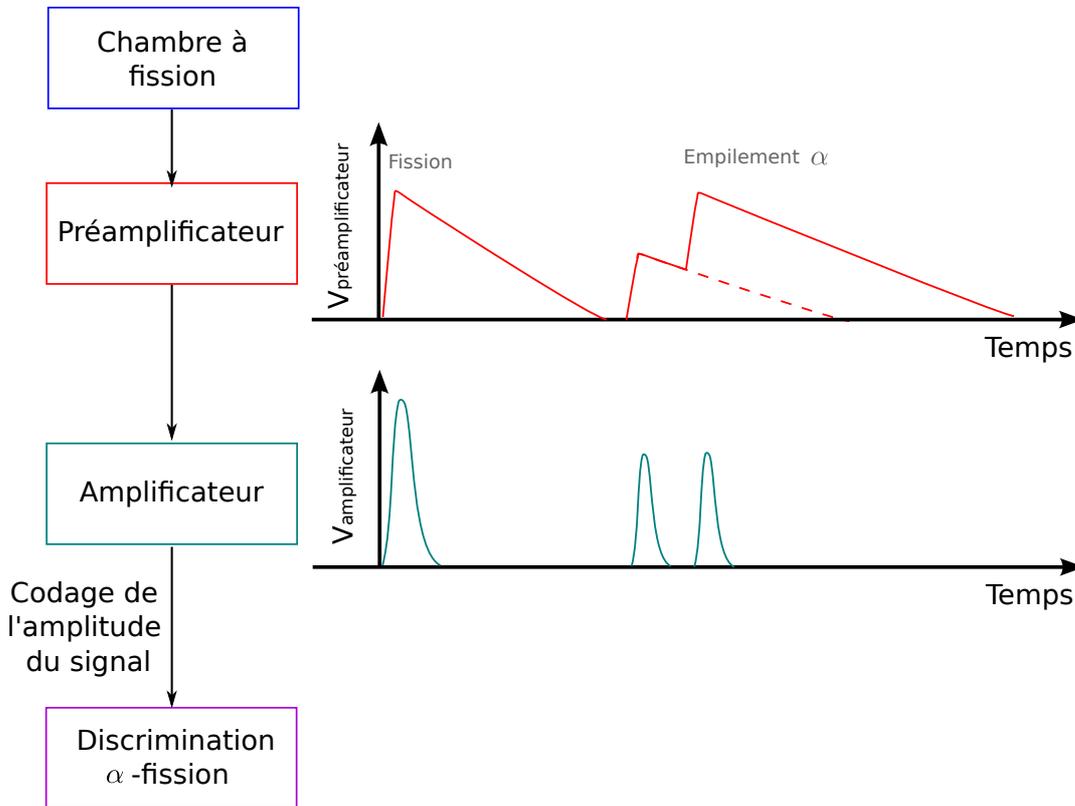


FIGURE B.10 – Principe de traitement du signal en sortie d'une chambre à fission. La charge induite est transformée en différence de potentiel dans le circuit préamplificateur, avant que le signal ne soit mis en forme dans l'amplificateur et que son amplitude ne soit codée pour réaliser une discrimination  $\alpha$ -fission.

Cette constante est choisie en fonction du temps de montée du signal. Elle doit être la plus faible possible afin d'assurer un signal en sortie de l'amplificateur rapide. Cependant, elle doit être suffisamment grande pour s'assurer que l'ensemble des électrons soit collecté et que l'amplitude du signal soit bien représentative de la charge  $Q$ .

Reprenons l'exemple de plateaux espacés de 2,5 mm et du gaz  $CF_4$  avec un champ réduit de 1400 V/cm.bar. Le temps de collecte des électrons est alors de 23 ns. L'idéal pour conserver cette excellente réponse temporelle est d'utiliser une mise en forme sur 25 ns. L'utilisation de cette constante de temps très courte est rendue possible par l'utilisation des systèmes numériques<sup>(4)</sup>. L'excellente réponse temporelle du détecteur est ainsi conservée. Par ailleurs, cette constante étant très courte, une unique mise en forme du signal permet d'obtenir les deux informations, temps et énergie.

(4). Pour une acquisition analogique, la mise en forme est réalisée à l'aide de composants électroniques. Les limitations technologiques empêchent d'atteindre des constantes de temps très courtes.

La référence temporelle est obtenue lors du déclenchement de l'acquisition. L'information énergie est obtenue en enregistrant l'amplitude du signal déclencheur. Elle est utilisée pour la discrimination  $\alpha$ -fission.

Lors de la caractérisation des propriétés de discriminations  $\alpha$ -fission des nouvelles chambres à fission (cf. section 3), le marquage en temps n'est pas nécessaire. Nous avons donc pu mettre proprement en forme le signal et coder son amplitude. Malheureusement, au moment où ces travaux de thèse ont été menés, le système d'acquisition utilisé (cf. chapitre IV) ne permettait pas à la fois de mettre en forme le signal et de le marquer en temps avec une grande précision. Lors des mesures de PFNS ou pour caractériser la résolution temporelle des nouvelles chambres, ce marquage précis des signaux est nécessaire (inférieur à la nanoseconde). Nous avons donc eu recours à un module numérique (QDC), qui sera présenté plus en détail dans le chapitre IV. L'information énergie a été récupérée en intégrant le signal sur son front de montée. Celui-ci n'étant pas mis en forme, il était alors nécessaire d'avoir un signal décroissant rapidement en sortie du préamplificateur et donc une constante RC la plus faible possible (cf. figure B.8), afin d'éviter les problèmes d'empilement. Ceci devait être couplé à une grande sensibilité afin de pouvoir optimiser la discrimination entre désintégrations  $\alpha$  et fissions.

De tels préamplificateurs n'étant pas disponibles dans le commerce, nous en avons donc développé de nouveaux. Ils sont décrits en détails dans la section suivante.

### 3 Développement et étude de la réponse de nouvelles chambres à fission multi-plateaux

Les chambres à fission précédemment disponibles ont été construites dans les années 1970-1980 [33]. Elles sont constituées d'une enceinte cylindrique, en acier inoxydable, qui contient une centaine d'électrodes circulaires, également en acier inoxydable, sur lesquelles les dépôts d'actinides ont été réalisés. L'enceinte est remplie d'un mélange gazeux de type argon-méthane (P10<sup>(5)</sup> ou P20<sup>(6)</sup>) et maintenue à une pression de 5 bar. En particulier, la chambre <sup>238</sup>U (cf. figure B.11) a un diamètre de 10 cm pour 22 cm de longueur et 5 mm d'épaisseur. Les électrodes ( $\varnothing$  7 cm  $\times$  20  $\mu$ m) sont espacées de 1 mm et comportent des dépôts d'épaisseur 1,7 mg/cm<sup>2</sup>, pour une masse totale de 14 g d'<sup>238</sup>U.

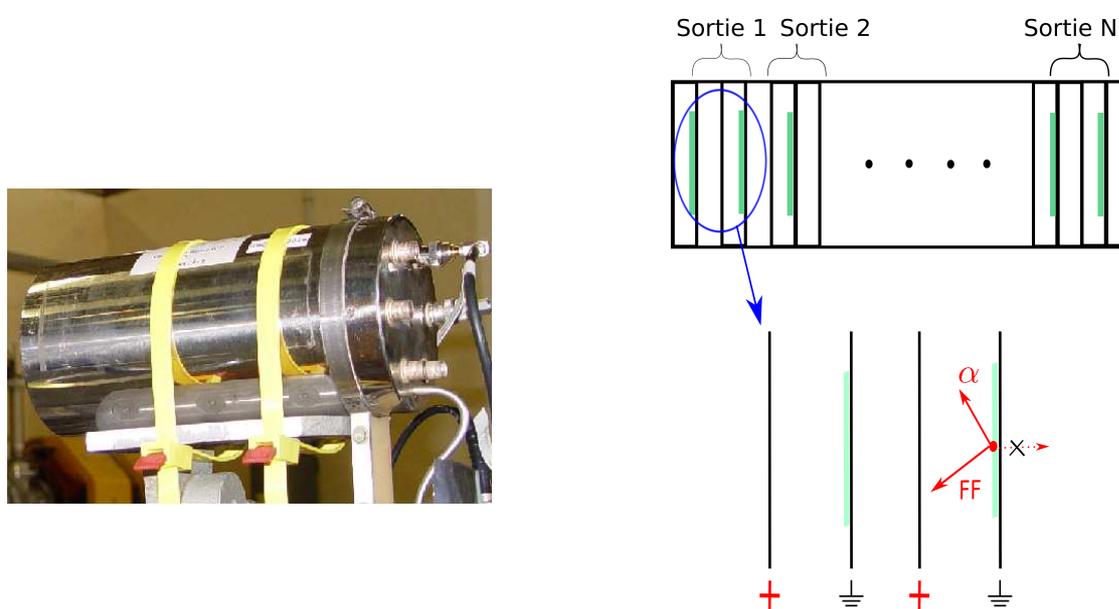


FIGURE B.11 – Photographie (à gauche) et schéma (à droite) de l'ancienne chambre <sup>238</sup>U.

Après plus de 30 ans d'utilisation, les propriétés de ces chambres se sont détériorées (ex : défauts de la connexion de masse, perte d'intégrité des dépôts, etc.). Par ailleurs, les dépôts de <sup>252</sup>Cf qu'elles contenaient ont une activité résiduelle très faible et ne sont pas utilisables. Elles ne permettent plus de réaliser des mesures de PFNS précises. Afin de les remplacer, de nouvelles chambres à fission multi-plateaux ont été développées pour la thèse [34].

(5). 10% méthane et 90% argon

(6). 20% méthane et 80% argon

Trois axes d'amélioration ont été étudiés :

1. La résolution temporelle : la résolution en énergie du spectre final étant gouvernée par la résolution en temps de la mesure, cette dernière doit être optimisée afin d'atteindre une résolution de l'ordre de la nanoseconde.
2. La discrimination  $\alpha$ -fission : les actinides étant également émetteurs  $\alpha$ , la chambre doit permettre de distinguer les signaux issus d'une ionisation du gaz par une particule  $\alpha$  de ceux issus de l'ionisation par un fragment de fission.
3. La distorsion du spectre mesuré : les neutrons (incidents ou de fission) sont susceptibles d'interagir avec les matériaux constitutifs du corps de la chambre. Ces réactions parasites sont à l'origine de distorsion sur le spectre en énergie des neutrons prompts mesuré.

La suite de ce chapitre est consacrée à la description de ces nouvelles chambres à fission. Nous présentons ensuite les résultats de l'évaluation de leurs performances quant aux trois critères sus-cités.

### 3.1 Développement de nouvelles chambres à fission

La figure B.12 présente un dessin technique des nouvelles chambres à fission.

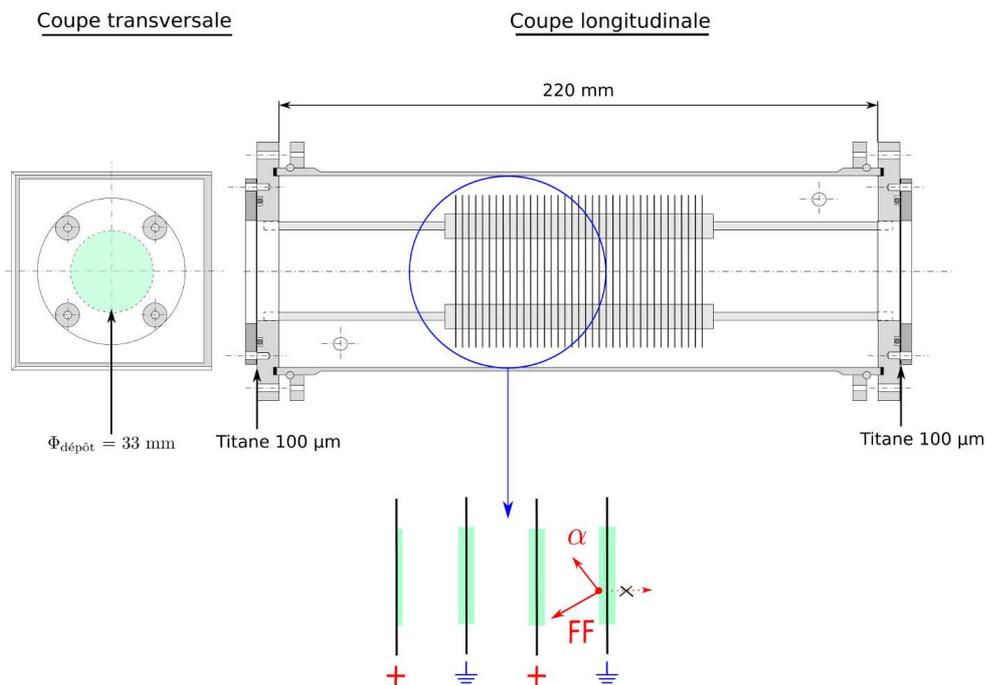


FIGURE B.12 – Dessin technique des nouvelles chambres multi-plateaux. Coupe transversale (à gauche) et coupe longitudinale (à droite). L'enceinte en aluminium contient 37 plateaux sur lesquels a été électrodéposé de l' $^{238}\text{U}$ , sur un diamètre de 33 mm (35 plateaux en recto/verso et les deux extrêmes en recto).

### Enceinte de détection

L'enceinte de détection se compose d'un parallélépipède ( $80 \times 80 \times 220 \text{ mm}^3$ ) en aluminium d'épaisseur 1,5 mm. Son volume est 18,5% (soit  $320 \text{ cm}^3$ ) plus faible que celui de l'ancienne chambre  $^{238}\text{U}$ . De plus, des fenêtres en titane, de  $100 \mu\text{m}$  d'épaisseur, sont fixées sur les brides de la chambre. Elles permettent, lors des études en fission induite, de minimiser la quantité de matière traversée par les neutrons incidents et donc de limiter la probabilité de réactions parasites sur les matériaux du corps de la chambre. Le titane a été choisi afin d'assurer une bonne tenue mécanique des fenêtres.

L'enceinte contient quatre tiges, faites d'un matériau non-hydrogéné, qui servent de support aux plateaux sur lesquels les dépôts d'actinide(s) ont été réalisés. Les plateaux sont montés de manière à conserver des espaces de 5 cm entre le premier/dernier plateau et les brides de la chambre. Ces espaces permettent de minimiser la quantité de matière traversée par les neutrons prompts issus de fissions sur les dépôts les plus proches des brides, et donc de diminuer la distorsion sur le spectre en énergie mesuré.

### Taille et distance entre les plateaux comportant les dépôts

Les plateaux sont des disques de titane de  $50 \mu\text{m}$  d'épaisseur. Leur diamètre et leur espacement, une fois montés dans la chambre, définissent la zone de détection du système. Ces deux paramètres doivent donc être choisis de manière à optimiser la résolution en temps, mais également afin de maximiser le dépôt d'énergie des fragments de fission dans le gaz, tout en minimisant celui des particules  $\alpha$ .

En effet, le pouvoir d'ionisation d'une particule ( $\frac{dE}{dx}$ ) est proportionnel à  $Z^2$ . Ainsi, les  $\alpha$ , contrairement aux fragments de fission, perdent l'essentiel de leur énergie dans le pic de Bragg, en fin de parcours (cf. figure B.13). Minimiser la taille de la zone de détection permet de maximiser la probabilité que ce pic ait lieu en dehors de cette zone et donc la quantité d'énergie déposée par les  $\alpha$ . Cela permet d'optimiser la discrimination entre particules  $\alpha$  et fragments de fission.

Par ailleurs, la capacitance d'un ensemble anode-cathode est fonction de la surface  $\pi R^2$  et de l'espacement  $e$  des plateaux :  $C = \frac{\pi R^2}{e}$ . Plus la surface des plateaux sera grande et leur espacement petit, plus la capacitance sera grande et les signaux lents et bruités.

Le diamètre retenu pour les plateaux est de 59 mm pour un espacement de 2,5 mm. Ce dernier est réalisé en insérant entre chacun des plateaux une rondelle de 2,5 mm, de même matériau que les tiges.

Avec un tel espacement, une particule  $\alpha$  de 5 MeV émise avec une incidence orthogonale au dépôt dépose environ 700 keV dans le  $\text{CF}_4$ , avant d'être arrêtée par le plateau suivant. Un fragment de fission de 100 MeV émis à la même incidence dépose environ 35 MeV. Cette différence en énergie déposée se retrouve sur la charge induite  $Q$ , ce qui permet une excellente séparation  $\alpha$ -fission.

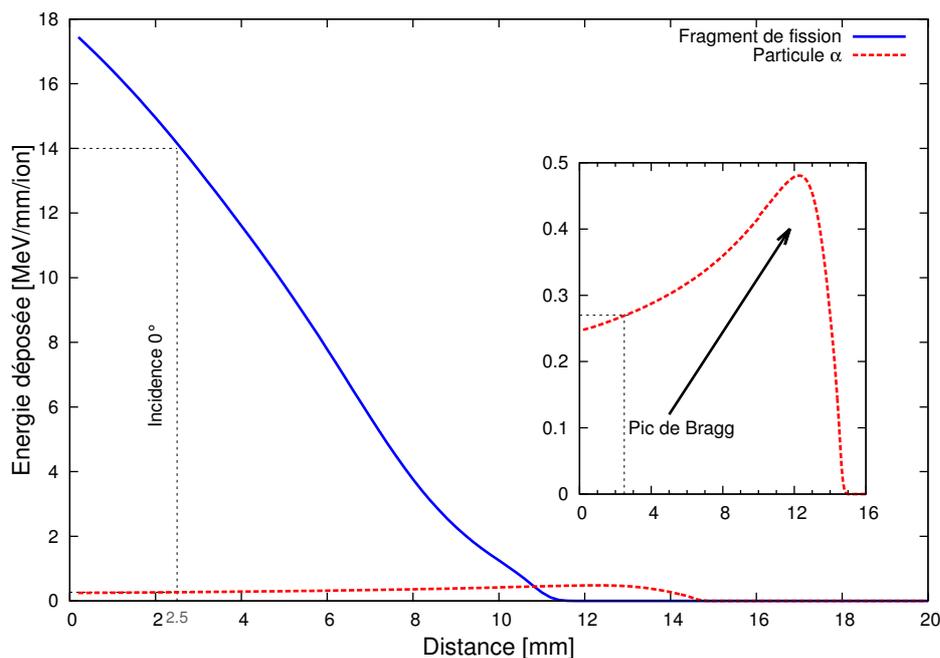


FIGURE B.13 – Pertes d'énergie par ionisation dans 2 cm de  $\text{CF}_4$  à pression atmosphérique pour une particule  $\alpha$  de 5 MeV et pour un fragment de fission d'énergie 100 MeV, calculées avec le logiciel SRIM du CERN [35]. Un  $\alpha$  de 5 MeV émis en incidence normale dépose environ 0,28 MeV/mm, soit 700 keV sur une distance de 2,5 mm. Un fragment de fission ayant la même incidence dépose environ 14 MeV/mm, soit 35 MeV.

### Taille des dépôts d'actinide

Des effets de bord apparaissent sur le champ électrique  $\vec{E}$  sur des distances inférieures à deux fois la distance inter-plateaux (soit ici 5 mm). Afin que ceux-ci n'affectent pas la collecte de charge, il est important que les dépôts d'actinide, de forme circulaire, aient un diamètre inférieur à 54 mm (soit 5 mm de moins que celui des plateaux).

Par ailleurs, plus les dépôts sont grands par rapport à la taille de la zone de détection, plus les fragments de fission détectés peuvent avoir de trajectoires différentes. En effet, si la taille de la zone de détection était exactement celle du dépôt, les fragments de fission émis au bord de ce dernier ne seraient pas détectés. Plus le nombre de trajectoires possibles est élevé, plus il y a de dispersion sur le temps de montée du signal, ce qui dégrade la résolution temporelle du détecteur.

Un diamètre de 33 mm permet de s'affranchir des effets de bord sur le champ électrique et d'obtenir un bon compromis entre quantité de matière déposée et résolution en temps.

### Choix du gaz

La résolution en temps de la chambre dépend de la vitesse de dérive des électrons dans le champ  $\vec{E}$ .

Vu la figure B.7, nous avons donc choisi d'utiliser du  $\text{CF}_4$ , qui permet, pour un champ réduit de 1 400 V/cm.bar, d'atteindre une vitesse de dérive de 11 cm/ $\mu\text{s}$ . La distance entre les plateaux étant de 2,5 mm, le temps de collecte des électrons est de 23 ns.

Par ailleurs, la masse volumique élevée du  $\text{CF}_4$  (3,59 mg/cm<sup>3</sup>) par rapport au P30

( $1,15 \text{ mg/cm}^3$ ) par exemple, permet d'avoir un libre parcours plus petit pour une même pression du gaz dans la chambre. On peut donc travailler à pression atmosphérique mais aussi diminuer l'espacement entre les plateaux, et donc la taille de la zone de détection.

Le  $\text{CF}_4$  présente cependant quelques inconvénients : il s'agit d'un gaz à effet de serre qui perd rapidement ses excellentes propriétés lorsque pollué. Dans le cas des chambres à fission, cette pollution survient sous la forme de dioxygène ( $\text{O}_2$ ), issu du dégazage des matériaux constitutifs du corps du détecteur. Le dioxygène capture les électrons produits lors de l'ionisation du gaz. Ceux-ci ne participent alors plus à la génération du signal. A titre d'exemple, la figure B.14 présente l'attachement (probabilité de recombinaison) des électrons pour une pollution de 1% de dioxygène : pour 1 cm parcouru dans le gaz, environ 10% des électrons sont perdus (soit 2,5% des électrons dans les 2,5 mm séparant les plateaux, en cas d'incidence orthogonale).

Afin de maintenir les excellentes propriétés de la chambre lors de son utilisation, le  $\text{CF}_4$  présent dans l'enceinte doit être constamment renouvelé. Un circuit de circulation gazeuse dédié est donc mis en place et permet de maintenir la chambre en légère surpression (20-30 mbar). Le  $\text{CF}_4$  consommé<sup>(7)</sup> est filtré en sortie de chambre avant d'être évacué.

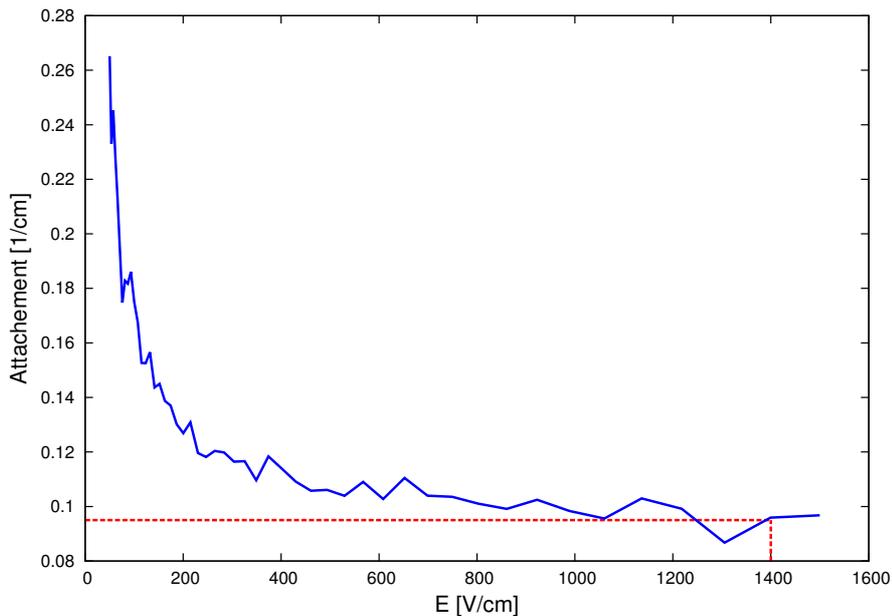


FIGURE B.14 – Attachement dans le  $\text{CF}_4$  pour une pollution de 1% de dioxygène calculé avec le logiciel GARFIELD du CERN [31]. Pour un champ réduit de 1 400 V/cm.bar, 2,5% des électrons sont perdus dans les 2,5 mm séparant les plateaux.

(7). Environ 0,2 L/mn.

## Électronique

Le dernier point abordé a été le développement d'une électronique dédiée. Les préamplificateurs ont été spécialement conçus de manière à répondre à notre besoin de coupler une excellente résolution temporelle à une mesure précise de l'énergie de la particule chargée incidente (cf. section 2.3).

Ces nouveaux préamplificateurs sont plus rapides que la majorité de ceux disponibles dans le commerce, avec un temps de réponse de l'ordre de 8 ns. Ils possèdent également une sensibilité nettement accrue de 7,3 V/pC (contre 0,5 V/pC auparavant). Ainsi, un fragment de fission de basse énergie (environ 20 MeV), génère un signal de 365 mV d'amplitude (soit 15 fois plus que les préamplificateurs précédemment utilisés lors des mesures de PFNS).

Ces préamplificateurs sont montés par trois sur une carte fixée directement sur le corps de la chambre à fission (cf. figure B.15). Cela permet de réduire la capacitance du système<sup>(8)</sup> et donc d'optimiser le rapport signal sur bruit.

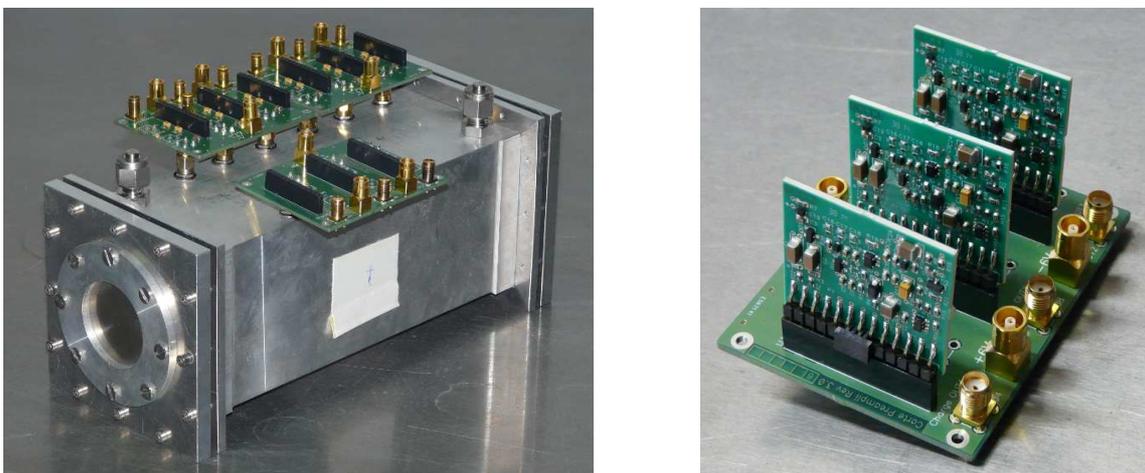


FIGURE B.15 – Photographie des nouveaux préamplificateurs (à droite). Ceux-ci sont connectés sur une carte qui est fixée directement sur le corps de la chambre à fission afin d'optimiser le rapport signal sur bruit (à gauche).

## 3.2 Évaluation des performances des nouvelles chambres

Afin de tester les nouveaux développements apportés aux chambres à fission, nous avons tout d'abord construit un prototype contenant un dépôt de  $^{252}\text{Cf}$ . La chambre comporte un unique couple anode/cathode. Sur cette dernière, une goutte d'acide nitrique contenant 20 kBq de  $^{252}\text{Cf}$  a été déposée (dépôt direct).

Cet actinide a été choisi car il décroît par fission spontanée avec un rapport d'embranchement de 3,09% (décroissance  $\alpha$  à 96,91%). La réponse temporelle de la chambre et ses propriétés de discrimination  $\alpha$ -fission peuvent donc être étudiées sans flux de neutrons incidents (hors accélérateur). Ces mesures, réalisées dans un environnement à bas bruit de fond, reflètent les propriétés intrinsèques du détecteur.

(8). Un câble d'impédance 50  $\Omega$  rajoute environ 100 pF de capacitance par mètre de câble

Les résultats obtenus avec le  $^{252}\text{Cf}$  ayant été satisfaisants, comme nous allons le voir par la suite, nous avons construit une chambre comportant des dépôts d' $^{238}\text{U}$ . Ces derniers ont été réalisés par électrodéposition au sein du laboratoire CACAO<sup>(9)</sup> de l'IPNO<sup>(10)</sup>. Ils présentent un diamètre de 33 mm pour une épaisseur de  $590\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , soit 5 mg par dépôt. Afin de maximiser la quantité de matière dans la chambre, 35 plateaux (titane de  $50\ \mu\text{m}$  d'épaisseur) comportent des dépôts recto-verso. Les deux plateaux constituant les extrémités de la chambre ne comportent qu'un seul dépôt chacun (cf. figure B.12). Nous obtenons donc un total de 360 mg d' $^{238}\text{U}$  répartis sur 37 plateaux (19 cathodes + 18 anodes), regroupés en 9 sorties signal (2 anodes par voie électronique). Des photographies de cette chambre sont présentées en figure B.16.

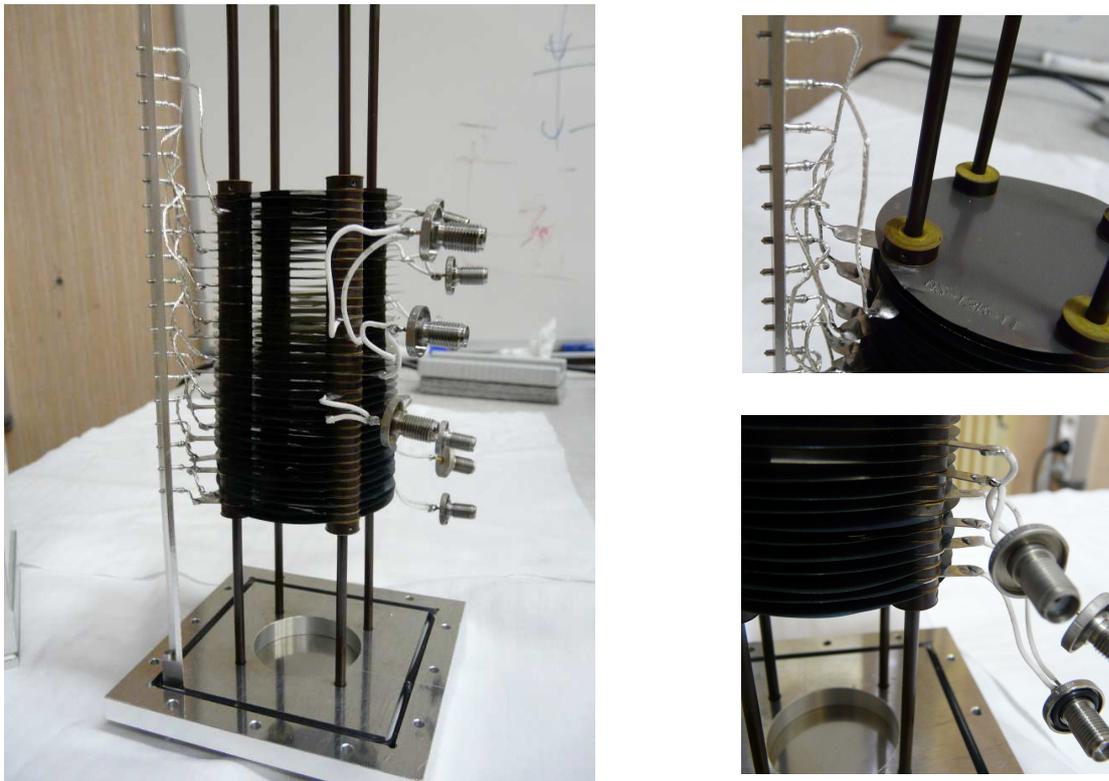


FIGURE B.16 – Photographies de l'intérieur de la nouvelle chambre  $^{238}\text{U}$  : empilement des plateaux. La partie droite de la figure représente un agrandissement des connexions sur les cathodes (*en haut*) et sur les anodes (*en bas*).

### 3.2.1 Temps de réponse et résolution temporelle des chambres à fission

Le temps de réponse de l'ensemble du système de détection, pris entre 10 et 90% de l'amplitude du signal, est la convolution du temps de réponse de la chambre, qui dépend de l'angle d'émission de la particule, et de celui de l'électronique. Le signal monte en environ 18 ns et a une largeur à mi-hauteur d'environ 600 ns (cf. figure B.17).

(9). Chimie des Actinides et Cibles Radioactives à Orsay

(10). Institut de Physique Nucléaire d'Orsay

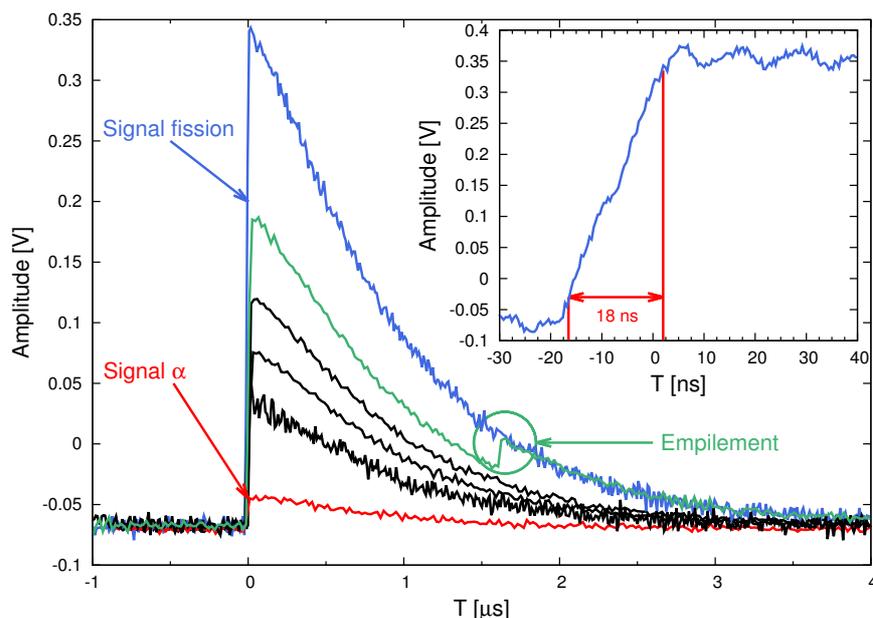


FIGURE B.17 – Exemple de signaux recueillis en sortie du préamplificateur sur la chambre  $^{252}\text{Cf}$ . Les signaux de grande amplitude correspondent à des événements fission et les faibles amplitudes aux désintégrations  $\alpha$ . L’encart correspond à un agrandissement de la zone du début du signal et illustre le temps de montée d’environ 18 ns accessible sur les nouvelles chambres à fission. Le signal vert illustre le phénomène d’empilement.

Afin d’estimer la résolution temporelle des chambres, j’ai mesuré le temps de vol des  $\gamma$ -prompts de fission à l’aide d’un scintillateur inorganique de type  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$  ( $\varnothing 1,5'' \times 1,5''$ ) [36]. J’ai choisi ce détecteur en raison de son excellente résolution en temps (de l’ordre de 370 ps), que j’avais précédemment déterminée (cf. section 3.3 page 108). La mesure du temps de vol est déclenchée par le signal provenant de la chambre à fission et arrêtée lors de la détection d’un photon par le scintillateur. Les  $\gamma$  ayant tous la même vitesse dans l’air, le spectre mesuré devrait présenter un fin pic de coïncidence. En raison des effets de résolution, le temps de vol mesuré présente une distribution ayant une largeur de l’ordre de la nanoseconde (cf. figure B.18). La largeur de cette distribution correspond à la résolution en temps de la mesure et peut être estimée en ajustant une fonction gaussienne, en rouge sur la figure B.18, sur le spectre expérimental. Or, cette résolution est la somme quadratique de la résolution du  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ , qui est connue, et de la résolution de la chambre à fission.

Les résolutions obtenues, tant sur les nouvelles chambres à fission que sur l’ancienne chambre  $^{238}\text{U}$ , sont résumées dans le tableau B.4.

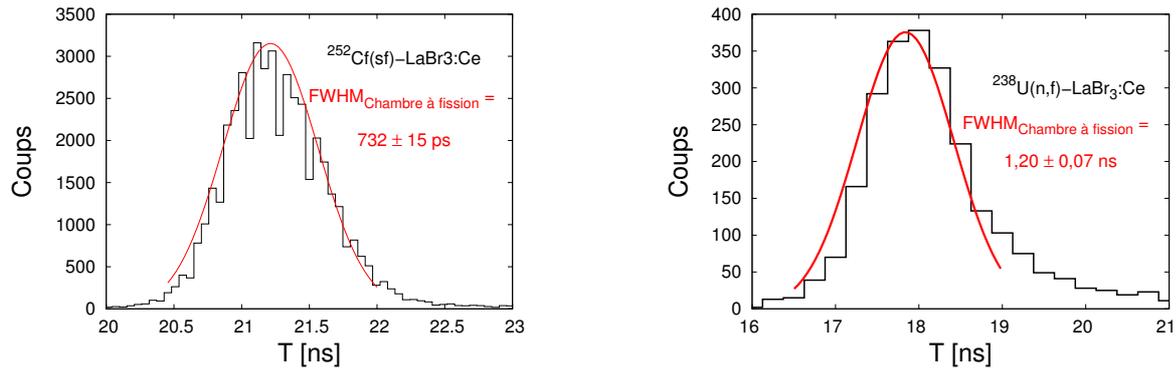


FIGURE B.18 – Spectres temps de vol des  $\gamma$ -prompts mesurés avec un LaBr<sub>3</sub>:Ce sur la chambre  $^{252}\text{Cf}$  (à gauche) et la chambre  $^{238}\text{U}$  (à droite). Ces spectres permettent de mesurer la résolution en temps des nouvelles chambres.

TABLEAU B.4 – Résolution en temps des chambres à fission.

Chambre	FWHM [ns]
$^{252}\text{Cf}$	$0,73 \pm 0,02$
$^{238}\text{U}$	$1,20 \pm 0,07$
Ancienne $^{238}\text{U}$	$4,83 \pm 0,12$

Les nouvelles chambres présentent une résolution au moins 4 fois meilleure que celle de l'ancien modèle. La résolution obtenue sur la nouvelle chambre  $^{238}\text{U}$  est légèrement moins bonne que celle obtenue sur la chambre  $^{252}\text{Cf}$ . En effet, les dépôts sont de plus grande dimension, et une sortie de préamplificateur correspond à deux anodes (au lieu d'une sur la chambre  $^{252}\text{Cf}$ ). Il y a donc plus de dispersion sur le temps de montée des signaux.

### 3.2.2 Mesure de la qualité de la discrimination $\alpha$ -fission

Comme on peut le constater en figure B.17, l'amplitude du signal dépend principalement de la nature de la particule ionisante. La discrimination  $\alpha$ -fission est donc obtenue en numérisant l'amplitude du signal après sa mise en forme. Le temps de réponse de la chambre étant très court (cf. section 3.2.1), la constante de mise en forme est fixée à 25 ns.

Quelle que soit la chambre ( $^{252}\text{Cf}$  ou  $^{238}\text{U}$ ), le spectre obtenu présente trois zones (cf. figure B.19) : (1) une zone de faible amplitude correspondant aux désintégrations  $\alpha$ , (2) une zone de forte amplitude correspondant aux fragments de fission et (3) une région où les zones (1) et (2) se recouvrent en raison de pertes d'énergie dans les dépôts, de distribution angulaire d'émission et de phénomènes d'empilement (cf. section 1.2, page 56).

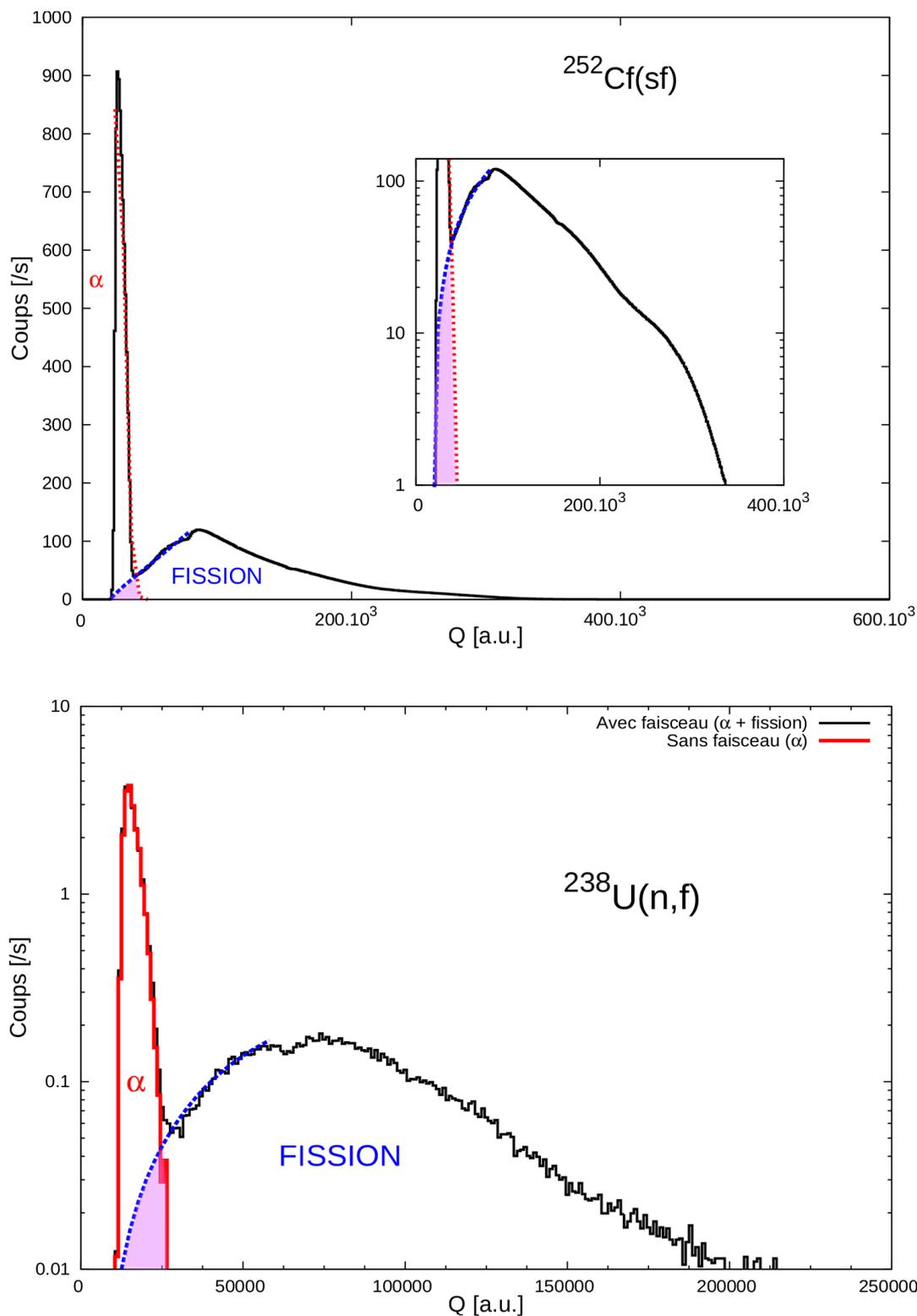


FIGURE B.19 – Discrimination  $\alpha$ -fission des chambres  $^{252}\text{Cf}$  (*en haut*) et  $^{238}\text{U}$  (*en bas*). Des fonctions ont été ajustées sur les distributions de manière à estimer la zone de recouvrement représentée en violet. Celle-ci correspond à près de 10% du nombre total de fission sur la chambre  $^{252}\text{Cf}$  contre seulement 2,5% sur la chambre  $^{238}\text{U}$ .

L'efficacité de détection de la chambre n'est pas connue. Ainsi, afin d'estimer la qualité de la discrimination, j'ai ajusté des fonctions, représentées en pointillés sur la figure B.19, sur les zones correspondant aux  $\alpha$  (demi-gaussienne) et aux fragments de fission (polynôme du second degré). Bien qu'il soit possible pour l' $^{238}\text{U}$  de recueillir un spectre ne comportant que la composante  $\alpha$ , j'ai utilisé pour les deux chambres ( $^{252}\text{Cf}$  et  $^{238}\text{U}$ ) les spectres présentant les deux zones d'intérêt ( $\alpha$  et fission). Les fonctions ainsi ajustées permettent d'extrapoler l'allure des distributions  $\alpha$  et fission dans la zone de recouvrement, et donc d'obtenir une estimation de la quantité de fissions « perdues ». La chambre  $^{252}\text{Cf}$  présente une zone de recouvrement correspondant à environ 10% du nombre total de fissions, contre seulement 2,5% pour l' $^{238}\text{U}$ . Cela s'explique par le fait que le dépôt de  $^{252}\text{Cf}$  contient des traces de nitrates, qui viennent diminuer la qualité de la discrimination (perte d'énergie des fragments de fission).

L' $^{238}\text{U}$  ne fissionne que lorsqu'il est exposé à un flux de neutrons. Ainsi, un spectre enregistré sans neutrons incidents permet d'obtenir la forme de la distribution  $\alpha$  (distribution rouge sur la partie basse de la figure B.19). Celle-ci peut alors être soustraite au spectre obtenu sous faisceau (distribution noire sur la partie basse de la figure B.19), de manière à ne conserver que la composante fission de ce dernier. La zone de recouvrement est obtenue en faisant la somme des composantes  $\alpha$  et fission puis en y retranchant le spectre enregistré. La part de fission perdue ainsi estimée est de 2,3% du nombre total de fissions. Cette valeur est en bon accord avec celle estimée à partir de l'ajustement de fonctions sur les distributions, validant ainsi cette méthode.

Comme évoqué précédemment, la nouvelle chambre  $^{238}\text{U}$  présente une spécificité : des dépôts sont présents sur les anodes *et* les cathodes afin de maximiser la quantité d'actinide utilisée. Lorsque les  $\alpha$  ou les fragments de fission sont émis par les dépôts situés sur une anode, les électrons résultants de l'ionisation du gaz sont créés à proximité de cette dernière. Avant d'être collectés, ils parcourent donc une distance plus courte dans l'espace de détection, ce qui implique une charge  $Q$  plus faible que lors d'une émission par un dépôt situé sur une cathode. La discrimination  $\alpha$ -fission est alors moins aisée à réaliser.

Afin d'estimer la perte de discrimination résultant de l'utilisation de cette configuration avec des dépôts sur les anodes et les cathodes, nous avons monté une voie de la chambre dans une configuration « anodes neutres » (dépôts uniquement sur les cathodes). Les résultats de la discrimination dans ces deux configurations sont présentés en figure B.20. Dans une configuration où les dépôts ne sont réalisés que sur les cathodes, la zone de recouvrement est d'environ 0,2%, contre 2,5% pour des dépôts sur anodes et cathodes. La présence de dépôts sur l'anode réduit donc les capacités de discrimination de 2,3% par rapport à une configuration « anodes neutres ». Celles-ci restent cependant bien supérieures à celles accessibles avec l'ancienne chambre (zone de recouvrement de plus de 20%).

Ainsi que nous l'avons évoqué au paragraphe 2.3, pour les mesures nécessitant une grande précision en temps, nous avons utilisé un module numérique dédié à l'intégration du signal. La zone de recouvrement entre  $\alpha$  et fission est alors estimée à 2,9%.

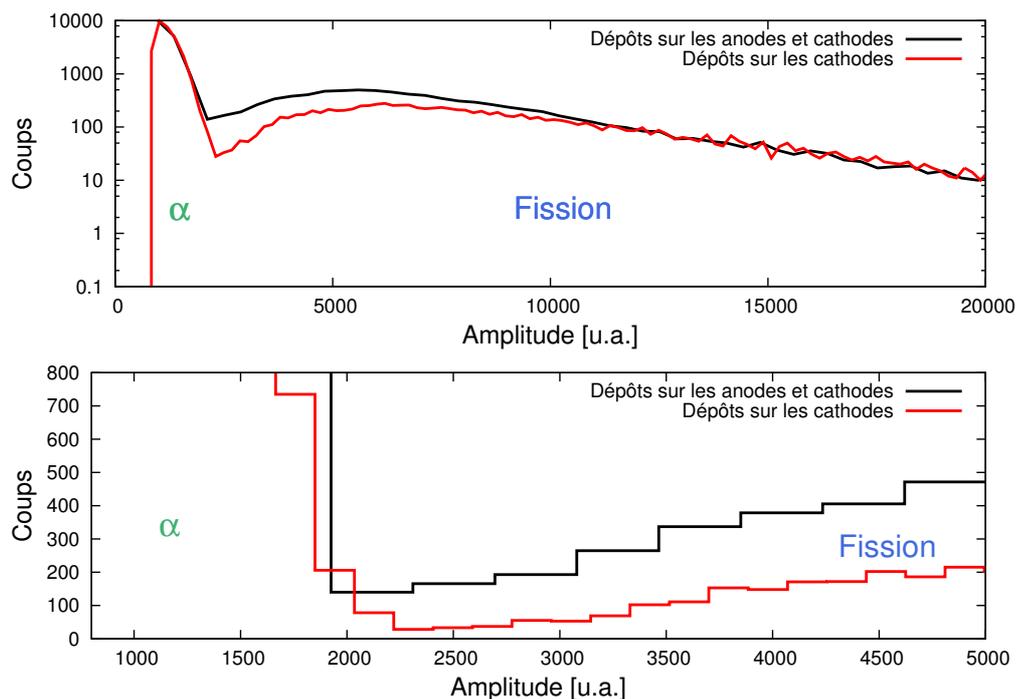


FIGURE B.20 – Discrimination  $\alpha$ -fission de la nouvelle chambre  $^{238}\text{U}$  dans le cas de dépôts sur les cathodes et de dépôts sur anodes et cathodes. Le bas de la figure représente un agrandissement de la zone de recouvrement. Celle-ci est de 0,2% pour une configuration avec dépôts uniquement sur les cathodes et de 2,5% pour une configuration avec dépôts sur anodes et cathodes.

### 3.2.3 Distorsions sur le spectre en énergie des neutrons prompts

Les matériaux constitutifs de la chambre à fission induisent des distorsions sur le spectre neutron que nous cherchons à mesurer. Ces dernières ont deux composantes : une composante liée à la diffusion des neutrons incidents sur le corps de la chambre, et une composante liée à l'interaction des neutrons de fission dans les matériaux de la chambre avant qu'ils ne parviennent aux détecteurs. Ces deux composantes ont été étudiées à l'aide de simulations MCNPX [37] dédiées.

#### Diffusion de neutrons incidents sur le corps de la chambre

Les chambres à fission ont été conçues afin d'être utilisées tant sur des installations produisant un flux de neutrons collimaté (WNR à Los Alamos, NFS au GANIL, etc.) que sur des installations produisant des neutrons dans  $4\pi$  (Van de Graaff 4 MV à Bruyères-le-Châtel, Van de Graaff 7 MV à Geel, etc.).

La diffusion des neutrons incidents sur le corps de la chambre a été étudiée pour ces deux types de configurations. Le terme source de neutrons est modélisé par une source cylindrique, monoénergétique, avec une énergie variant de 1 à 15 MeV par pas de 1 MeV.

Dans le cas d'un flux de neutrons collimaté, le diamètre de la source MCNPX est fixé à 33 mm (cf. partie supérieure de la figure B.21). En effet, dans cette configuration, le faisceau ne couvre que l'angle solide sous-tendu par les dépôts. Ainsi, seules les

fenêtres d'entrée/sortie en titane et les feuilles sur lesquelles les dépôts ont été réalisés contribuent à la diffusion.

Dans le cas contraire, l'intégralité du corps de la chambre contribue à la diffusion des neutrons. Le diamètre de la source MCNPX est donc fixé à 140 mm (cf. partie inférieure de la figure B.21), de manière à simuler une irradiation de l'intégralité du corps de la chambre.

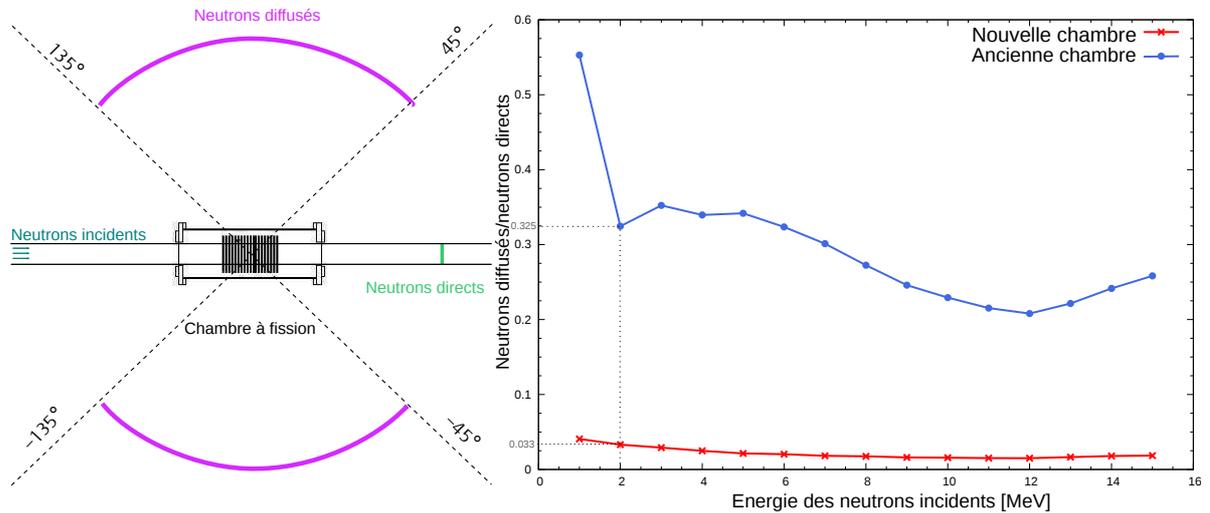
La diffusion est étudiée en regardant le rapport entre le nombre de neutrons diffusés sur le nombre de neutrons incidents à des angles compris entre  $45^\circ$  et  $135^\circ$ <sup>(11)</sup>. La figure B.21 présente l'évolution de la proportion de neutrons diffusés en fonction de l'énergie neutron incidente.

Les nouvelles chambres permettent, par rapport à l'ancienne chambre, de réduire d'un facteur 10 la proportion de neutrons diffusés pour un flux collimaté (panneau supérieure) et d'un facteur 2,5 pour un flux non collimaté (panneau inférieur).

---

(11). Angles auxquels sont placés les détecteurs neutrons lors des mesures de PFNS

### Flux collimaté sur les dépôts



### Flux non collimaté

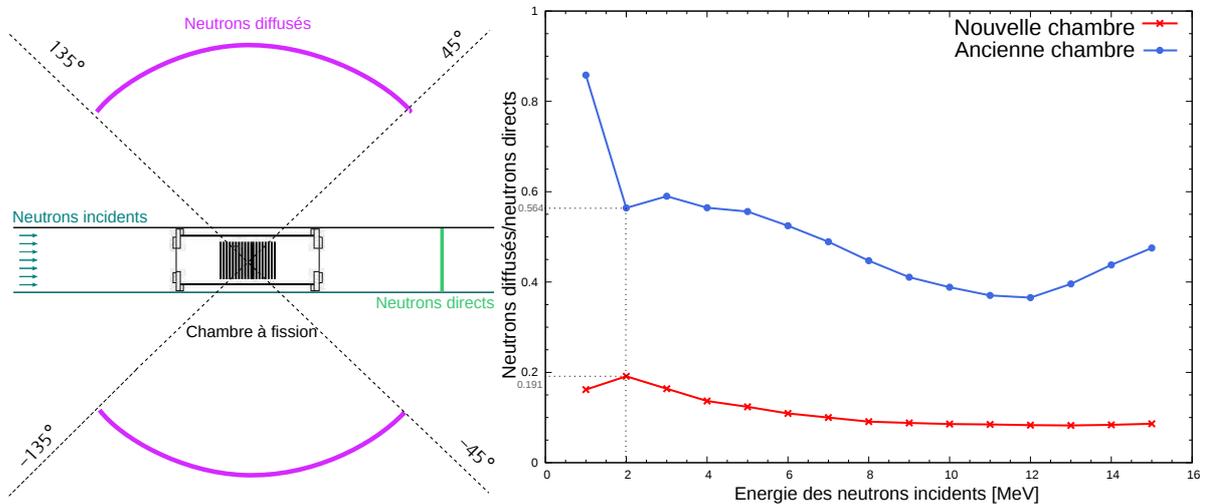


FIGURE B.21 – Proportion de neutrons incidents diffusant sur le corps de la chambre à fission pour un flux collimaté (*en haut*) et pour un flux non collimaté (*en bas*). Les nouvelles chambres permettent de réduire d'un facteur 10 la proportion de neutrons diffusés dans le cas d'un flux de neutrons collimaté et d'un facteur 2,5 dans le cas d'un flux non collimaté.

Le tableau B.5 présente une estimation de la proportion de neutrons diffusés en coïncidence avec un événement fission. Les calculs ont été réalisés, pour chaque type de chambre, pour un flux de neutrons de  $10^7$  n/s/sr et d'énergie 2 MeV. Le centre des dépôts est considéré placé à 10 cm de la cible de production. L'ancienne chambre est supposée contenir 14 g d' $^{238}\text{U}$  contre 360 mg dans la nouvelle. Seuls les neutrons diffusés émis dans une fenêtre de 500 ns après un événement fission contribuent à la distorsion du spectre en énergie des neutrons prompts. Cette valeur de fenêtre correspond à celle utilisée lors des expériences détaillées en partie C. Elle permet d'enregistrer la totalité du spectre temps de vol plus une part de bruit de fond. Cette dernière sera par la suite utilisée pour estimer la composante de bruit de fond non corrélé à soustraire.

TABLEAU B.5 – Estimation de la proportion de neutrons diffusés en coïncidence avec une fission lors des mesures de PFNS en supposant un flux de neutrons de 2 MeV et de  $10^7$  n/s/sr. Les dépôts sont placés à 10 cm de la cible de production et la fenêtre de coïncidence est de 500 ns. Le nombre de neutrons diffusés en coïncidence est obtenu en multipliant le nombre de neutrons diffusés par seconde par le taux de fission et par la durée de la fenêtre de coïncidence.

	Ancienne chambre		Nouvelle chambre	
Angle solide (sr)	0,39		0,09	
Taux de fission (/s)	18 918		483	
Neutrons prompts (/s)	51 078		1304	
Flux collimaté	Oui	Non	Oui	Non
Diffusés/Directs	0,325	0,564	0,033	0,191
Neutrons diffusés (/s)	$1,25 \times 10^6$	$2,17 \times 10^6$	$28 \times 10^3$	$163 \times 10^3$
Neutrons diffusés en coïncidence (/s)	11 824	20 526	6,82	39,5
Part de neutrons diffusés en coïncidence (%)	18,8	28,7	0,5	2,9

Avec les nouvelles chambres, dans le cas le plus défavorable (flux non collimaté), moins de 3% des neutrons détectés en coïncidence avec un événement fission sont dus à une diffusion des neutrons incidents sur le corps de la chambre à fission, contre au mieux (faisceau collimaté) près de 20% avec l'ancienne chambre.

### Distorsion du spectre en énergie des neutrons de fission

La distorsion sur le spectre neutron a été étudiée en simulant un spectre de neutrons de fission (distribution de Watt) au centre de la chambre. Des détecteurs neutrons étaient placés à  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$ . L'axe de référence est l'axe longitudinal de la chambre. Le spectre temps de vol obtenu sur ces détecteurs est ensuite converti en énergie puis divisé par la distribution incidente. Ces résultats sont présentés en figure B.22 et comparés à ceux issus de simulations avec l'ancienne chambre.

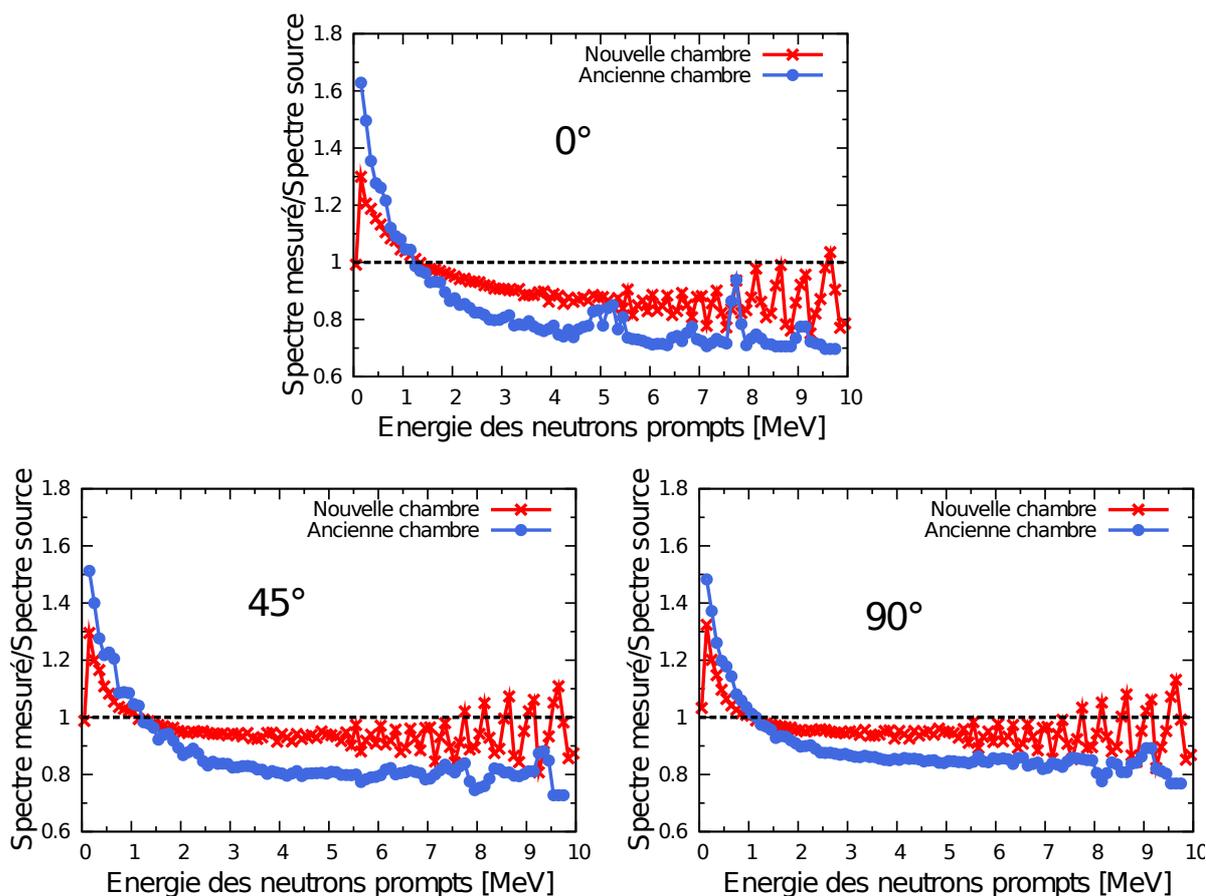


FIGURE B.22 – Distorsion calculée du spectre en énergie des neutrons prompts selon l'angle auquel est placé le détecteur.  $0^\circ$  correspond à l'axe longitudinal de la chambre à fission.

Dans les deux cas, la distorsion est maximale à  $0^\circ$ . En effet, c'est à cet angle que les neutrons traversent le plus de matière avant de parvenir au détecteur. En considérant une source placée au centre de la chambre, les neutrons traversent en moyenne  $18 \text{ plateaux} \times 50 \mu\text{m} = 0,9 \text{ mm}$  de titane dans les nouvelles chambres, et pour l'ancienne chambre,  $50 \text{ plateaux} \times 20 \mu\text{m} = 1 \text{ mm}$  d'acier inoxydable. La distorsion est minimale à  $90^\circ$ , où la quantité de matière traversée est la plus faible : pour la nouvelle chambre,  $1,5 \text{ mm}$  d'aluminium et pour l'ancienne  $5 \text{ mm}$  d'acier inoxydable. Aux angles intermédiaires, la distorsion dépend de la quantité de matière traversée.

Pour des énergies neutrons supérieures à  $1 \text{ MeV}$ , les nouvelles chambres à fission permettent de réduire les distorsions de  $10\%$  à  $0^\circ$  et à  $45^\circ$  et d'environ  $5\%$  à  $90^\circ$ . Pour les mesures de PFNS, les détecteurs neutrons devront être placés dans un intervalle allant de  $45^\circ$  à  $135^\circ$  autour de la chambre. Celle-ci étant symétrique, étudier la distorsion sur les spectres mesurés à cet intervalle revient à étudier la distorsion entre  $45^\circ$  et  $90^\circ$ . Ainsi qu'on peut le voir en figure B.22, pour de tels angles celle-ci est faible (inférieure à  $10\%$ ) pour des énergies neutrons supérieures à  $500 \text{ keV}$ . En deçà, elle reste de l'ordre de  $30\%$  (à comparer aux  $80\%$  obtenus sur les anciennes chambres à fission).

### 3.2.4 Synthèse des performances et axes d'amélioration

Ce travail de thèse a permis de caractériser la réponse des nouvelles chambres et d'évaluer l'adéquation de leurs performances quant aux trois points essentiels pour la mesure précise de PFNS.

La résolution en temps a été largement améliorée et est considérée comme satisfaisante. Elle est d'environ 1 ns à mi-hauteur contre près de 5 ns auparavant. La discrimination  $\alpha$ -fission est maintenant excellente avec près de 98% des fissions discriminées, contre seulement 80% sur l'ancien modèle. Les 2% manquant sont liés à l'épaisseur du dépôt et au choix d'avoir des dépôts tant sur les cathodes que sur les anodes. Enfin, les choix faits en terme de matériaux permettent non seulement de réduire à moins de 3% la part de neutrons diffusés détectés dans une fenêtre de coïncidence de 500 ns après une fission mais également de réduire les distorsions sur le spectre en énergie des neutrons prompts à moins de 10% pour des énergies supérieures à 500 keV et à 30% en deçà.

Afin d'améliorer encore les performances des chambres à fission, plusieurs points sont à étudier dans le futur :

- Dans le cadre des mesures de spectres en énergie des neutrons prompts, il est plus intéressant de maximiser le taux de comptage, quitte à « perdre » des fissions. Mieux vaut donc conserver des dépôts relativement épais, tels ceux actuellement disponibles dans la chambre  $^{238}\text{U}$ . Néanmoins, pour d'autres applications (ex : mesures de section efficace), il est important de discriminer parfaitement entre désintégrations  $\alpha$  et fissions. Réduire l'épaisseur des dépôts ( $< 100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) et n'avoir des dépôts que sur les cathodes permettrait d'améliorer encore la discrimination  $\alpha$ -fission.
- La diffusion des neutrons incidents sur le corps de la chambre et la distorsion sur le spectre en énergie des neutrons prompts peuvent être diminuées en réduisant l'épaisseur des matériaux constitutifs du corps de la chambre : passage de  $100 \mu\text{m}$  à  $50 \mu\text{m}$  d'épaisseur sur les fenêtres d'entrée/sortie en titane et réduction à  $25 \mu\text{m}$  de l'épaisseur des feuilles supportant les dépôts.

Ces chambres, bien que très performantes, ont un inconvénient principal : les excellentes propriétés de réponse présentées ci-dessus sont obtenues au détriment de la quantité d'actinide utilisable.

Pour ceux présentant une faible activité  $\alpha$  (ex :  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ), la limitation est d'ordre géométrique. Au plus 360 mg d'actinide peuvent être placés dans l'enceinte de détection. Pour des actinides ayant une forte activité  $\alpha$  (ex :  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ), l'épaisseur des dépôts doit être fortement réduite. Ainsi, afin de limiter les problèmes d'empilement  $\alpha$ , il n'est pas possible de regrouper deux anodes sur une sortie. Si l'on considère le cas du  $^{239}\text{Pu}$ , une nouvelle chambre ne pourra donc contenir que 40 mg d'actinide au maximum pour un nombre de voies électroniques équivalent.

Afin d'exploiter au mieux les excellentes propriétés des détecteurs développés, il est nécessaire de travailler avec un fort flux de neutrons incidents (cf. chapitre V).

### En résumé...

- Les chambres à fission sont des détecteurs de type chambre d'ionisation. L'actinide étudié est placé au sein même de la chambre.
- Selon la nature de la particule ionisante, le signal recueilli n'a pas la même amplitude. Il est ainsi possible de discriminer entre particules  $\alpha$  et fragments de fission.
- Trois facteurs limitent la qualité de la discrimination  $\alpha$ -fission :
  - La distribution angulaire des émissions.
  - L'épaisseur des dépôts.
  - Les phénomènes d'empilement.
- Le temps de réponse du détecteur est la convolution du temps de réponse de la chambre, qui dépend de l'angle d'émission, et du temps de réponse du circuit préamplificateur.
- De nouvelles chambres à fission ont été développées et caractérisées. Elles permettent d'obtenir :
  - Une résolution en temps satisfaisante ( $\approx 1$  ns à mi-hauteur).
  - Une excellente discrimination  $\alpha$ -fission (près de 98% des fissions discriminées).
  - Peu de diffusion des neutrons induisant la fission (moins de 3% des neutrons détectés).
  - Une faible distorsion du spectre en énergie des neutrons de fission mesuré (de l'ordre de 10% pour des énergies supérieures à 500 keV).



# Chapitre III

## Détecteurs de neutrons

La détection des neutrons peut être réalisée de manières multiples. Pour le type d'expérience que nous souhaitons réaliser, les détecteurs utilisés doivent posséder une excellente résolution en temps (quelques nanosecondes au maximum). Ce point est crucial afin d'obtenir une bonne résolution sur l'énergie mesurée.

Les scintillateurs offrent de telles propriétés temporelles mais présentent l'inconvénient majeur d'être également sensibles aux émissions  $\gamma$ . Par conséquent, un autre point clé à considérer dans le choix des détecteurs neutrons est la possibilité de différencier les événements neutrons des événements  $\gamma$ .

Deux types de scintillateurs ont été retenus : des verres scintillants au lithium pour la détection de neutrons ayant une énergie entre 50 keV et 1 MeV et des scintillateurs organiques (liquides et cristallins) pour des neutrons d'énergie supérieure à 250 keV. La première partie de ce chapitre présente quelques généralités sur les scintillateurs. La seconde partie, après avoir rappelé le mode de fonctionnement des verres au lithium, présente les résultats de mes travaux quant à la caractérisation de la réponse de ces détecteurs. La dernière partie rappelle brièvement les mécanismes de détection des neutrons dans les scintillateurs organiques, avant de présenter une étude comparative des propriétés de réponse de deux types de scintillateurs organiques : des scintillateurs liquides de type BC501A et des scintillateurs cristallins de type paraterphenyle (p-terphenyle).

# 1 Généralités sur les scintillateurs

Les scintillateurs sont composés de matière radio-luminescente. Le déplacement d'une particule chargée ionise le milieu, générant ainsi des photons. Lorsque les scintillateurs sont composés de matière organique (H, C, O, etc.), les photons sont issus de désexcitation moléculaires. Lorsqu'ils sont inorganiques (Si, Al, etc.), dans la majorité des cas, les photons sont émis par le réseau cristallin. Dans cette partie, nous présentons les caractéristiques communes de ces deux types de scintillateurs.

## 1.1 Principe de détection d'un neutron

Le neutron étant dépourvu de charge électrique, sa détection ne peut être qu'indirecte : il doit d'abord mettre en mouvement une particule chargée ou générer un rayonnement électromagnétique. C'est le produit de cette conversion qui sera détecté. Lors des mesures de spectres, les neutrons d'intérêt sont de type rapide ( $E_n \geq 50$  keV). La section efficace de capture est alors très faible et la diffusion élastique sur les noyaux du milieu domine.

Si l'on note  $\theta_R$  l'angle de diffusion du noyau cible, l'énergie de la particule de recul est donnée par :

$$E_R = 4E_n \frac{A}{(A+1)^2} \cos^2(\theta_R) \quad (\text{B.6})$$

Ainsi qu'on peut le voir dans l'équation B.6,  $E_R$  dépend de l'angle de diffusion et n'est donc pas représentative de l'énergie du neutron incident  $E_n$ . Plus le noyau de recul est léger, plus le transfert d'énergie sera grand.

Dans le cas de diffusions sur les atomes d'hydrogène, la moitié de l'énergie du neutron incident est transférée en moyenne et l'énergie  $E_R$  maximale, obtenue pour  $\theta_R = 0$ , vaut  $E_R^{max} = E_n$ .

Par ailleurs, pour des énergies inférieures à 10 MeV, la distribution théorique de l'énergie de recul est rectangulaire avec :

$$P(E_R) = \frac{1}{E_n} \quad (\text{B.7})$$

## 1.2 Réponse en lumière d'un scintillateur

Les particules chargées, mises en mouvement lors du passage du neutron, ionisent le milieu scintillant. Celui-ci, pour se désexciter, va alors émettre des photons.

### Quantité de lumière émise

Le nombre de photons produit dépend du pouvoir d'ionisation de la particule chargée ainsi que de son énergie. Autrement dit, la quantité de lumière émise par unité de longueur  $\frac{dL}{dx}$  est reliée au pouvoir d'ionisation  $\frac{dE}{dx}$  selon la loi semi empirique de Birks [29] :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx} + C \left( \frac{dE}{dx} \right)^2} \quad (\text{B.8})$$

$S$  représente l'efficacité de scintillation et correspond au rapport de l'énergie moyenne du spectre du détecteur sur la quantité d'énergie nécessaire à la création d'un photon.  $kB$  est la constante de Birks et  $C$  un terme correctif.

Ce dernier permet de prendre en compte les phénomènes de quenching. Il s'agit de processus réduisant la quantité de lumière émise par le scintillateur. Les origines de ces processus sont multiples (excitation de molécules non scintillantes, auto-absorption par le scintillateur, impuretés, etc.).

Pour un dépôt d'énergie donné, le pouvoir d'ionisation des électrons étant plus faible que celui d'une particule lourde, la quantité de lumière générée sera beaucoup plus importante. La quantité de lumière émise est inversement proportionnelle à la charge de la particule.

Afin de pouvoir comparer directement les quantités de lumière, sans avoir à considérer la nature de la particule en mouvement, celles-ci sont exprimées en  $\text{MeV}_{ee}$ .

*1  $\text{MeV}_{ee}$  correspond à la quantité de lumière produite par un électron de 1 MeV déposant son énergie dans le milieu.*

La correspondance entre l'énergie de la particule chargée et l'énergie exprimée en  $\text{MeV}_{ee}$  est appelée *courbe de réponse en lumière* du scintillateur. Elle est caractéristique de sa composition et de sa géométrie.

### Conversion du signal lumineux en signal électrique

La quantité de lumière ainsi collectée est transformée en signal électrique à l'aide d'un photo-détecteur de type photomultiplicateur (cf. figure B.23). Ce sont des tubes à vide composés d'une photocathode qui, par effet photoélectrique<sup>(1)</sup>, convertit les photons en photoélectrons. Ceux-ci sont ensuite focalisés par un jeu d'électrodes avant d'être accélérés et multipliés par une série de dynodes portées à des hautes tensions positives croissantes (environ 100 V entre chaque dynode). Celles-ci permettent de multiplier par  $10^6$  le nombre d'électrons (gain typique d'un photomultiplicateur). Ces électrons sont ensuite collectés au niveau de l'anode (dernière dynode), générant ainsi un courant électrique.

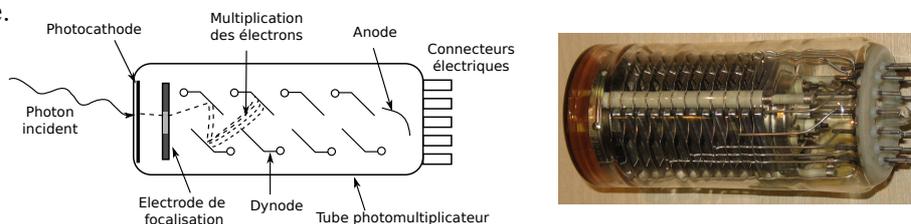


FIGURE B.23 – Schéma et photographie d'un tube photomultiplicateur. Celui-ci permet, par effet photoélectrique, de convertir le signal lumineux en signal électrique puis de l'amplifier.

(1). Le photon incident est totalement absorbé par l'atome sur lequel il a interagi. Ce dernier est alors dans un état excité. Il revient dans son état fondamental en émettant un (photo)électron provenant de ses couches liées.

### 1.3 Efficacité de détection neutron d'un scintillateur

L'efficacité de détection neutron se définit comme étant le rapport du nombre de neutrons enregistrés sur le nombre de neutrons émis par fission. Elle a deux composantes :

1. une composante géométrique ( $\varepsilon_{\text{géométrique}}$ ) qui correspond à la fraction d'événement interceptés géométriquement par le détecteur. Celle-ci se définit comme le rapport entre l'angle solide du détecteur  $\Omega$  et  $4\pi$  (cas d'une émission isotrope). En considérant un détecteur de surface  $S = \pi r^2$  placé à une distance  $L$  de la source avec  $L \gg r$ , alors  $\Omega \approx \frac{S}{L^2}$ .

Cette composante est très faible. Pour un détecteur de 5 cm de diamètre et 5 cm d'épaisseur placé à 1 m de la source, elle vaut  $1,49 \times 10^{-4}$ . Obtenir des mesures avec une faible incertitude statistique impose soit un grand nombre de neutrons incidents (ce qui pour nous revient à maximiser le nombre de fission), soit l'utilisation d'un grand nombre de détecteurs.

2. une composante intrinsèque  $\varepsilon_{\text{intrinsèque}}$  provenant de la section efficace des matériaux composants le détecteur, de l'énergie du neutron, etc. Cette composante correspond au rapport du nombre de neutrons enregistrés sur le nombre de neutrons entrant dans le détecteur. Elle est plus délicate à déterminer car dépendante de nombreux paramètres tels l'énergie du neutron ayant interagi dans le scintillateur, le seuil de détection, etc.

## 2 Scintillateurs inorganiques : verres au lithium

Ainsi que nous l'avons évoqué au début de ce chapitre, il existe deux types de scintillateurs : organique et inorganique. Dans cette partie, nous nous intéresserons plus particulièrement aux scintillateurs inorganiques de type « verre au lithium ». Nous en détaillerons le principe de fonctionnement avant de présenter les résultats de la caractérisation de trois de ces détecteurs, utilisés lors des mesures de PFNS présentées en partie C.

### 2.1 Principe de fonctionnement

Les verres au lithium sont majoritairement composés de silice ( $\text{SiO}_2$ ) additionnée d'oxydes ( $\text{Li}_2\text{O}$  et  $\text{Ce}_2\text{O}_3$ ). Ils sont particulièrement adaptés à la détection de neutrons dans le domaine de basse énergie ( $<2.5$  MeV). En effet, la réaction  ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$  est exothermique avec une chaleur de réaction  $Q$  de 4,8 MeV.

#### 2.1.1 Mécanisme de scintillation

Les particules chargées (hélium et tritium) émises dans la réaction  $(n,t){}^4\text{He}$  sur le  ${}^6\text{Li}$  vont, le long de leur trajectoire, créer des paires (électron,ion). Ces électrons secondaires se déplacent dans le verre, excitant les atomes de cérium ( $\text{Ce}^{3+}$ ) de l'état 4f à l'état 5d (*excitation atomique*) [38]. Ces derniers se désexcitent en émettant des photons (cf. figure B.24), qui sont ensuite convertis en signal électrique par un photomultiplicateur.

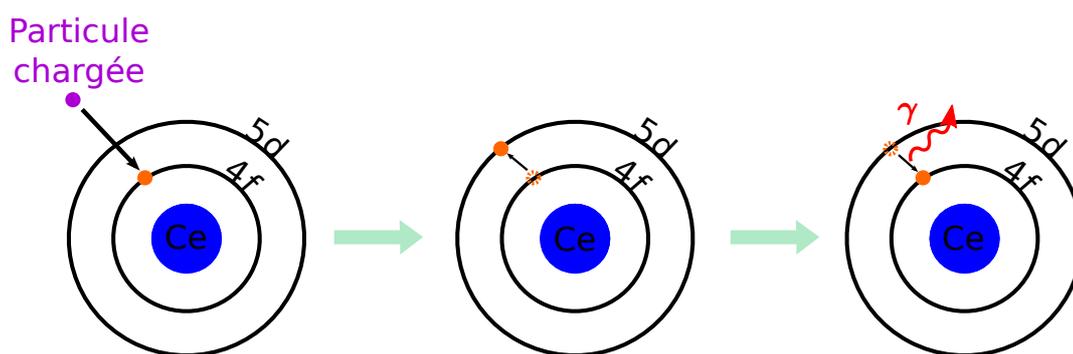


FIGURE B.24 – Mécanisme d'émission lumineuse dans les verres au lithium : la particule chargée excite les atomes de cérium de leur état 4f vers l'état 5d. La désexcitation s'effectue en émettant un photon.

L'ensemble de ces processus s'effectue très rapidement (en quelques nanosecondes), permettant d'obtenir une résolution en temps de l'ordre de la nanoseconde.

### 2.1.2 Réactions parasites et discrimination neutron- $\gamma$

De nombreuses réactions sont susceptibles de se produire au sein du verre. Elles sont à l'origine de signaux « parasites » qui doivent être éliminés lors de l'analyse.

#### Réactions parasites

La réponse théorique des verres au lithium à des neutrons monocinétiques devrait se composer d'un pic à une énergie correspondant à la somme de l'énergie du neutron ayant induit la réaction augmentée des 4,8 MeV du Q de réaction. En pratique, la résolution en énergie des verres au lithium étant mauvaise, ce pic est élargi. Par ailleurs, il s'accompagne souvent d'une seconde distribution à 4,8 MeV, due aux réactions induites par les neutrons thermalisés dans l'environnement (murs, sol, etc.). Ce type de réaction parasite peut être neutralisé en utilisant un blindage approprié (du cadmium par exemple) afin de capturer les neutrons thermiques avant qu'ils n'interagissent dans le verre.

Des réactions parasites (cf. figure B.25) peuvent également avoir lieu entre un neutron et d'autres noyaux du milieu (i.e. : oxygène et silicium). Lorsque l'énergie du neutron incident est supérieure à 3 MeV, les réactions  $(n,\alpha)$  sur l'oxygène deviennent de plus en plus probables, jusqu'à devenir majoritaires au-delà de 4 MeV. Au dessus de 6 MeV, les réactions  $(n,p)$  et  $(n,\alpha)$  sur l'oxygène et le silicium sont largement dominantes. Ces réactions parasites sont gênantes pour notre étude car les signaux qui en découlent se superposent à ceux issus des réactions neutroniques sur le lithium, masquant ainsi les signaux d'intérêt.

#### Discrimination neutron- $\gamma$

Contrairement aux scintillateurs organiques (voir section 3), le signal n'est pas porteur d'une information permettant d'identifier la nature du rayonnement incident. Néanmoins, il reste possible de s'affranchir de la composante du spectre due aux interactions des  $\gamma$  dans le verre.

En effet, une interaction d'un neutron thermique sur un noyau de  ${}^6\text{Li}$  émet une quantité de lumière d'environ 1,5-1,6 MeV<sub>ee</sub> [39]. Un seuil en lumière d'une telle énergie permet donc de s'affranchir d'une grande partie des réactions induites par les  $\gamma$ .

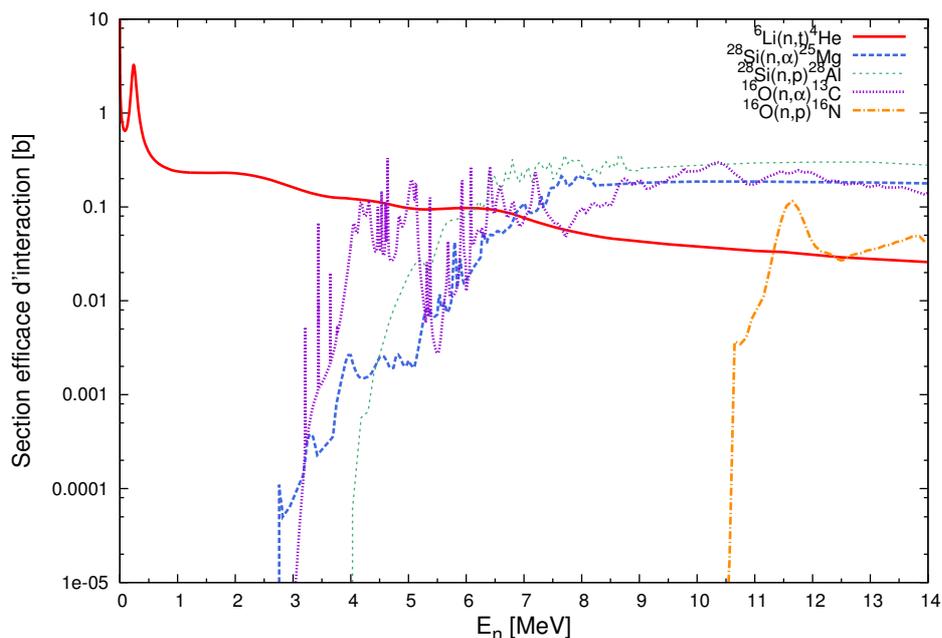


FIGURE B.25 – Sections efficaces d’interaction des principales réactions induites par neutrons dans des verres au  ${}^6\text{Li}$ . Pour des énergies neutrons supérieures à 2 MeV, des réactions parasites sur les atomes du milieu peuvent avoir lieu. Elles deviennent prédominantes au-delà de 6 MeV.

### 2.1.3 Méthode des verres au lithium

Afin de s’affranchir complètement de la composante  $\gamma$  et des réactions parasites, une technique dite « méthode des verres au lithium » a été développée [40]. Elle repose sur l’utilisation de verres appauvris<sup>(2)</sup> en  ${}^6\text{Li}$  (i.e. : avec une composition  $> 99,9\%$  en  ${}^7\text{Li}$ ). En effet, le  ${}^7\text{Li}$  est relativement inerte aux neutrons d’énergie inférieure à 7 MeV. Ce dernier type de verre est donc un outil intéressant afin de réaliser une mesure de la composante  $\gamma$  et des réactions parasites, mentionnées précédemment. Soustraire au spectre mesuré avec le verre  ${}^6\text{Li}$  le spectre mesuré avec le verre  ${}^7\text{Li}$  permet de ne conserver que la composante due aux interactions des neutrons sur les atomes de  ${}^6\text{Li}$ .

Cette dernière technique impose cependant certaines conditions sur les détecteurs utilisés :

1. L’un des verres ne doit contenir que du  ${}^7\text{Li}$  et l’autre doit être fortement enrichi isotopiquement en  ${}^6\text{Li}$ .
2. Les deux verres doivent avoir les mêmes dimensions et la même composition chimique afin qu’ils présentent la même réponse au rayonnement  $\gamma$  et aux réactions nucléaires parasites.

(2). Lithium naturel : 7,4%  ${}^6\text{Li}$  et 92,6%  ${}^7\text{Li}$

3. Les deux détecteurs doivent être utilisés simultanément et dans des positions symétriques par rapport à la source de neutrons.
4. Les deux détecteurs doivent avoir des gains similaires et être correctement étalonnés en énergie à l'aide de sources  $\gamma$ . On parle d'appariement.
5. Cette méthode n'est valable que si les réactions parasites restent dans des proportions raisonnables par rapport aux signaux que l'on souhaite mesurer (problématique de la soustraction de grands nombres pour dégager de petite quantités).

Lors des mesures de PFNS, nous disposons de 4 verres scintillants : 3 de type GS20 <sup>(3)</sup> et 1 de type GS30 <sup>(4)</sup>. Les paragraphes suivants présentent les différentes étapes utilisées afin de déterminer l'efficacité de détection neutron des verres au lithium.

## 2.2 Étude de la réponse aux neutrons des verres au lithium

La réponse aux neutrons des trois verres au lithium de type GS20 a été déterminée en utilisant la technique des verres au lithium et la distribution en énergie des neutrons prompts de fission du <sup>252</sup>Cf.

Les cellules scintillantes ont un diamètre de 2" pour une épaisseur de 0,5" et sont chacune couplées à un photomultiplicateur Hamamatsu de type R6231-100.

### 2.2.1 Dispositif expérimental

Les trois verres au lithium de type GS20 (<sup>6</sup>Li) et le verre de type GS30 (<sup>7</sup>Li) ont été disposés à environ 30 cm de la chambre à fission <sup>252</sup>Cf (présentée au chapitre II page 66). Ainsi qu'on peut le voir en figure B.26, les verres au lithium étaient maintenus sur des tiges filetées et la chambre <sup>252</sup>Cf suspendue à l'aide de fils de fers. L'utilisation de tels supports permet de minimiser la matière à proximité des détecteurs, et donc les interactions parasites. Ce point est essentiel, les verres au lithium étant très sensibles à leur environnement et en particulier aux neutrons thermiques.

Afin de réduire encore la contribution environnementale, l'ensemble du dispositif a été monté dans un hall expérimental à bas bruit de fond situé à Bruyères-le-Châtel, constitué d'une fosse (5,2 m de diamètre pour 3 m de profondeur) avec un plancher métallique mince.

Avant toute mesure, les gains des photomultiplicateurs de chacun des verres ont été alignés et l'étalonnage de la chaîne de mesure réalisé à l'aide de sources  $\gamma$ , afin de pouvoir régler sur chacun des verres le même seuil. Sans cela, la suppression de la composante  $\gamma$  et des réactions parasites ne peut être réalisée correctement.

La mesure du temps de vol était déclenchée par un signal fission provenant de la chambre <sup>252</sup>Cf. Les « stop » étaient fournis par les quatre verres scintillants.

---

(3). Verres contenant 7% en masse d'atomes de lithium dont 95% sont du <sup>6</sup>Li.

(4). Verres contenant 7% en masse d'atomes de lithium dont seulement 0,01% sont du <sup>6</sup>Li.

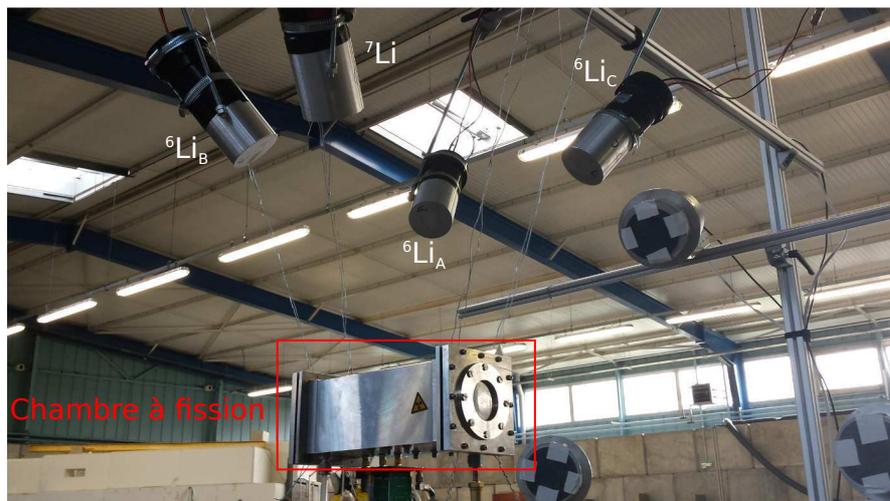


FIGURE B.26 – Photographie du dispositif expérimental utilisé pour étudier la réponse de verres au lithium. Ces derniers sont disposés autour de la chambre à fission  ${}^{252}\text{Cf}$ .

### 2.2.2 Reconstruction du spectre temps de vol neutron

Le  ${}^{252}\text{Cf}$  étant également émetteur  $\alpha$ , un seuil est réglé sur l'amplitude des signaux provenant de la chambre de manière à ne retenir que les événements issus d'une fission. Les spectres temps de vol (cf. figure B.27) sont ensuite reconstruits sur chacun des verres au lithium utilisés. Sur les verres  ${}^6\text{Li}$ , ce spectre présente trois composantes : une composante  $\gamma$ , une composante neutron et une composante de bruit ( $\gamma$  ambiants). Sur le verre  ${}^7\text{Li}$ , seule la composante  $\gamma$  et le bruit sont mesurés.

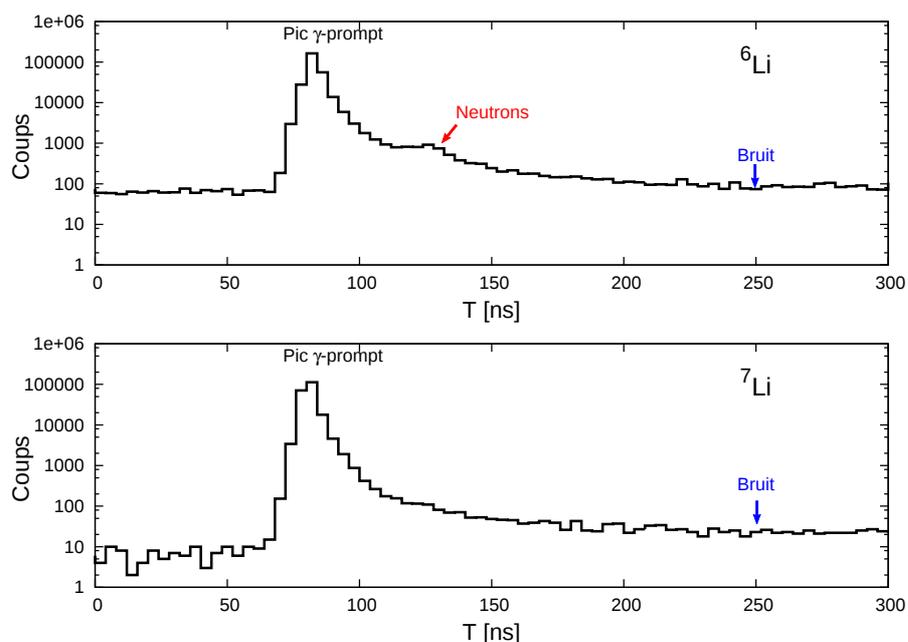


FIGURE B.27 – Spectres en temps de vol brut mesurés sur les verres  ${}^6\text{Li}$  (neutrons +  $\gamma$  + bruit) *en haut* et  ${}^7\text{Li}$  ( $\gamma$  + bruit) *en bas*.

Ainsi que nous l'avons évoqué au paragraphe 2.1.3, les verres  ${}^6\text{Li}$  ne permettent pas de discriminer entre neutrons et  $\gamma$ . La sélection de la composante neutron est usuellement effectuée en soustrayant au spectre temps de vol mesuré sur un verre  ${}^6\text{Li}$  celui mesuré sur le verre  ${}^7\text{Li}$ .

Néanmoins, l'énergie des neutrons considérés est inférieure à 3 MeV (pas de réactions parasites dans le verre) et la mesure a été réalisée dans un environnement à bas bruit de fond. La sélection de la composante neutron peut donc être réalisée au moyen d'un seuil bidimensionnel, en corrélant les informations temps de vol et énergie déposée (cf. figure B.28).

L'énergie déposée est déterminée à partir de l'étalonnage en sources  $\gamma$ . Afin de pouvoir comparer directement les corrélations sur les différents verres, et notamment les corrélations entre les verres  ${}^6\text{Li}$  et le verre  ${}^7\text{Li}$ , ces dernières sont tracées en représentant l'énergie déposée en fonction d'un temps réduit, correspondant à l'inverse de la vitesse de la particule. Celles-ci sont présentées en figure B.28. Les panneaux (a), (b) et (c) de la figure représentent les corrélations obtenues sur les verres  ${}^6\text{Li}$  et le panneau (d) celle obtenue sur un verre  ${}^7\text{Li}$ .

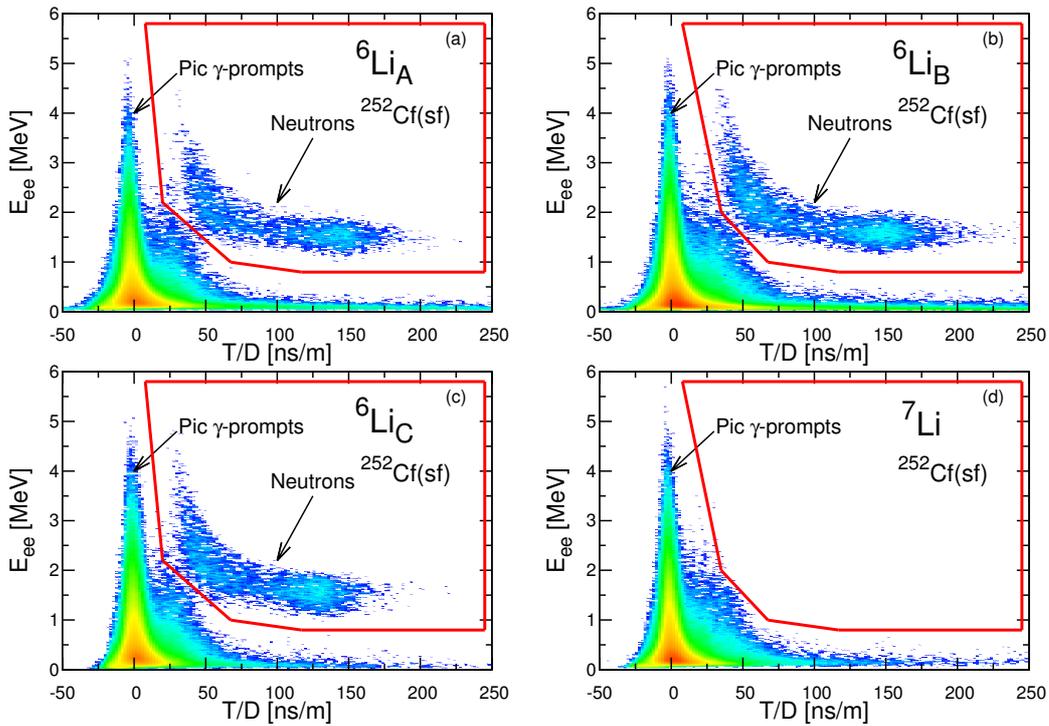


FIGURE B.28 – Corrélations entre l'énergie déposée et un temps réduit sur les verres  ${}^6\text{Li}$  et le verre  ${}^7\text{Li}$ . Le contour indiqué en rouge représente la coupure graphique utilisée pour la sélection des neutrons.

On distingue nettement une zone correspondant au pic  $\gamma$  (dont les prompts), visible sur les quatre figures de corrélation, ainsi que, sur les panneaux (a), (b) et (c) une distribution correspondant aux neutrons, et donc non visible sur la corrélation du verre  ${}^7\text{Li}$ . Le contour représenté en rouge correspond à la coupure graphique réalisée pour reconstruire le spectre temps de vol sur les différents verres.

Les distributions en temps de vol de chacun des détecteurs sont reconstruites en prenant en compte ce seuil bidimensionnel. Dans le cas présent, il n'est pas nécessaire de soustraire le spectre temps de vol obtenu sur le verre  $^7\text{Li}$  aux spectres obtenus sur les verres  $^6\text{Li}$ . En effet, comme on peut le voir sur le panneau (d) de la figure B.28, il n'y a pas de réactions parasites dans la zone sélectionnée comme correspondant aux neutrons, l'énergie de ceux-ci étant trop faible. La discrimination neutron- $\gamma$  étant déjà réalisée à l'aide du seuil bidimensionnel, le spectre obtenu sur les verres  $^6\text{Li}$  correspond uniquement à la composante neutron. Le spectre temps de vol obtenu sur un verre  $^6\text{Li}$  est représenté en figure B.29.

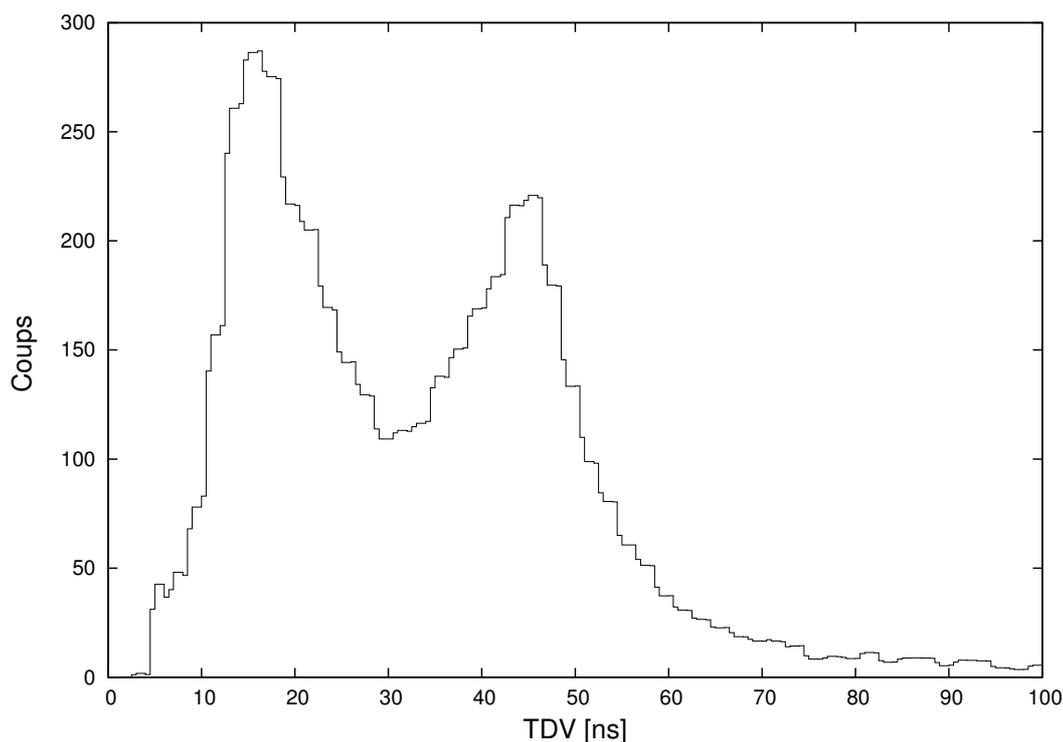


FIGURE B.29 – Composante neutron du spectre en temps de vol mesuré sur l'un des verres  $^6\text{Li}$ .

Le pic situé à environ 45 ns correspond à une résonance sur la courbe d'efficacité de détection des verres au lithium (résonance sur la section efficace de la réaction  $^6\text{Li}(n,t)^4\text{He}$  à 240 keV).

### 2.2.3 Efficacité intrinsèque de détection

L'efficacité intrinsèque de chacun des verres  ${}^6\text{Li}$  est obtenue en convertissant en énergie le spectre temps de vol ainsi obtenu et en le divisant par l'évaluation de Mannhart [20], standard recommandé par l'AIEA pour la distribution en énergie des neutrons prompts du  ${}^{252}\text{Cf}$ .

Les efficacités obtenues sur chacun des verres sont présentées en figure B.30.

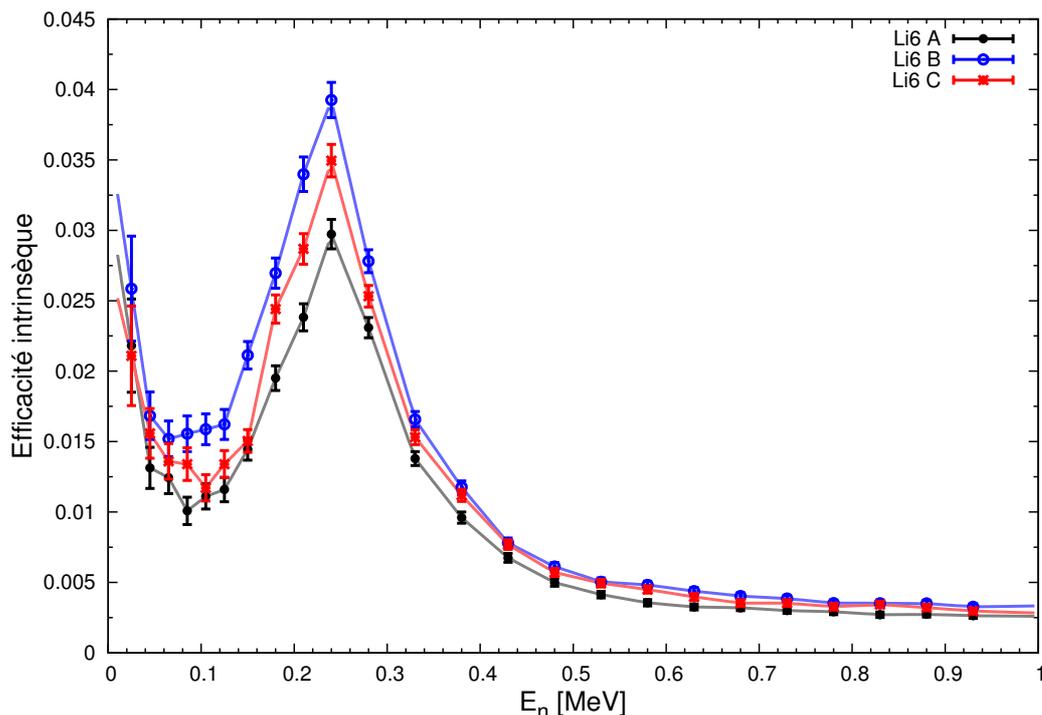


FIGURE B.30 – Efficacité intrinsèque différentielle des verres  ${}^6\text{Li}$ .

On retrouve sur chacune des courbes la résonance à 240 keV issue des réactions  ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ . L'efficacité de détection intrinsèque de ces détecteurs est très faible, de l'ordre de quelques pourcents, et décroît rapidement pour des énergies neutrons supérieures à 500 keV. Les différences d'efficacité intrinsèque observées sur les différents détecteurs sont liées à des efficacités de collection de lumière différentes.

L'efficacité de détection étant très faible pour des neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV, pour mesurer des neutrons d'énergie supérieure, nous avons fait le choix d'utiliser des scintillateurs organiques, qui seront présentés dans la partie 3.

## 3 Scintillateurs organiques

Ainsi que nous venons de le voir, les verres au lithium sont très intéressants pour la détection de neutrons d'énergie inférieure à 1 MeV. Cependant, au-delà, leur efficacité intrinsèque de détection chute drastiquement.

Afin de mesurer des neutrons prompts de fission émis à des énergies supérieures à 1 MeV avec une bonne efficacité de détection, nous avons choisi d'utiliser des scintillateurs organiques. Ceux-ci permettent une mesure à partir d'environ 500 keV et offrent donc une zone de recouvrement entre 500 keV et 1 MeV avec les verres au lithium. Cette section est consacrée à la présentation de leur mode de fonctionnement. Nous présentons ensuite les résultats d'une étude sur l'optimisation de leur capacité à discriminer entre neutrons et  $\gamma$ , avant de comparer les performances de deux types de scintillateurs organiques : un scintillateur liquide de type BC501A et un scintillateur cristallin de type p-terphenyle.

### 3.1 Généralités

Les scintillateurs organiques sont des composés aromatiques sous forme solide (cristaux, plastiques) ou liquide.

Les cristaux (anthracène, stilbène, p-terphenyle, etc.) possèdent d'excellentes propriétés de scintillation. L'anthracène est le scintillateur ayant le meilleur rendement lumineux. Il est utilisé comme référence pour la quantification du rendement lumineux des autres scintillateurs. Cependant, il est difficile et coûteux de produire de grands volumes de cristaux. Par ailleurs, en raison de leur structure cristalline, ces détecteurs présentent des propriétés de réponse anisotropes et sont très fragiles.

Les liquides (EJ-301/NE213/BC501A, EJ-309, etc.) présentent d'excellentes propriétés de discrimination neutron- $\gamma$  et peuvent être produits dans de grands volumes de manière relativement peu coûteuse. Cependant, les solvants utilisés sont souvent dangereux (inflammables et nocifs, tant pour l'homme que pour l'environnement). Ils doivent donc être manipulés avec précaution.

Tel n'est pas le cas des scintillateurs plastiques (EJ-212, EJ-204, etc.). Ces derniers peuvent également être produits dans de gros volumes à faible coût. Cependant, ils ne permettent pas, sauf quelques rares exceptions (ex : EJ299), de discriminer entre neutrons et  $\gamma$ . Lorsque la discrimination est possible, le seuil est en général assez élevé (de l'ordre de 1 MeV). Les scintillateurs plastiques ne sont donc pas adaptés à nos besoins pour les mesures de PFNS.

Les caractéristiques de ces détecteurs sont résumées dans le tableau B.6.

TABLEAU B.6 – Tableau résumant les avantages et inconvénients des différents types de scintillateurs organiques. Les scintillateurs dont le nom est indiqué en italique sont ceux utilisés au cours de ces travaux de thèse.

Type	Avantages	Inconvénients	Exemples
Cristaux	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Excellent rendement lumineux</li> <li>• Discrimination neutron-<math>\gamma</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Coûteux</li> <li>• Difficilement productibles en gros volumes</li> <li>• Réponse anisotrope</li> <li>• Fragiles</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Anthracène</li> <li>• <i>p-terphenyle</i></li> </ul>
Liquides	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Bon rendement lumineux</li> <li>• Relativement peu coûteux</li> <li>• Productible dans de gros volumes</li> <li>• Discrimination neutron-<math>\gamma</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Solvants qui peuvent être nocifs et dangereux</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• EJ-301 <i>NE213</i> <i>BC501A</i></li> <li>• EJ-309</li> </ul>
Plastiques	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Bon rendement lumineux</li> <li>• Relativement peu coûteux</li> <li>• Productible dans de gros volumes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Pas de discrimination neutron-<math>\gamma</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• EJ-212</li> <li>• EJ-204</li> </ul>

### 3.1.1 Mécanisme de scintillation

Les scintillateurs organiques sont composés de noyaux d'hydrogène et de carbone sur lesquels les particules incidentes (neutrons ou  $\gamma$ ) interagissent.

Pour les  $\gamma$ , cette interaction est essentiellement de type diffusion Compton : le photon diffuse élastiquement sur un électron du milieu et lui transfère une partie de son énergie. Les neutrons, pour des énergies inférieures à 8 MeV, interagissent principalement par diffusion élastique sur les noyaux d'hydrogène. Au delà, d'autres voies de réactions (diffusion inélastique,  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$ ,  $^{12}\text{C}(n,3\alpha)n'$ , etc.) s'ouvrent et les interactions sur le carbone deviennent prédominantes (cf. figure B.31).

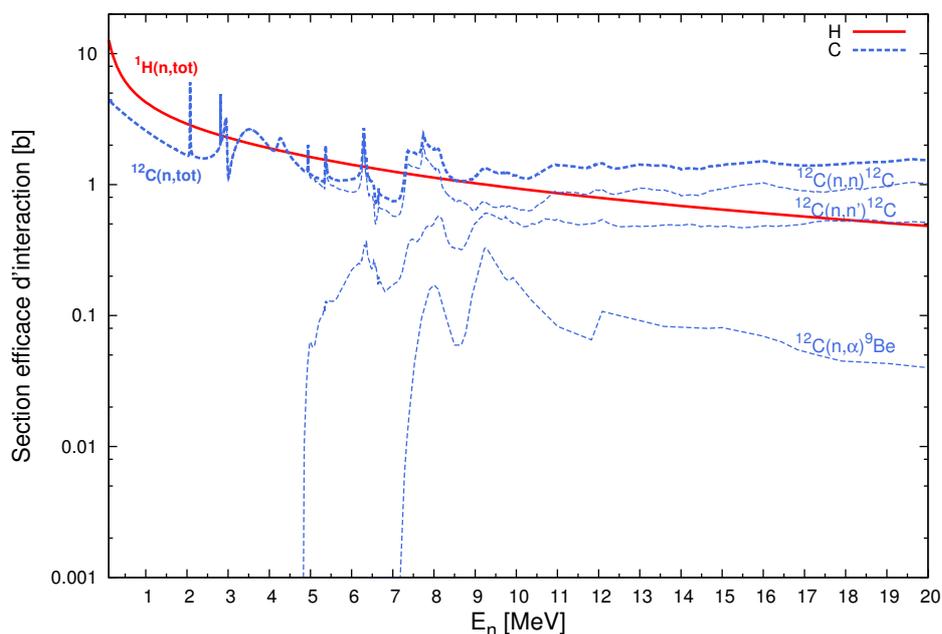


FIGURE B.31 – Sections efficaces différentielles d'interaction des neutrons sur l'hydrogène et le carbone. Pour des énergies neutrons supérieures à 8 MeV, les réactions sur le carbone deviennent prédominantes.

Les particules chargées issues de ces réactions ionisent le milieu du scintillateur. Les molécules sont alors excitées dans un état singulet  $S_n$  (excitation où les électrons sont appariés) ou triplet  $T_n$  (excitation où les électrons sont non appariés). Ces derniers se désexcitent rapidement et de manière non radiative, vers les états  $S_1$  et  $T_1$ .

- L'état  $S_1$  se désexcite ensuite, par émission photonique, vers l'état  $S_0$ , ou l'un des états vibrationnels construits sur ce niveau, en un temps de l'ordre de  $10^{-9}$  s après l'excitation. Ce processus se nomme *fluorescence rapide* et est à l'origine de la composante rapide du signal.
- Les états  $T_1$  s'annihilent deux à deux, ramenant l'une des molécules vers son état  $S_1$ , qui se désexcitera comme décrit au paragraphe précédent, et l'autre vers son état  $S_0$ . Ce processus se nomme *fluorescence retardée* et a un temps caractéristique

de l'ordre de  $10^{-6}$  s. Il contribue à la composante lente du signal. La proportion de cette dernière dépend fortement du pouvoir d'ionisation de la particule incidente.

Plus de détails sur ces processus peuvent être trouvés dans les références [21, 29, 41].

Les deux composantes du signal lumineux sont présentées en figure B.32.

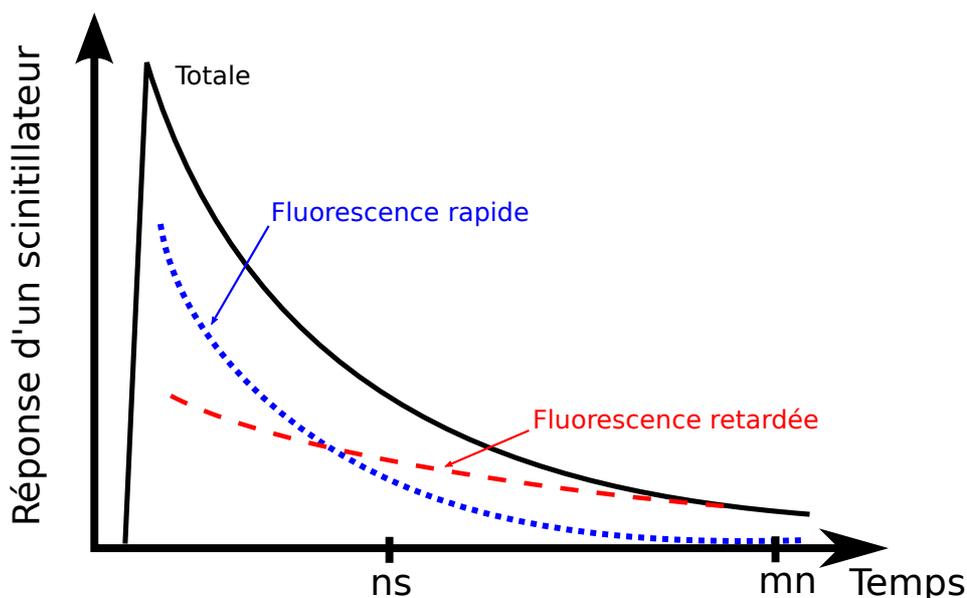


FIGURE B.32 – La réponse d'un scintillateur comporte une composante rapide liée à la fluorescence rapide et une composante lente liée à la fluorescence retardée.

### 3.1.2 Caractéristiques de l'émission lumineuse et discrimination neutron- $\gamma$

Le peuplement des états excités est rapide et leur désexcitation s'effectue en quelques nanosecondes. La réponse des scintillateurs organiques est donc très rapide, ce qui permet d'obtenir une excellente résolution temporelle (de l'ordre de la nanoseconde).

Ainsi qu'indiqué plus haut, les scintillateurs organiques sont sensibles aux neutrons et aux  $\gamma$ . Cependant, une étude sur la forme du signal en sortie du photomultiplicateur permet de discriminer entre ces deux types de rayonnement incident.

En effet, le peuplement des états excités de la molécule dépend du pouvoir d'ionisation des particules chargées. Dans le cas d'un proton de recul, issu d'une interaction entre un neutron et le scintillateur, le pouvoir d'ionisation est grand (i.e. : l'énergie d'excitation est cédée dans un volume restreint). Le degré d'excitation du milieu est donc plus important, favorisant ainsi la formation d'états triplets. Les processus de désexcitation retardés sont, en conséquence, plus probables que lors de l'interaction d'un photon.

Ainsi, en mesurant l'évolution temporelle du signal lumineux, il est possible de déterminer la nature de la particule ayant interagi dans le scintillateur (cf. figure B.33).

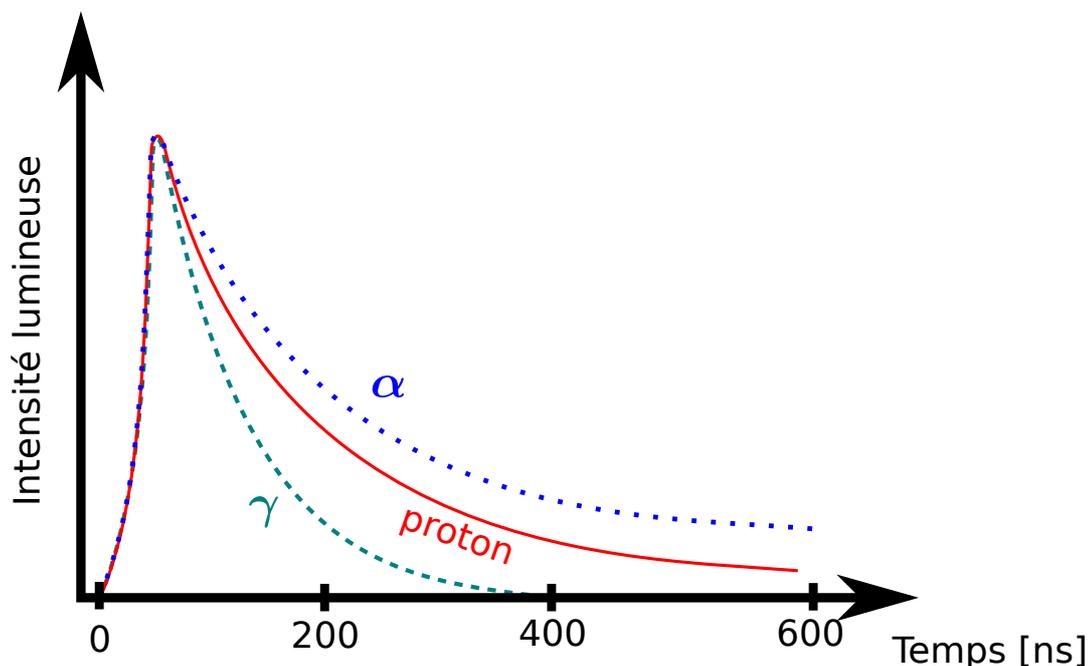


FIGURE B.33 – Évolution de l'intensité lumineuse en fonction du temps pour différents types de particules déposant leur énergie dans un scintillateur organique. Plus le pouvoir d'ionisation de la particule est élevé, plus les processus de désexcitation retardés sont probables en proportion et la composante lente du signal importante par rapport à la totalité du signal.

La qualité de la discrimination dépend de la forme et de la taille du scintillateur mais également du rendement quantique du photomultiplicateur. Plus le scintillateur est grand, plus le risque que la lumière soit atténuée dans le milieu avant d'atteindre le photomultiplicateur est élevé. En outre, la dispersion du temps de collecte des photons est à l'origine d'une dispersion de la collecte de lumière. La dégradation de cette dernière est donc globale. Cela peut se révéler particulièrement gênant pour la détection des neutrons de basse énergie, qui génèrent une faible quantité de lumière.

### 3.2 Optimisation de la discrimination neutron- $\gamma$ sur les scintillateurs organiques

Pour des particules incidentes de basse énergie, la quantité de lumière émise par le scintillateur est faible. Il devient alors difficile de discriminer entre une interaction neutronique et une interaction photonique. La limite de discrimination est en général atteinte pour des énergies neutrons entre 800 keV et 1 MeV.

Afin d'explorer une gamme en énergie plus large (de la centaine de keV à la dizaine de MeV) pour la mesure de spectres, nous avons cherché à abaisser cette limite de discrimination tant sur des scintillateurs cristallins que liquides.

Cette étude, dont les résultats sont présentés ci-dessous, a été réalisée sur deux types de détecteurs :

- Un scintillateur liquide de type BC501A produit par Saint-Gobain [42]. Le détecteur est constitué d'une cellule scintillante de 2" de diamètre pour 2" d'épaisseur couplée à un photomultiplicateur de type Photonis XP2020. Le liquide a une densité de  $0,901 \text{ g.cm}^{-3}$  pour un rapport H/C de 1,212.
- Un scintillateur cristallin de type p-terphenyle commercialisé par Cryos-Beta Ltd. [43]. Le détecteur se compose d'un monocristal de p-terphenyle ( $\text{C}_{18}\text{H}_{14}$ ) dopé au 1,4-diphénylbutadiène, de diamètre 7,5 cm et d'épaisseur 5 cm. La densité est de  $1,23 \text{ g.cm}^{-3}$  pour un rapport H/C de 0,778<sup>(5)</sup>. Le photomultiplicateur utilisé est de type Photonis XP53X2.

Les photographies de ces deux détecteurs sont montrées en figure B.34.

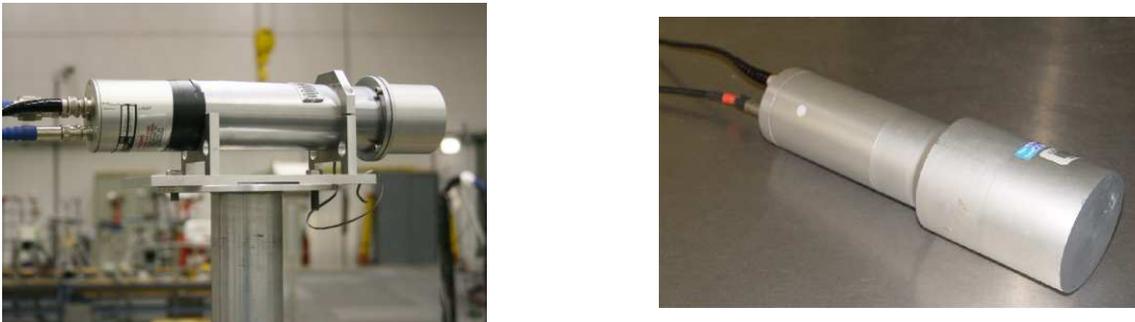


FIGURE B.34 – Photographies des détecteurs BC501A (à gauche) et p-terphenyle (à droite).

### 3.2.1 Utilisation d'un écran en plomb pour atténuer les $\gamma$ de basse énergie

Suivant une idée présentée dans la référence [23], un écran de plomb de 2,5 mm d'épaisseur a été placé devant les scintillateurs. Celui-ci permet d'atténuer le rayonnement  $\gamma$  de basse énergie arrivant sur la cellule scintillante et rend ainsi plus aisée la discrimination neutron- $\gamma$ .

L'effet de cet écran sur l'énergie reconstruite par temps de vol a été étudié à l'aide de simulations MCNPX [37]. Nous avons établi les matrices de corrélation entre l'énergie du neutron source et l'énergie du neutron calculée par temps de vol, en considérant une distance de 1 m, pour une configuration sans et une configuration avec plomb placé devant les scintillateurs. Celles-ci, présentées en figure B.35 sur les panneaux (a) et (b), sont presque identiques dans les deux cas. Le panneau (c) de cette même figure présente une projection sur l'axe de l'énergie calculée par temps de vol. L'utilisation d'un écran de 2,5 mm de plomb devant la cellule ne perturbe pas de manière significative l'énergie neutron mesurée. Néanmoins, pour des épaisseurs de l'ordre de 5 mm, des déformations significatives commencent à apparaître pour des neutrons d'environ 1 MeV.

(5). On notera l'inversion du rapport H/C et de la densité par rapport à un détecteur de type BC501A

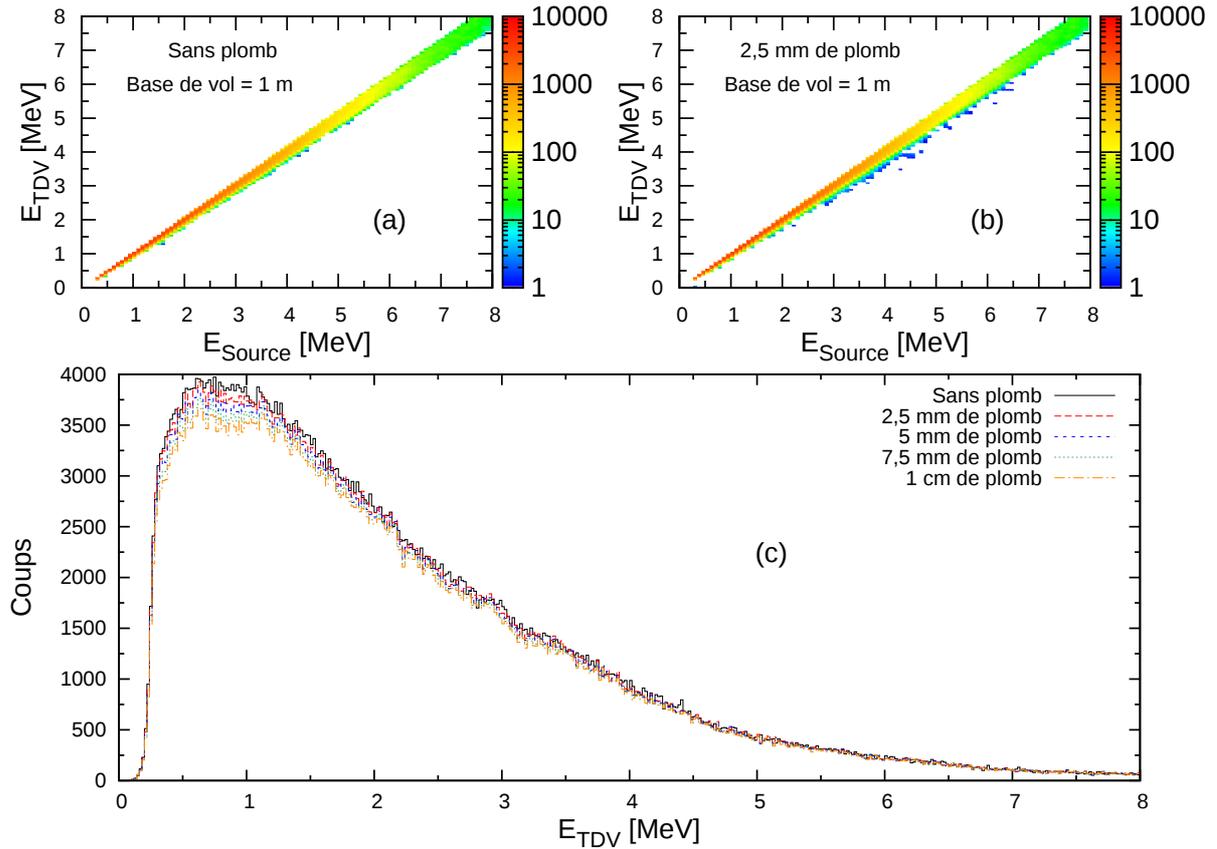


FIGURE B.35 – Effet d'un écran de plomb sur le spectre en énergie des neutrons mesuré par temps de vol : les panneaux (a) et (b) présentent les corrélations entre l'énergie du neutron source et l'énergie déterminée par temps de vol sur une distance de 1 m. Le panneau (a) correspond à une corrélation dans l'air et le panneau (b) à une corrélation avec un écran de plomb de 2,5 mm d'épaisseur placé devant la cellule. Le panneau (c), présente une projection sur l'axe  $E_{TDV}$  pour différentes épaisseurs d'écran. Des effets de distorsions notables commencent à apparaître pour des épaisseurs de l'ordre de 5 mm.

La figure B.36 présente les discriminations neutron- $\gamma$  obtenues expérimentalement dans ces deux configurations. Une projection de la zone délimitée par les traits en pointillés rouges sur l'axe  $Q_{lente}/Q_{tot}$  permet de mettre en évidence l'atténuation des  $\gamma$  de basse énergie.

Afin de mieux estimer l'apport de l'écran de plomb sur la qualité de la discrimination neutron- $\gamma$ , nous avons choisi de calculer un facteur de mérite [29], paramètre représentatif de la séparation entre les distributions neutrons et  $\gamma$ , dans les deux configurations. Pour cela, la somme de deux gaussiennes est ajustée sur chacune des projections présentées sur le panneau (c) de la figure B.36. A partir des valeurs de position ( $P_\gamma$  et  $P_n$ ) et de largeur ( $FWHM_\gamma$  et  $FWHM_n$ ) de ces gaussiennes, le facteur de mérite  $FOM = \frac{|P_\gamma - P_n|}{FWHM_\gamma + FWHM_n}$  est calculé. Sans plomb, celui-ci est de  $1,57 \pm 0,09$  et avec plomb, il vaut  $1,72 \pm 0,07$ . Ces valeurs confirment une légère amélioration de la qualité de la discrimination.

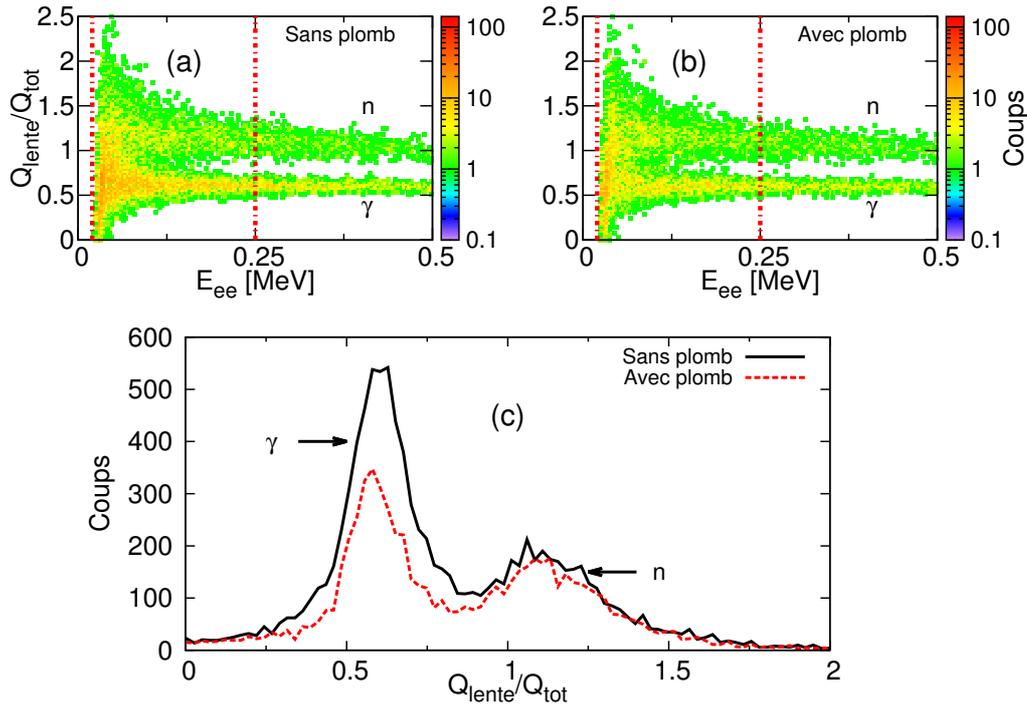


FIGURE B.36 – Effet d’un écran de plomb de 2,5 mm sur le rapport  $Q_{lente}/Q_{tot}$ . Les panneaux (a) et (b) représentent les figures de discrimination obtenues. La composante  $\gamma$  sur le panneau (b) est fortement atténuée par rapport à celle du panneau (a), rendant ainsi plus aisée la discrimination neutron- $\gamma$ . Le panneau (c) est une projection sur l’axe  $Q_{lente}/Q_{tot}$  des figures des panneaux (a) et (b).

### 3.2.2 Optimisation des portes d’intégrations utilisées pour la discrimination neutron- $\gamma$

Rappelons ici que la discrimination entre neutrons et  $\gamma$  est réalisée en étudiant l’évolution de la composante lente du signal en fonction de sa composante totale. Pour cela, le signal est intégré sur plusieurs fenêtres en temps et la discrimination est effectuée en comparant les charges résultantes.

Le système d’acquisition numérique FASTER (voir chapitre IV) permet d’enregistrer les signaux et de rejouer les données hors ligne. Nous avons donc cherché, à partir de ces signaux, à déterminer les portes d’intégration permettant d’obtenir la meilleure séparation entre  $\gamma$  et neutrons de basse énergie.

Pour cela, une source d’AmBe a été placée devant les détecteurs (p-terphenyle et BC501A) étudiés. Les signaux utilisés pour le calcul de charge ont été sauvegardés. Nous avons ensuite développé un algorithme permettant, à partir de ces signaux, de déterminer les portes d’intégrations optimales pour la discrimination neutron- $\gamma$ . Cet algorithme renvoie trois couples de valeurs (retard et durée) de portes d’intégrations :

1. La première porte doit intégrer la totalité du signal afin de récupérer l’information

« énergie déposée » ( $\text{MeV}_{ee}$ ). Elle fournit la charge  $Q_{\text{tot}}$ .

2. La seconde porte est dédiée à l'intégration de la composante lente du signal et donne la charge  $Q_{\text{lente}}$ .
3. Enfin, la troisième porte est laissée entièrement variable. Elle renvoie la valeur  $Q_3$ .

A partir des signaux enregistrés, l'algorithme génère un signal moyen (cf. figure B.37). Celui-ci permet à l'utilisateur de définir quatre plages de variation ciblées, deux par portes d'intégrations. Pour une porte donnée, l'utilisateur rentre en paramètre d'entrée la plage sur laquelle il désire faire varier le début de la porte d'intégration ( $T^{\text{min}}$ ) et la plage sur laquelle il désire faire varier la fin de l'intégration ( $T^{\text{max}}$ ).

A titre d'exemple, dans le cas du détecteur BC501A :

- Le début de la porte réservée à l'intégration de la composante lente du signal était libre de varier entre 0 et 20 ns. La fin de l'intégration pouvait varier entre 20 et 200 ns.
- Le début de la troisième porte pouvait varier entre -30 et 10 ns et sa fin entre 5 et 200 ns.

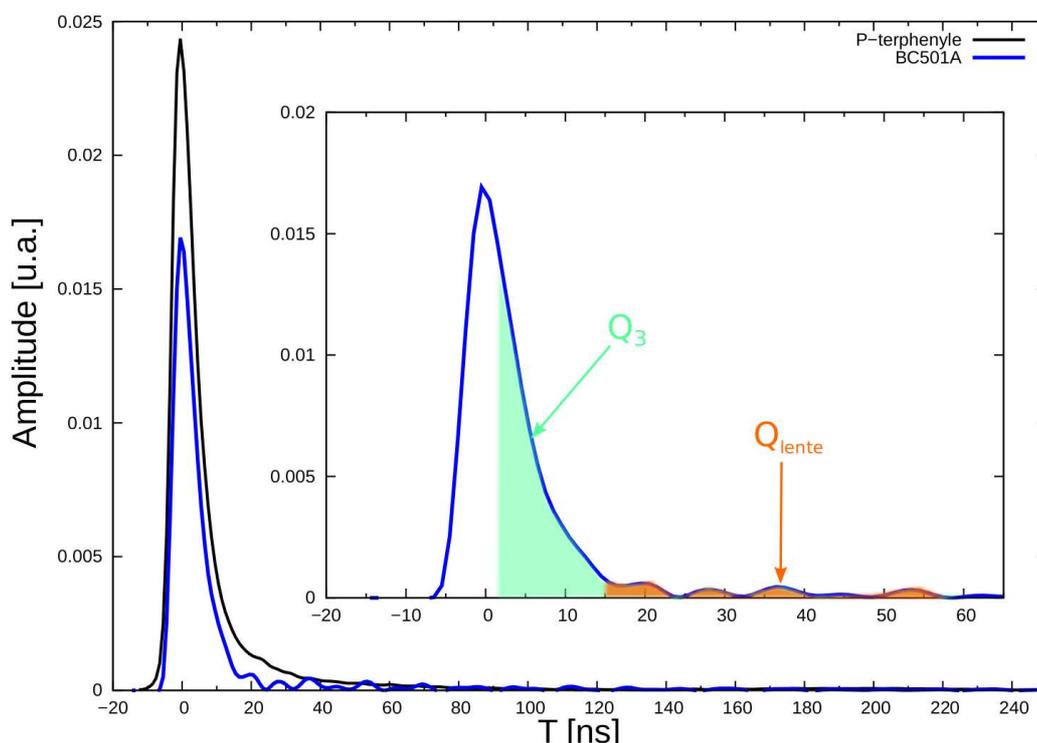


FIGURE B.37 – Signaux moyens sur un cristal de p-terphenyle et sur un BC501A. L'encart présente le signal moyen obtenu sur le BC501A avec les portes d'intégrations choisies pour optimiser la discrimination neutron- $\gamma$ .

Ces bornes sont ensuite utilisées comme paramètres d'entrée par l'algorithme. Une itération se décompose en plusieurs étapes :

- ① Sur chacun des signaux enregistrés, les charges  $Q_{\text{lente}}$  et  $Q_3$  sont calculées.
- ② Un histogramme est rempli avec les valeurs du rapport  $Q_{\text{lente}}/Q_3$  des charges.
- ③ La somme de deux fonctions gaussiennes est ajustée sur cet histogramme.
- ④ Après avoir récupéré les valeurs de position ( $P_\gamma$  et  $P_n$ ) et de largeur ( $\text{FWHM}_\gamma$  et  $\text{FWHM}_n$ ) de ces gaussiennes, un facteur de mérite FOM est calculé (cf. paragraphe 3.2.1).
- ⑤ Le facteur de mérite est comparé à la valeur stockée (zéro au début).
  - S'il est inférieur, on passe directement à l'itération suivante.
  - S'il est supérieur, sa valeur et celle des bornes d'intégration sont stockées avant de passer à l'itération suivante.

A chaque incrément, l'une des bornes  $T^{\min}$  ou  $T^{\max}$  de la deuxième ou de la troisième porte varie de 1 ns dans la gamme définie en entrée par l'utilisateur.

La tableau B.7 présente les valeurs de portes qui optimisent la discrimination neutron- $\gamma$  sur les détecteurs p-terphenyle et BC501A mentionnés au début de cette partie.

TABLEAU B.7 – Portes d'intégrations qui optimisent la discrimination neutron- $\gamma$  sur les détecteurs p-terphenyle et BC501A étudiés. Les valeurs de portes sont données en nanosecondes. L'origine des temps est le franchissement du seuil sur un discriminateur à fraction constante.

Détecteur type	Totale [ns]	Lente [ns]	Pseudo-totale [ns]
p-terphenyle	[-20,220]	[30,220]	[-4,220]
BC501A	[-20,160]	[15,160]	[3,160]

Ainsi qu'on peut le constater, dans les deux cas, la discrimination optimale est obtenue en utilisant, au lieu d'une porte d'intégration sur la composante rapide du signal comme cela est fait usuellement, une porte intégrant la totalité du signal, front de montée exclu.

### 3.3 Comparaison des performances de scintillateurs liquides de type BC501A et de scintillateurs cristallins de type p-terphenyle

L'un des objectifs de la thèse étant l'optimisation de la détection de neutrons de basse énergie, il convient de choisir le type de détecteur ayant le meilleur rendement lumineux. Bien que les scintillateurs cristallins présentent un meilleur rendement, la plupart des mesures disponibles actuellement ont été effectuées avec des scintillateurs liquides. En effet, les monocristaux étaient difficilement productibles en grandes dimensions (faible efficacité géométrique) et, du fait de leur structure, présentent des propriétés de réponse anisotropes [44, 45] : la qualité du rendement lumineux dépend de l'orientation des plans cristallographiques lors de la croissance du cristal.

Le développement des techniques de croissance de cristaux permet maintenant de produire des scintillateurs cristallins dans de plus grandes dimensions. Quant à l'anisotropie, des dopants incorporés lors de la croissance des cristaux permettent de la compenser.

Nous avons confirmé l'efficacité de ces dopants et quantifié le gain apporté par les scintillateurs cristallins pour la détection dans le domaine de basse énergie. Pour cela, nous avons réalisé une étude comparative de la réponse de deux détecteurs p-terphenyle ( $\varnothing 7,5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ ), P1 et P2, et de deux scintillateurs liquides de type BC501A ( $2'' \times 2''$ ), B1 et B2. Ces derniers avaient préalablement été étalonnés au Physikalisch-Technische Bundesanstalt <sup>(6)</sup> et servaient de vérification pour nos méthodes et résultats.

Les paragraphes suivants détaillent les résultats de cette étude, qui a fait l'objet d'une publication [46] dans le journal Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.

#### 3.3.1 Résolution en temps des scintillateurs

Le premier point à considérer est la résolution en temps des détecteurs. Il est essentiel car une mauvaise résolution en temps impliquerait une mauvaise résolution en énergie lors des mesures de PFNS.

Elle a été mesurée, selon la méthode présentée dans la référence [47], en utilisant une source de  $^{60}\text{Co}$ , qui émet en coïncidence deux raies  $\gamma$  de 1174 et 1332 keV. P1, B1 et B2 ont été disposés à 25 cm de la source de  $^{60}\text{Co}$  et environ  $120^\circ$  les uns des autres. La détection en coïncidence de deux raies  $\gamma$  a été enregistrée pour chaque combinaison de deux détecteurs, puis une gaussienne ajustée sur le pic mesuré.

La largeur de la gaussienne ajustée sur le pic de coïncidence ( $\sigma_{(P1+B1)}$ ,  $\sigma_{(P1+B2)}$  ou  $\sigma_{(B1+B2)}$ ) est la somme quadratique de la résolution des détecteurs utilisés. On obtient donc le système de 3 équations à 3 inconnues suivant :

$$\begin{cases} \sigma_{(P1+B1)}^2 = \sigma_{P1}^2 + \sigma_{B1}^2 \\ \sigma_{(P1+B2)}^2 = \sigma_{P1}^2 + \sigma_{B2}^2 \\ \sigma_{(B1+B2)}^2 = \sigma_{B1}^2 + \sigma_{B2}^2 \end{cases} \quad (\text{B.9})$$

---

(6). Installation de référence en métrologie située à Braunschweig (Allemagne)

Il est alors possible de remonter à  $\sigma_{P1}$ ,  $\sigma_{B1}$  et  $\sigma_{B2}$  selon, pour  $\sigma_{P1}$  :

$$\sigma_{P1} = \sqrt{\frac{\sigma_{(P1+B1)}^2 + \sigma_{(P1+B2)}^2 - \sigma_{(B1+B2)}^2}{2}}$$

et

$$\Delta(\sigma_{P1}) = \sqrt{\frac{\sigma_{(P1+B1)}^2 \Delta(\sigma_{(P1+B1)})^2 + \sigma_{(P1+B2)}^2 \Delta(\sigma_{(P1+B2)})^2 + \sigma_{(B1+B2)}^2 \Delta(\sigma_{(B1+B2)})^2}{4\sigma_{P1}^2}},$$

$\Delta(\sigma_{(P1+B1)})$ ,  $\Delta(\sigma_{(P1+B2)})$ ,  $\Delta(\sigma_{(B1+B2)})$  correspondent aux erreurs sur les résolutions mesurées.

Les résolutions ( $FWHM_{P1}$ ,  $FWHM_{B1}$ ,  $FWHM_{B2}$ ) des trois détecteurs sont obtenues selon l'équation B.10 :

$$FWHM_{P1} = 2,3548 \times (\sigma_{P1} \pm \Delta(\sigma_{P1})) \quad (\text{B.10})$$

et réciproquement pour les détecteurs B1 et B2. La partie gauche du tableau B.8 présente les valeurs ainsi obtenues.

La résolution en temps du p-terphenyle a été mesurée une seconde fois en utilisant deux scintillateurs de type LaBr<sub>3</sub>:Ce (1,5" × 1,5"). Ces derniers sont sensibles aux  $\gamma$  et présentent une excellente résolution temporelle [36]. Les résultats sont présentés dans la partie droite du tableau B.8. Une résolution attendue d'environ 370 ps a été obtenue sur les LaBr<sub>3</sub>:Ce et la valeur obtenue sur P1 est en accord avec celle mesurée précédemment.

TABLEAU B.8 – Résolutions en temps d'un détecteur p-terphenyle (P1) mesurée avec deux scintillateurs liquides (B1 et B2), puis avec deux scintillateurs LaBr<sub>3</sub>:Ce, à l'aide d'une source de <sup>60</sup>Co.

Détecteur	FWHM (ps)	Incertitude (ps)	Détecteur	FWHM (ps)	Incertitude (ps)
P1	479	15	P1	477,2	11,9
B1	474	15	LaBr <sub>3</sub> :Ce-1	368,4	15,5
B2	444	16	LaBr <sub>3</sub> :Ce-2	387,3	14,8

Le p-terphenyle présente une résolution temporelle équivalente à celle obtenue sur un scintillateur organique liquide de type BC501A.

### 3.3.2 Résolution en énergie

L'interaction d'une particule dans le milieu scintillant étant réalisée par un dépôt d'énergie, nous avons ensuite choisi de quantifier la résolution en énergie de ces détecteurs. Celle-ci a été mesurée à l'aide des sources  $\gamma$  présentées dans les tableaux B.9 et B.10.

TABLEAU B.9 – Tableau des sources  $\gamma$  utilisées pour déterminer la résolution en énergie de B1. FE correspond à une interaction de type photoélectrique et CE à une diffusion Compton.

Source	$E_\gamma$ [keV]	$E_{ee}$ [keV]	Type	Résolution B1 [%]
$^{133}\text{Ba}$	81	81	FE	$59,98 \pm 0,2$
$^{133}\text{Ba}$	356	207	CE	$29,27 \pm 3,2$
$^{22}\text{Na}$	511	340,7	CE	$20,7 \pm 2,3$
$^{207}\text{Bi}$	569	393,3	CE	$20,2 \pm 2,0$
$^{137}\text{Cs}$	662	477,65	CE	$18,2 \pm 1,6$
$^{207}\text{Bi}$	1063	857,7	CE	$14,8 \pm 0,9$
$^{22}\text{Na}$	1 275	1 061,7	CE	$12,8 \pm 0,7$
$^{207}\text{Bi}$	1770	1 546,9	CE	$10,0 \pm 0,6$
AmBe	4 430	4 196	CE	$8,5 \pm 0,4$
$\text{Pu}^{13}\text{C}$	6 130	5 883	CE	$7,8 \pm 0,3$

TABLEAU B.10 – Tableau des sources  $\gamma$  utilisées pour déterminer la résolution en énergie de P1. FE correspond à une interaction de type photoélectrique et CE à une diffusion Compton.

Source	$E_\gamma$ [keV]	$E_{ee}$ [keV]	Type	Résolution P1 [%]
$^{241}\text{Am}$	59,5	59,5	FE	$30,90 \pm 0,14$
$^{139}\text{Ce}$	166	65,37	CE	$35,91 \pm 1,69$
$^{109}\text{Cd}$	88,0	88,0	FE	$25,50 \pm 0,49$
$^{51}\text{Cr}$	320	177,93	CE	$20,00 \pm 0,53$
$^{85}\text{Sr}$	514	343,33	CE	$15,11 \pm 0,26$
$^{137}\text{Cs}$	662	477,65	CE	$12,36 \pm 0,18$
$^{54}\text{Mn}$	835	639,36	CE	$11,37 \pm 0,14$
$^{88}\text{Y}$	898	699,09	CE	$9,14 \pm 0,11$
$^{88}\text{Y}$	1836	1611,71	CE	$5,92 \pm 0,05$

Aux basses énergies de photons incidents ( $< 100$  keV), ceux-ci interagissent dans la matière par effet photoélectrique (FE). Le spectre expérimental présente alors un pic sur lequel une gaussienne peut être ajustée [48]. La résolution en énergie est obtenue en utilisant  $\frac{\Delta E}{E} = \frac{\text{FWHM}}{C_{max}}$ , où  $C_{max}$  et FWHM représentent respectivement la valeur moyenne et la largeur de la gaussienne.

Pour des énergies plus importantes, les photons interagissent par diffusion Compton (CE) et le spectre expérimental présente un front, correspondant à la plus grande énergie déposée. La résolution en énergie peut être calculée à partir de la relation empirique B.11 tirée de la référence [49] :

$$\frac{\Delta E}{E} = 1.5 \frac{C_{1/2} - C_{max}}{C_{1/2}}, \quad (\text{B.11})$$

où  $C_{max}$  représente le canal du pic maximum et  $C_{1/2}$  la position du demi-maximum (cf. figure B.38).

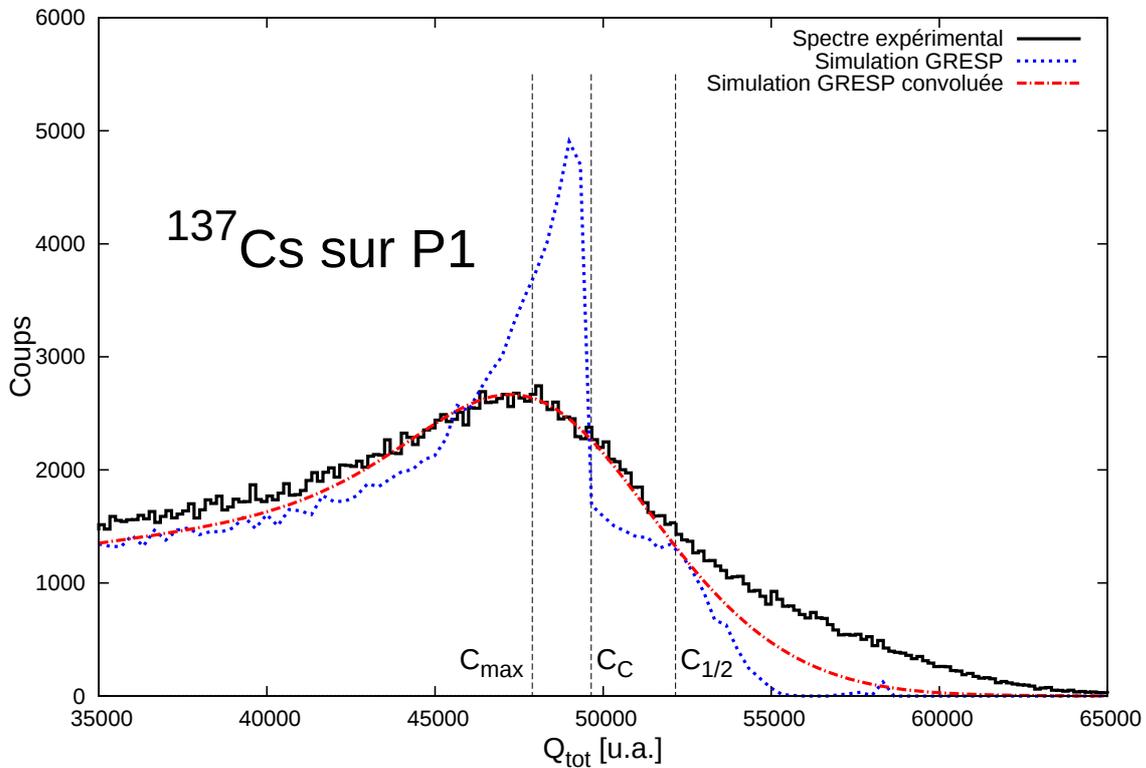


FIGURE B.38 – Spectre expérimental de  $^{137}\text{Cs}$  comparé à une simulation GRESP (cf. section 3.3.3).  $C_c$  représente la charge au niveau du front Compton,  $C_{max}$  la charge correspondant au maximum de la distribution expérimentale et  $C_{1/2}$  la position de la mi-hauteur.

Les résultats sont présentés en figure B.39 pour le BC501A et en figure B.40 pour le p-terphenyle. Ces derniers sont également comparés à ceux obtenus sur un autre p-terphenyle de taille similaire ( $\varnothing 8 \times 5$  cm) [50]. Un bon accord est obtenu entre les deux jeux de données.

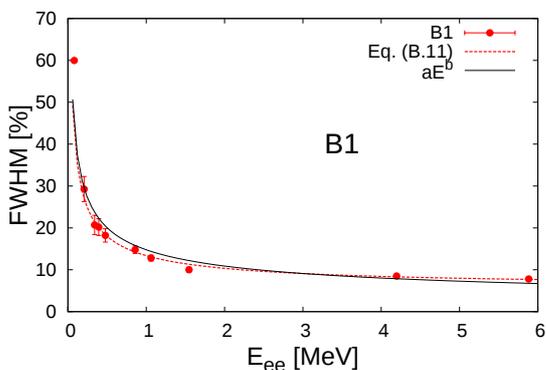


FIGURE B.39 – Résolution en énergie déposée de B1. Les courbes rouge et noire représentent deux ajustements fonctionnels différents.

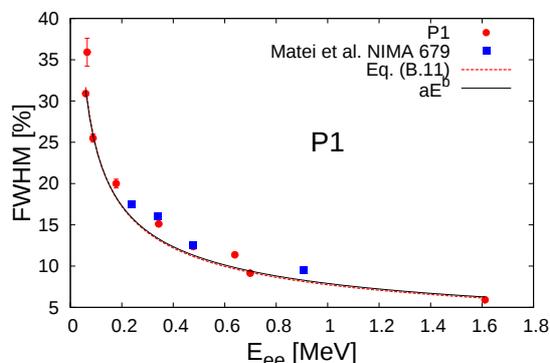


FIGURE B.40 – Résolution en énergie déposée de P1 comparée aux résultats présentés par Matei et *al.* [50]. Les courbes rouge et noire représentent deux ajustements fonctionnels différents.

La fonction décrite par l'équation B.12 [51] a été ajustée sur les résultats expérimentaux.

$$\frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\alpha^2 + \frac{\beta^2}{E} + \left(\frac{\gamma}{E}\right)^2} \quad (\text{B.12})$$

$E$  correspond à l'énergie en  $\text{MeV}_{ee}$ ,  $\alpha$  représente la transmission de lumière du scintillateur à la photocathode et dépend du couplage optique,  $\beta$  les effets statistiques de la production de lumière, l'atténuation dans le milieu, la conversion photon-électron et l'amplification électronique, et  $\gamma$  représente toutes les contributions de bruit. Ces paramètres sont utilisés dans les codes de simulations Monte Carlo NRESP7 et NEFF7 pour la description de la résolution en énergie (voir section 3.3.4 page 113). Les valeurs obtenues sur P1 et B1 sont présentées dans le tableau B.11.

TABLEAU B.11 – Paramètre des résolutions en énergie mesurées sur B1 (type BC501A) et P1 (type p-terphenyle). Dans les deux cas, la résolution est bien inversement proportionnelle à  $\sqrt{E}$ . B1 étant légèrement plus petit, la résolution est moins bonne.

Détecteur	$\alpha$ [%]	$\beta$ [%]	$\gamma$ [%]	a [MeV]	b [ $\text{MeV}^{-1}$ ]
P1	$0,9 \pm 0,4$	$7,68 \pm 0,03$	$0,20 \pm 0,01$	$7,90 \pm 0,04$	$-0,49 \pm 0,01$
B1	$5,9 \pm 0,4$	$12,0 \pm 0,3$	$0,20 \pm 2,7$	$14,8 \pm 0,9$	$-0,44 \pm 0,04$

Sont également présentés les résultats de l'ajustement d'une fonction puissance  $\frac{\Delta E}{E} = a(E)^b$  (E en MeV) sur les données expérimentales. Dans les deux cas, nous obtenons  $b \approx -0,5$ , confirmant ainsi le comportement en  $\frac{1}{\sqrt{E}}$  attendu.

La résolution en énergie déposée est légèrement moins bonne sur B1 que sur P1. En effet, le volume de scintillateur est légèrement plus petit.

### 3.3.3 Étalonnage en énergie des scintillateurs avec le code GRESP

L'étalonnage en énergie de la chaîne d'acquisition est un point crucial puisqu'il permet de régler les seuils de détection sur les scintillateurs. Afin de le déterminer avec précision, nous avons utilisé les sources mentionnées dans les tableaux B.9 et B.10 ainsi que le code de simulation Monte Carlo GRESP [49]. Ce dernier permet de simuler la réponse théorique des scintillateurs organiques pour des  $\gamma$  interagissant par effet Compton. Le fichier d'entrée contient l'énergie du photon incident ainsi qu'une description simplifiée de la géométrie du détecteur et de ses propriétés.

La figure B.38 illustre la procédure utilisée pour une source de  $^{137}\text{Cs}$  sur le détecteur P1. Le spectre théorique simulé par GRESP est convolué avec la résolution en énergie du détecteur présentée en figure B.40, puis ajusté sur le spectre expérimental.

La position du front Compton et, a fortiori, la relation entre l'énergie équivalent-électron et la charge mesurée  $Q_{tot}$  sont donc déterminées avec précision. Pour les deux détecteurs, des procédures d'étalonnage linéaire et non-linéaire ont été investiguées. Si pour le BC501A une réponse linéaire est parfaitement appropriée, pour le détecteur p-terphenyle en revanche, selon les résidus, un polynôme du second degré est le plus approprié, en particulier dans la zone de basse énergie (cf. figure B.41).

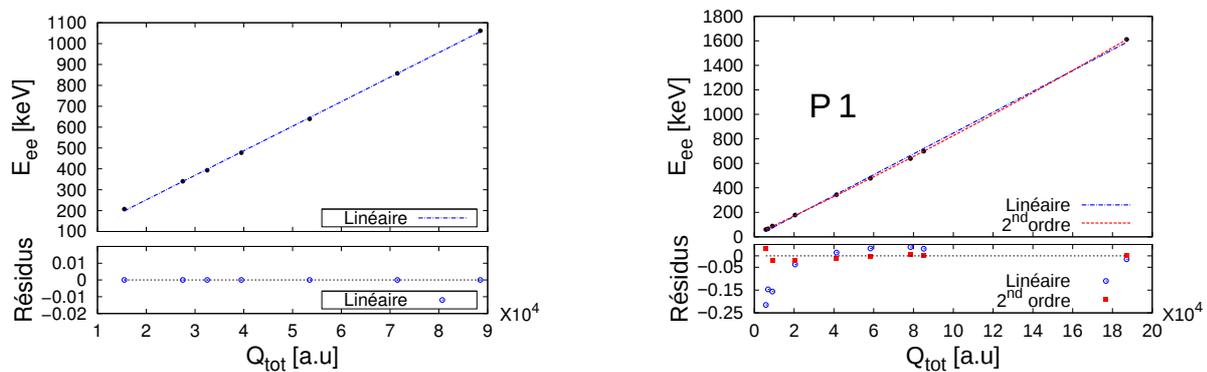


FIGURE B.41 – Étalonnage en énergie de l'un des BC501A (à gauche) et de l'un des p-terphenyle (à droite). Le BC501A est parfaitement linéaire alors que le p-terphenyle présente une non linéarité dans le domaine en énergie inférieur à 200  $\text{keV}_{ee}$ .

Les fonctions ainsi déterminées seront utilisées par la suite pour déterminer la courbe de réponse en lumière de ces détecteurs.

### 3.3.4 Étude de la réponse aux neutrons et courbe de réponse en lumière

Une fois l'étude de la réponse aux  $\gamma$  de ces détecteurs achevée, nous avons cherché à déterminer leur réponse aux neutrons.

#### Dispositif expérimental et mesure du spectre temps de vol

Cette étude est réalisée au moyen d'un spectre en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission du  $^{252}\text{Cf}$ , mesuré avec la chambre à fission mentionnée en partie B, chapitre II.

La chambre permet de déclencher l'acquisition (début de la mesure du temps de vol). L'arrêt de la mesure est fourni par les quatre scintillateurs (P1, P2, B1 et B2), placés à environ 2 m de la chambre. Les faces avant des détecteurs sont protégées par un écran de plomb de 2,5 mm d'épaisseur (cf. section 3.2.1). L'ensemble du dispositif est positionné au-dessus de la fosse afin de minimiser la contribution de l'environnement (neutrons et  $\gamma$  diffusés).

Les événements dans les détecteurs neutrons sont enregistrés en coïncidence avec un événement fission, repéré à l'aide de la chambre  $^{252}\text{Cf}$ . Un spectre temps de vol est ensuite reconstruit pour chaque combinaison chambre à fission - détecteur neutron.

Tant les détecteurs p-terphenyle que les détecteurs BC501A sont sensibles aux neutrons et aux  $\gamma$ . Les spectres temps de vol obtenus présentent donc trois zones : une région correspondant au pic  $\gamma$ -prompt, une zone correspondant à la distribution neutron et une zone correspondant au bruit de fond. La position du pic  $\gamma$ -prompt permet de recalibrer en temps la mesure.

La composante neutron est ensuite sélectionnée, par analyse de forme (cf. figure B.42), en appliquant un seuil de  $50 \text{ keV}_{ee}$ . Le spectre temps de vol résultant est présenté en figure B.43 pour le détecteur P1. Il comporte encore quelques événements au niveau du pic  $\gamma$ -prompts ainsi qu'une composante bruit de fond. Le taux de fission étant de seulement 500 fissions/s, ce bruit de fond est non corrélé en temps. Il est donc estimé en moyennant la composante située à droite de la distribution neutron et est d'environ 0,82 coups/ns sur le p-terphenyle P1.

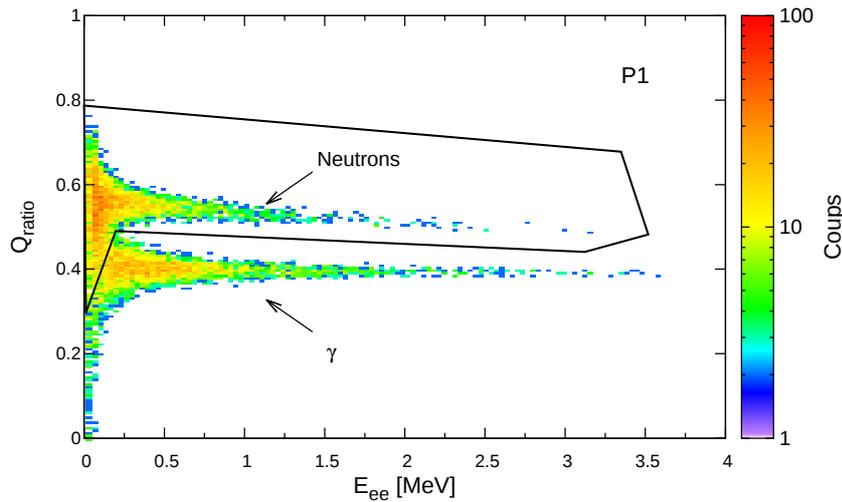


FIGURE B.42 – Discrimination neutron- $\gamma$  sur le détecteur P1. La zone de fort  $Q_{ratio}$  correspond aux neutrons (composante lente du signal plus grande) et la zone de bas  $Q_{ratio}$  aux  $\gamma$ . Pour de faibles quantités de lumière émises ( $< 0,25$  MeVee), ces deux zones se recouvrent et il n'est plus possible de discriminer sans corréler l'information sur l'énergie déposée à l'information temporelle. La sélection des neutrons est réalisée au moyen du contour graphique noir.

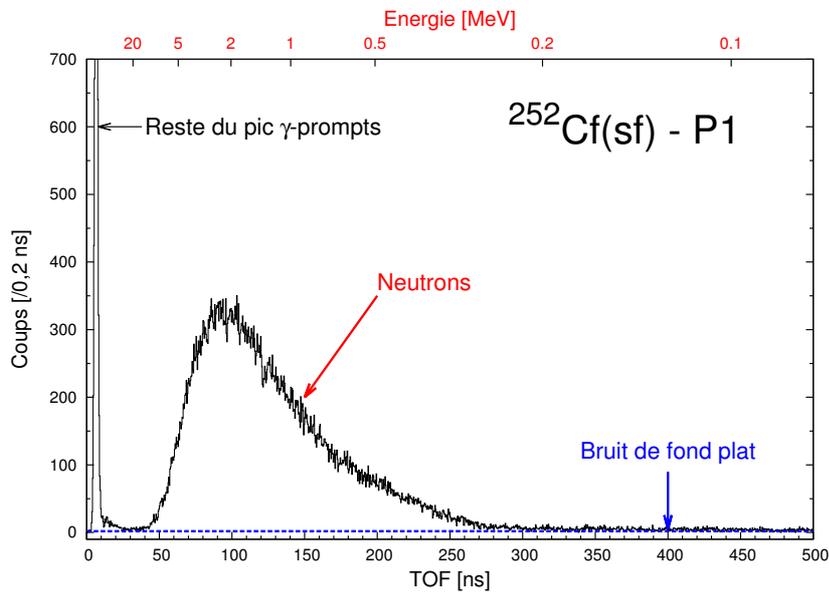


FIGURE B.43 – Composante neutron du spectre temps de vol après discrimination neutron- $\gamma$  sur P1. L'axe des abscisses inférieur correspond au temps de vol mesuré et l'axe des abscisses supérieur à l'énergie neutron correspondante (cf. équation B.1, page 46). Le spectre présente un reste du pic  $\gamma$ -prompt, une zone correspondant à la distribution neutron ainsi qu'un bruit de fond plat essentiellement dû aux  $\gamma$  ambiants.

### Courbe de réponse en lumière

L'expression « courbe de réponse en lumière » fait référence à la fonction de correspondance entre l'énergie de la particule chargée mise en mouvement dans le scintillateur et l'énergie exprimée en  $\text{MeV}_{ee}$  (cf. section 1.2). Elle est caractéristique de la composition et de la géométrie du détecteur.

Dans le cas d'interactions neutroniques, la particule mise en mouvement est, pour des énergies incidentes inférieures à 8 MeV, un proton. Déterminer la courbe de réponse en lumière des détecteurs P1, P2, B1 et B2 revient donc à déterminer la correspondance entre l'énergie équivalent-électron et l'énergie maximale du proton de recul.

Après avoir été déterminées expérimentalement, ces courbes ont été ajustées à l'aide de simulations, comme nous allons le détailler dans les paragraphes suivants.

**Données expérimentales :** Pour chaque événement neutron retenu, l'énergie neutron  $E_n$  est calculée à partir du temps de vol. Puis, pour des énergies neutrons comprises entre 0,1 et 4 MeV par pas de 100 keV avec  $\Delta E_n = \pm 50$  keV et entre 4 à 8 MeV par pas de 500 keV avec  $\Delta E_n = \pm 250$  keV, les distributions en énergie équivalent-électron sont construites à partir de la charge déposée  $Q_{tot}$  et de la relation d'étalonnage déterminée précédemment (cf. section 3.3.3). Des exemples de ces distributions sont présentées en figure B.44 pour P1.

Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1, dans un cas idéal, cette distribution est rectangulaire jusqu'à une énergie  $E_{ee}$  correspondant à l'énergie du neutron incident (i.e. énergie maximale du proton de recul). Cependant, en raison d'une résolution en énergie limitée (cf. section 3.3.2) et des effets de multiples diffusions des neutrons dans le milieu, la limite de cette distribution n'est pas franche. Sa position peut néanmoins être déterminée avec précision en ajustant une fonction gaussienne sur la dérivée première de la distribution [50, 52]. L'énergie  $E_{ee}$  correspondant à l'énergie maximale du proton de recul  $E_p$  est alors donnée par la valeur moyenne de la gaussienne.

La relation  $E_{ee}-E_p$  ainsi obtenue correspond à la courbe de réponse en lumière du scintillateur. La figure B.45 présente les courbes obtenues sur B1 et P1.

Ces fonctions, caractéristiques du détecteur (composition, taille, électronique), sont utilisées lors d'étalonnages avec des sources  $\gamma$ , pour fixer un seuil de détection. Ces fonctions constituent aussi des paramètres d'entrée de simulations Monte Carlo [53, 54]. Afin de reproduire les effets de non linéarité dans le domaine de basse énergie, un polynôme de degré quatre, dont les paramètres sont donnés pour B1 et P1 dans le tableau B.12, a été choisi pour décrire ces fonctions entre 0 et 8 MeV.

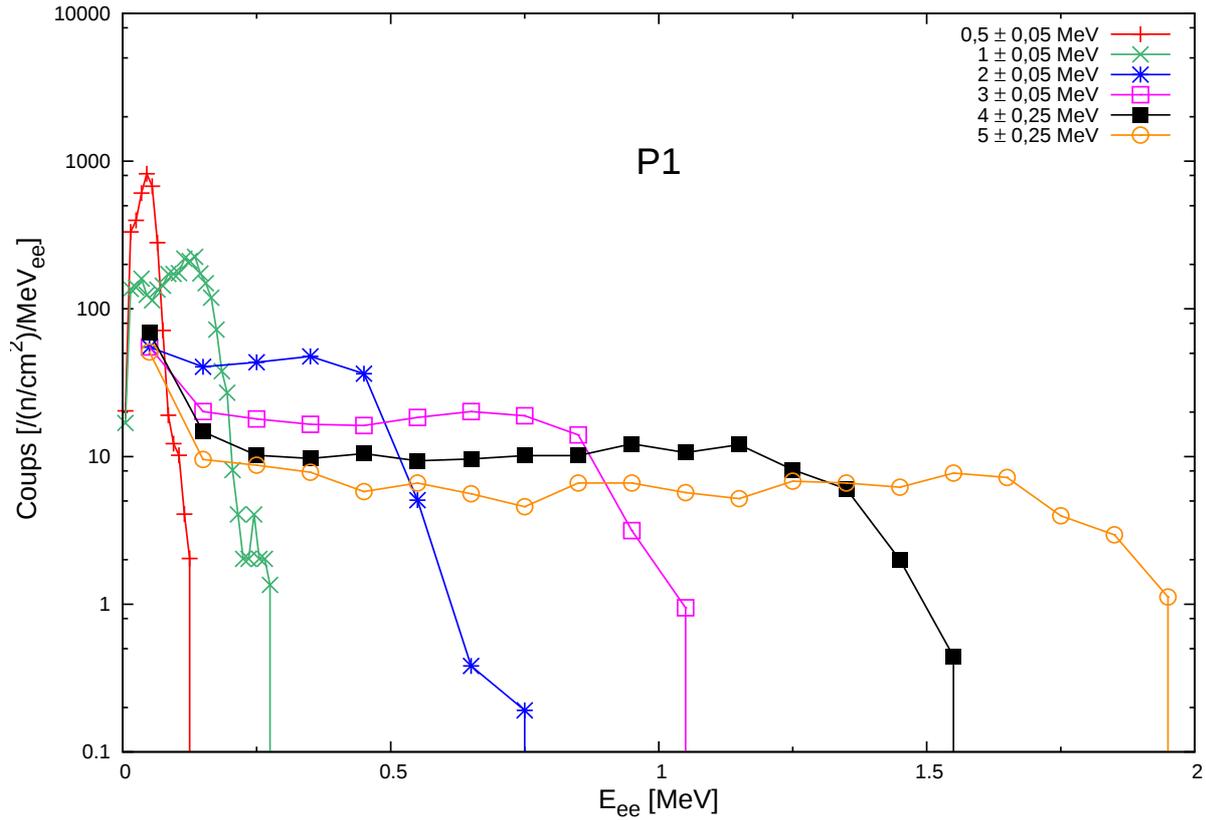


FIGURE B.44 – Évolution de la distribution en énergie  $E_{ee}$  en fonction de l'énergie du neutron incident pour le détecteur P1. Les distributions ne présentent pas la forme rectangulaire attendue mais un front en raison des effets de résolution en énergie du scintillateur.

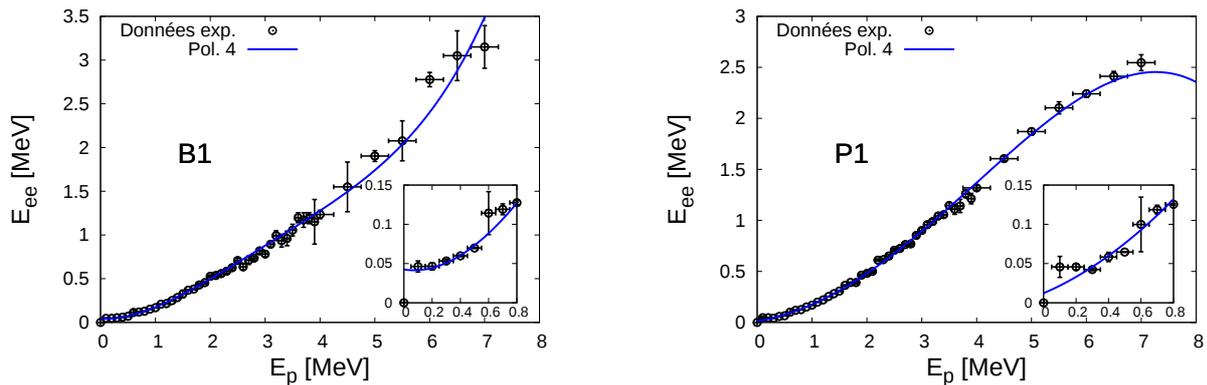


FIGURE B.45 – Ajustement avec un polynôme de degré quatre des courbes de réponse en lumière expérimentales de B1 (à gauche) et P1 (à droite). Un polynôme de degré 4 permet de reproduire les effets de non linéarité dans le domaine de basse énergie mais ne permet pas de reproduire parfaitement les points expérimentaux pour des énergies supérieures à 6 MeV.

TABLEAU B.12 – Paramètre des courbes de réponse en lumière modélisées par un polynôme de degré quatre sur B1 (type BC501A) et P1 (type p-terphenyle).

Détecteur	p <sub>0</sub>	p <sub>1</sub>	p <sub>2</sub>	p <sub>3</sub>	p <sub>4</sub>
P1	0,0122	0,0886	0,0772	$-8,27 \times 10^{-4}$	$-7.04 \times 10^{-4}$
B1	0,0425	-0,0289	0,2012	-0,0440	0,0037

On observe sur P1 l'apparition d'un effet de saturation à partir de 6 MeV. Cela est dû au fait que le photomultiplicateur utilisé a été choisi pour optimiser le gain dans le domaine de basse énergie. Sur B1, en revanche, cet effet n'est pas présent car le photomultiplicateur a été choisi pour ses propriétés de linéarité.

### Simulations NRESP7 et ajustement de la courbe de réponse en lumière :

Le code de simulation Monte Carlo NRESP7 [53] a été utilisé afin de reproduire, à une énergie neutron donnée, la distribution en énergie équivalent-électron des scintillateurs. Les paramètres d'entrée de la simulation se composent de la géométrie simplifiée du détecteur, de sa densité, du rapport H/C ainsi que de la résolution en énergie déterminée en section 3.3.2 et de la courbe de réponse en lumière.

Le résultat de la simulation est donné en coups/(neutron incident d'énergie  $E/\text{cm}^2$ ). Afin de comparer les distributions simulées aux distributions expérimentales, outre le fait que celles-ci soient normalisées par unité d'énergie ( $/\text{MeV}_{ee}$ ), les secondes le sont aussi de la fluence  $\frac{N_{inc}(E)}{S}$ ,  $N_{inc}(E)$  étant le nombre de neutrons incidents d'énergie  $E$  arrivant sur le détecteur de surface  $S$ . Il est calculé selon :

$$N_{inc}(E) = \frac{S}{4\pi L^2} \bar{\nu} n_{fission} \int_{E-\frac{\Delta E}{2}}^{E+\frac{\Delta E}{2}} P(E) dE. \quad (\text{B.13})$$

avec :

- $\frac{S}{4\pi L^2}$  : efficacité géométrique avec  $L$  la distance entre la chambre à fission  $^{252}\text{Cf}$  et le détecteur neutron
- $\bar{\nu}$  : multiplicité moyenne neutron pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ . Elle est prise égale à 3,756 [55]
- $n_{fission}$  : nombre d'événements fission
- $\int_{E-\frac{\Delta E}{2}}^{E+\frac{\Delta E}{2}} P(E) dE$  : probabilité pour un neutron d'être émis dans l'intervalle d'énergie  $E \pm \frac{\Delta E}{2}$ . Elle est calculée en intégrant sur la gamme en énergie  $\Delta E$  le résultat de l'évaluation de Mannhart [20].

En utilisant un polynôme de degré 4, l'émission en lumière est légèrement surestimée pour des énergies neutrons inférieures à 500 keV, ainsi qu'illustré en figure B.46 pour une énergie neutron de 300 keV.

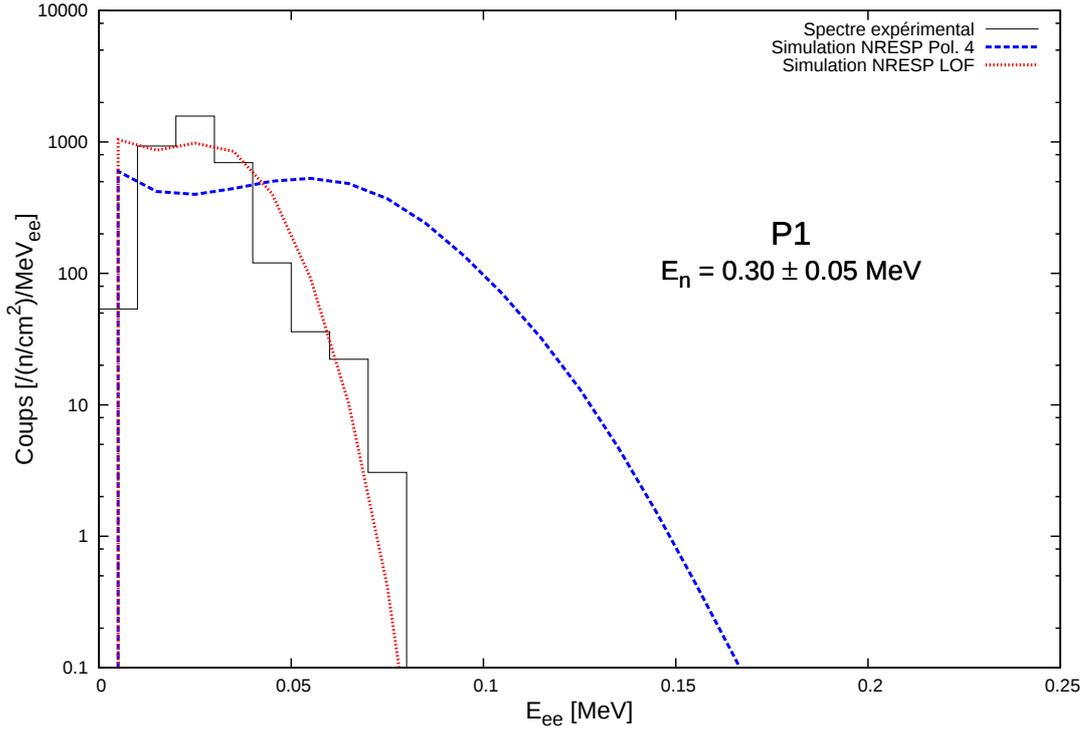


FIGURE B.46 – Distribution en énergie équivalent-électron sur P1 pour  $E_n = 0,30 \pm 0,05$  MeV : comparaison du spectre expérimental et des distributions simulées avec NRESP7. Le polynôme de degré 4 correspond à la courbe déterminée expérimentalement et l'appellation LOF réfère à la courbe de réponse en lumière ajustée à l'aide des simulations.

TABLEAU B.13 – Paramètre d'ajustement du polynôme de degré 4 sur B1 (type BC501A) et P1 (type p-terphenyle) pour obtenir la courbe de réponse en lumière de ces détecteurs.

Détecteur	a	b
P1	-6,31	0,256
B1	-3,45	-0,014

En effet, les  $\gamma$  subsistant dans cette zone induisent une imprécision dans la détermination de la position du front. Un facteur d'ajustement (cf. équation B.14 et tableau B.13) est appliqué sur les polynômes de degré quatre précédemment déterminés.  $E'_{ee}$  représente l'énergie équivalent-électron nouvellement évaluée.

$$E'_{ee} = (1 - e^{aE_p + b}) \times E_{ee} \quad (\text{B.14})$$

Les courbes de réponse en lumière ainsi obtenues sont représentées en rouge sur la figure B.47 et comparées aux données expérimentales et à la représentation par un polynôme de degré quatre (en bleu) pour des énergies neutrons allant de 0 à 1 MeV, zone où l'ajustement était nécessaire.

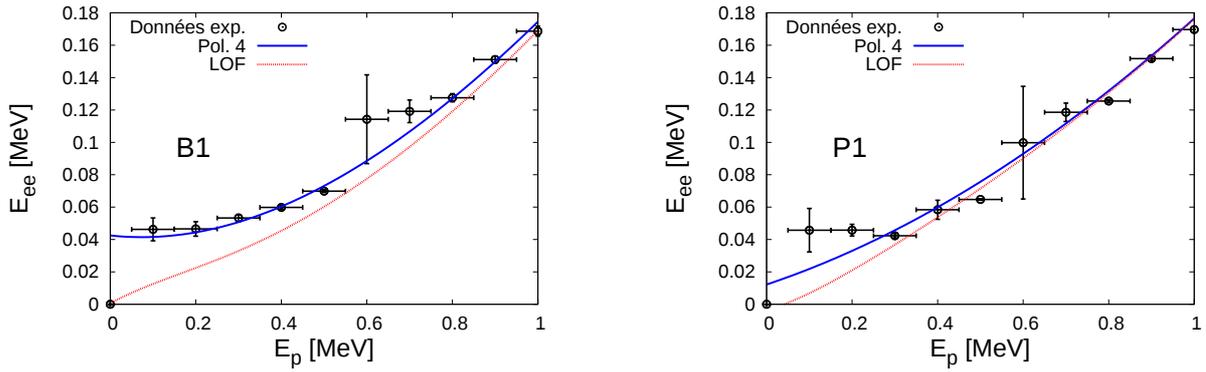


FIGURE B.47 – Courbes de réponse en lumière d'un BC501A (à gauche) et d'un p-terphenyle (à droite) pour des énergies neutrons entre 0 et 1 MeV. Le facteur d'ajustement permet de compenser l'imprécision dans la détermination de la position du front, due à des  $\gamma$  non discriminés, pour des énergies neutrons inférieures à 600 keV.

Comme on peut le constater en figure B.46, un bien meilleur accord entre données expérimentales et simulations est obtenu. Les figures B.48 et B.49 présentent la comparaison entre données expérimentales et simulations pour des énergies allant jusqu'à 8 MeV sur B1 et P1. Les résultats sont excellents jusqu'à 6 MeV. Au-delà, des désaccords commencent à apparaître, un polynôme de degré quatre ne permettant pas de reproduire les données expérimentales (cf. figure B.45).

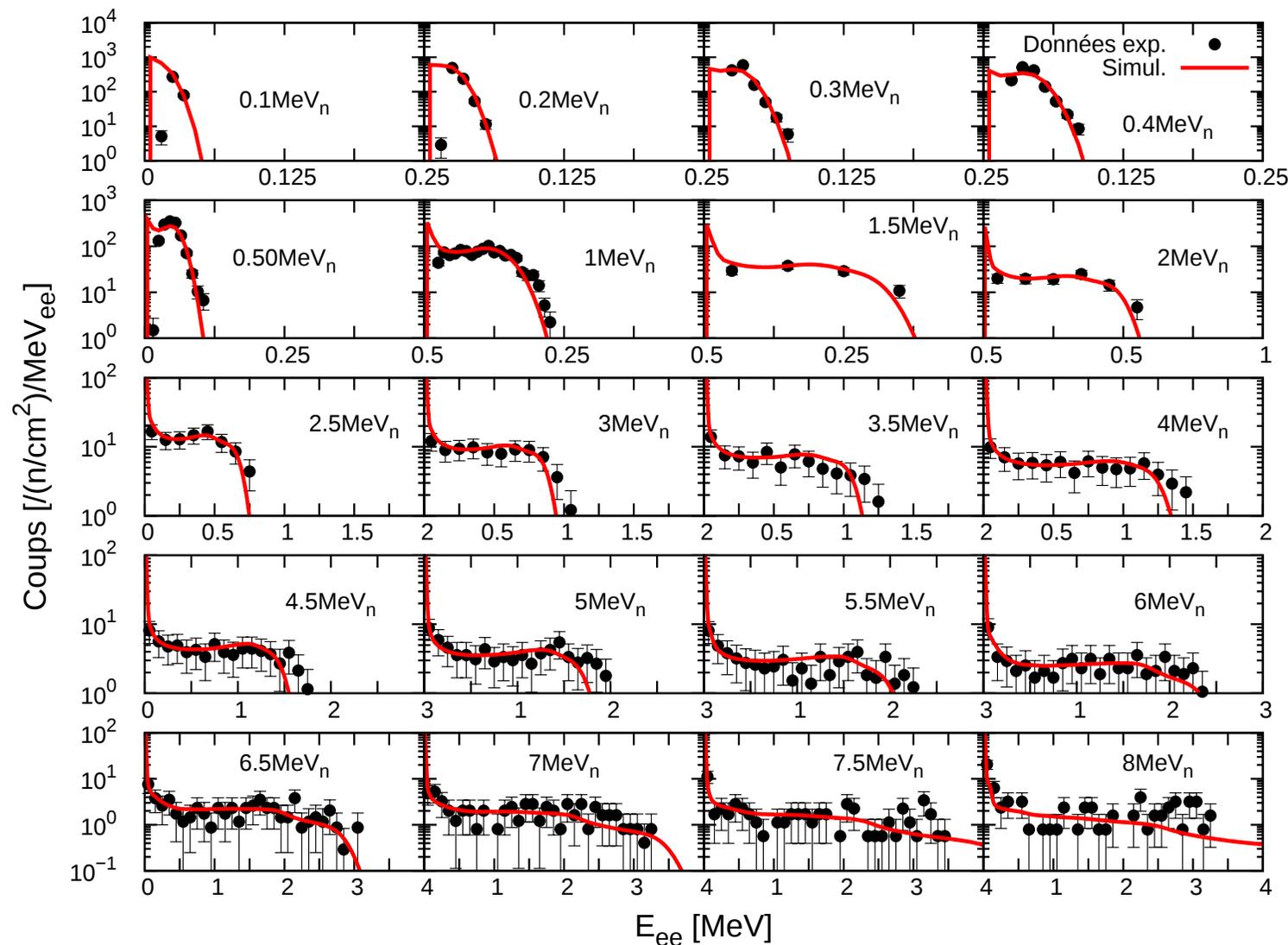


FIGURE B.48 – Comparaison des distributions en énergie équivalent-électron simulées avec NRESP7 et mesurées expérimentalement pour quelques énergies neutrons sur B1. Un excellent accord est obtenu entre les données expérimentales et la simulation jusqu'à 6 MeV. Au-delà, un polynôme de degré quatre ne permet plus une bonne représentation de la courbe de réponse en lumière.

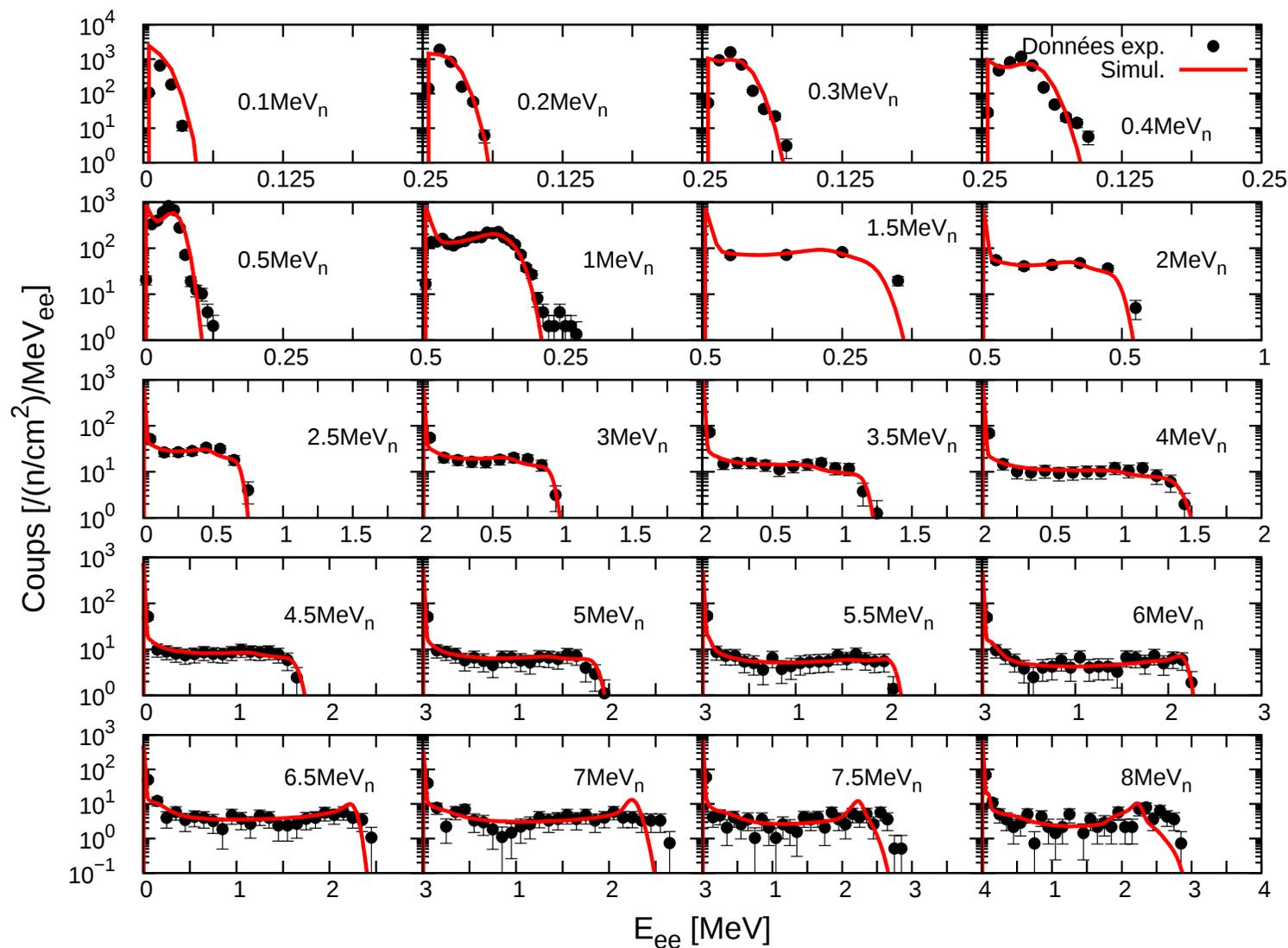


FIGURE B.49 – Comparaison des distributions en énergie équivalent-électron simulées avec NRESP7 et mesurées expérimentalement pour quelques énergies neutrons sur P1. Un excellent accord est obtenu entre les données expérimentales et la simulation jusqu'à 6 MeV. Au-delà, un polynôme de degré quatre ne permet plus une bonne représentation de la courbe de réponse en lumière.

### Efficacité intrinsèque de détection des neutrons

Afin de déterminer l'efficacité intrinsèque de détection neutron des scintillateurs, les spectres en énergie des neutrons prompts du  $^{252}\text{Cf}$  mesurés précédemment ont été utilisés. Pour chaque détecteur, le spectre temps de vol est converti en spectre en énergie, normalisé du nombre de fissions et corrigé de l'efficacité géométrique de détection. Le résultat est ensuite comparé au résultat de l'évaluation réalisée par W. Mannhart [20]. Le rapport des deux donne l'efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons du détecteur.

Ce résultat est ensuite comparé à celui de simulations Monte Carlo avec le code NEFF7 [53], donc les paramètres d'entrée sont les mêmes que ceux du code NRESP7 et où le seuil est donné en  $E_{ee}$ . Pour l'ensemble des détecteurs, les résultats de simulation ont du être multipliés par un facteur 1,15 afin d'obtenir la bonne normalisation.

La figure B.50 présente la comparaison des efficacités intrinsèques déterminées expérimentalement avec le  $^{252}\text{Cf}$  et des efficacités simulées avec NEFF pour un seuil correspondant à 250 keV sur l'énergie des neutrons sur les détecteurs P1 et B1. Les efficacités intrinsèques déterminées expérimentalement sont en excellent accord avec les résultats de simulation. Néanmoins, pour de très basses énergies neutrons, des  $\gamma$  mal discriminés augmentent artificiellement l'efficacité de détection expérimentale sur P1.

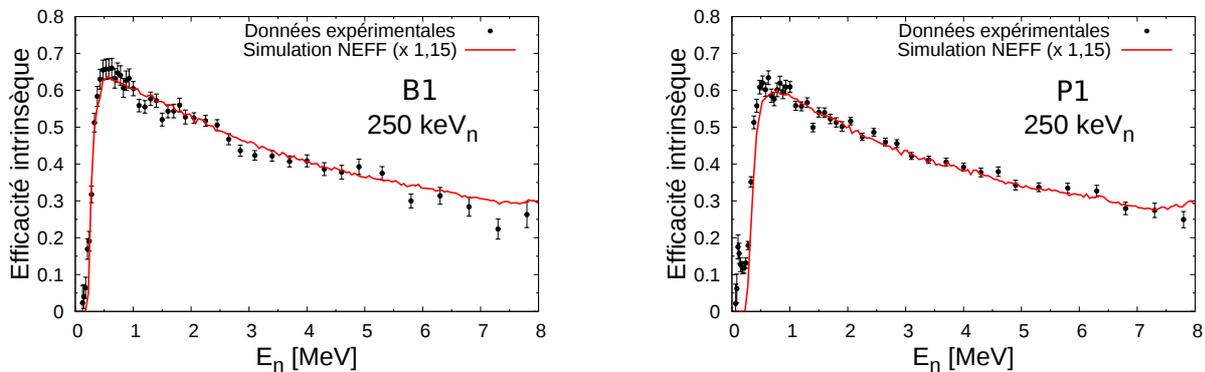


FIGURE B.50 – Efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons déterminée à partir du spectre en énergie des neutrons prompts du  $^{252}\text{Cf}$  sur B1 (à gauche) et sur P1 (à droite). Ces efficacités expérimentales sont comparées aux simulations NEFF7 ( $\times 1,15$ ) pour un seuil de 250 keV $_n$ . Un excellent accord est obtenu entre les données expérimentales et la simulation.

Pour confirmer ce résultat de manière indépendante, une mesure de l'efficacité intrinsèque de détection de P1 a été réalisée auprès de l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA à Bruyères-le-Châtel (dont le principe de fonctionnement est détaillé au chapitre V). Celui-ci était utilisé de manière à produire des flux de neutrons monocinétiques sur des énergies allant de  $E_n = 320$  keV à 6 MeV. L'incertitude sur l'énergie neutron  $\Delta E_n$  a été estimée à partir de la dispersion en énergie du faisceau de particules incident (protons ou deutons). Le moniteur (un compteur  $\text{BF}_3$  pour des énergies inférieures à 5 MeV

et l'un des BC501A au-delà) est positionné à  $20^\circ$  par rapport à la ligne faisceau. Le p-terphenyle étudié a donc été placé à  $-20^\circ$  afin d'être dans les mêmes conditions géométriques que le moniteur.

A chaque énergie, une mesure directe et une mesure avec une barre d'ombre ont été réalisées. Cette dernière est utilisée afin d'éviter que les neutrons produits au niveau de la cible de production de l'accélérateur ne soient détectés. Cette seconde mesure permet donc d'estimer puis de soustraire le bruit de fond. Le rapport du nombre de neutrons détectés (corrigé de l'efficacité géométrique et du bruit de fond) sur le nombre de neutrons émis (calculé à partir du nombre de neutrons enregistrés par le moniteur) donne l'efficacité intrinsèque de détection du détecteur à l'énergie  $E_n$ . Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau B.14. La courbe d'efficacité intrinsèque associée est tracée pour un seuil de 350 keV (énergie accessible la plus basse) en figure B.51. Les résultats sont en bon accord avec la mesure en  $^{252}\text{Cf}$  et la simulation NEFF7, confirmant ainsi la courbe d'efficacité déterminée précédemment sur P1.

TABLEAU B.14 – Tableau des efficacités intrinsèques de détection des neutrons mesurées sur P1 auprès de l'accélérateur Van de Graaff 4 MV de Bruyères-le-Châtel.

$E_n$ [MeV]	$\Delta E_n$ [MeV]	$\varepsilon_{\text{int}}$	$\Delta\varepsilon_{\text{int}}$
0,328	0,067	0,105	0,005
0,401	0,064	0,27	0,01
0,5	0,059	0,39	0,02
0,6	0,055	0,45	0,02
0,7	0,052	0,48	0,02
0,803	0,049	0,46	0,02
0,9	0,048	0,50	0,02
0,95	0,046	0,51	0,02
1	0,045	0,49	0,02
1,2	0,042	0,52	0,03
1,4	0,04	0,52	0,03
1,6	0,037	0,52	0,03
1,8	0,035	0,51	0,03
2	0,034	0,49	0,02
2,2	0,032	0,48	0,02
2,4	0,03	0,47	0,02
3,2	0,239	0,44	0,02
3,5	0,175	0,40	0,02
4	0,109	0,33	0,02
4,5	0,082	0,35	0,02
5	0,058	0,33	0,02
5,5	0,056	0,30	0,02
6	0,05	0,31	0,02

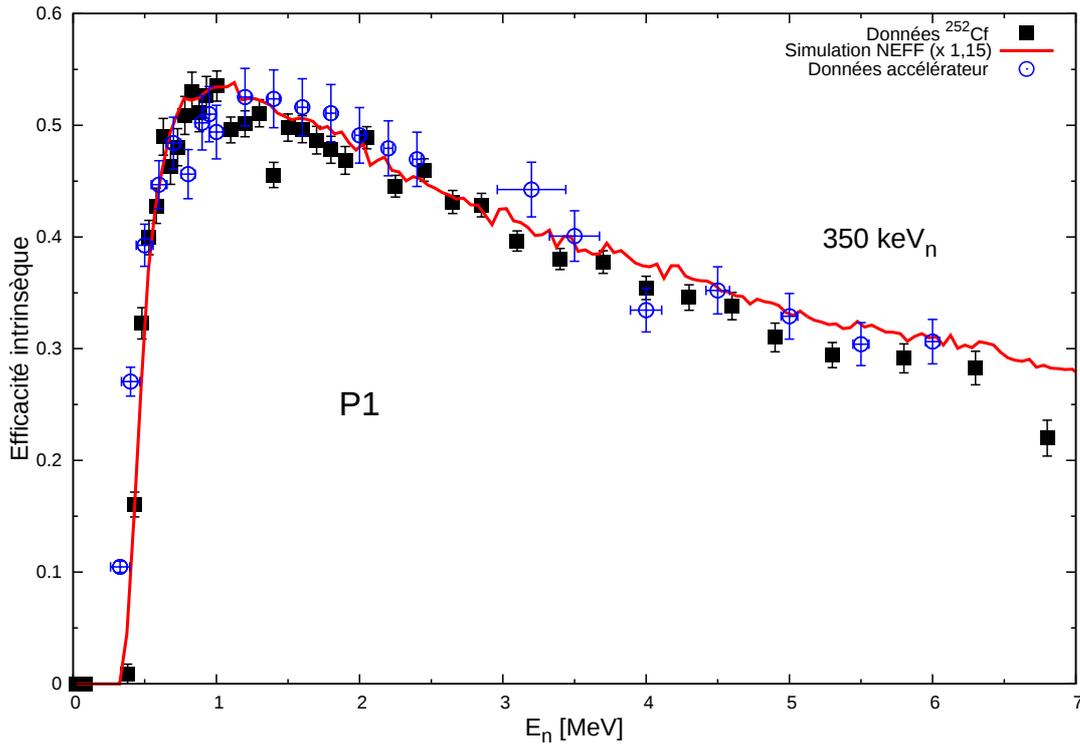


FIGURE B.51 – Efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons mesurée sur P1, à partir du spectre en énergie des neutrons prompts du  $^{252}\text{Cf}$ , comparée à la mesure réalisée auprès de l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF et à la simulation NEFF7 ( $\times 1,15$ ) pour un seuil de 350 keV<sub>n</sub>. Les deux mesures et la simulation sont en relativement bon accord.

### 3.3.5 Comparaison entre scintillateurs liquides de type BC501A et scintillateurs cristallins de type p-terphenyle

Pour plus de lisibilité, les résultats obtenus n'ont été présentés que pour un seul détecteur de chaque type. Néanmoins, des résultats similaires ont été obtenus sur l'autre détecteur correspondant. L'utilisation de dopants permet donc de résoudre efficacement les problèmes d'anisotropie liés à la structure cristalline des p-terphenyle (cf. figure B.52) et d'obtenir la même réponse, quelque soit le détecteur.

Ces mesures rendent également possibles la comparaison des efficacités intrinsèques de détection des neutrons de ces deux types de détecteurs (cf. figure B.52). Jusqu'à 8 MeV, l'efficacité de détection est sensiblement la même. Au-delà, l'efficacité de détection sur les p-terphenyle est probablement plus importante que sur les BC501A en raison de l'ouverture des voies de réaction sur le  $^{12}\text{C}$  (cf. figure B.31).

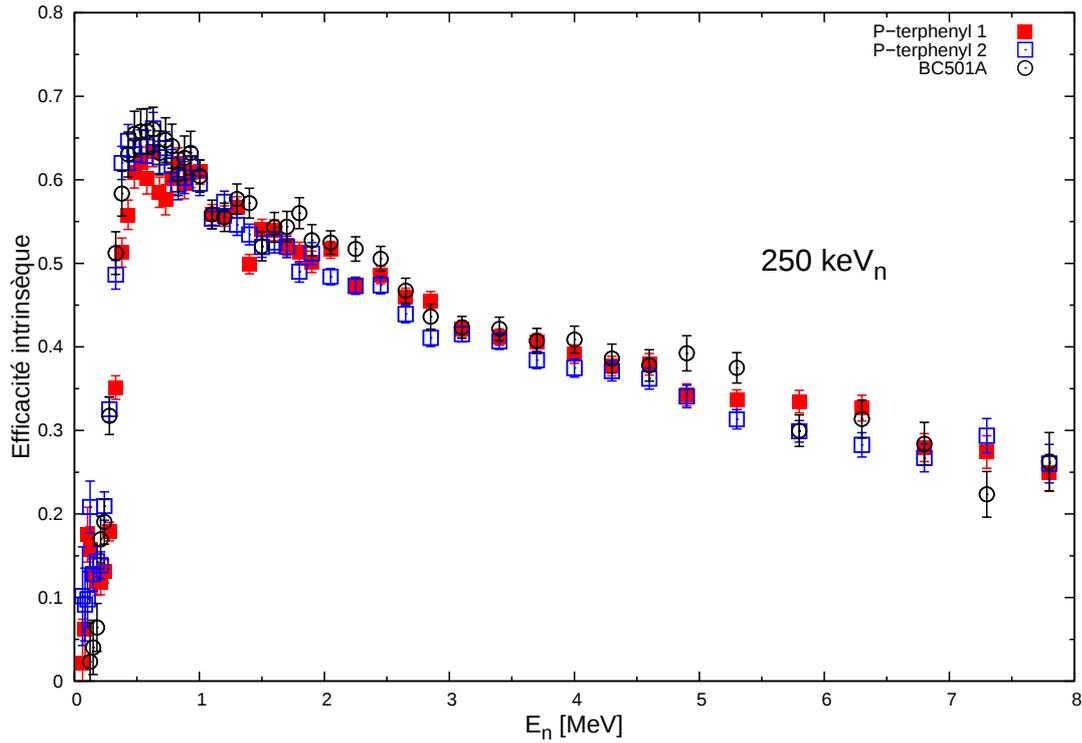


FIGURE B.52 – Efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons de deux détecteurs p-terphenyle et d'un BC501A. Pour les deux types de détecteurs, l'efficacité intrinsèque obtenue est sensiblement la même.

Ainsi, dans le cadre des mesures de PFNS, les détecteurs de type p-terphenyle n'apportant pas un gain substantiel pour la détection des neutrons dans le domaine de basse énergie, nous avons choisi de poursuivre les mesures avec des scintillateurs liquides de type BC501A, mais dans de plus gros volumes ( $\varnothing 12,5 \times 5$  cm), afin d'augmenter l'angle solide de détection.

La caractérisation de la réponse aux neutrons de ces détecteurs a été réalisée selon la même procédure que celle décrite dans cette section.

### En résumé...

- Les neutrons doivent mettre en mouvement une particule chargée afin d'être détectés.
- Les scintillateurs ont une excellente résolution temporelle mais sont sensibles à la fois aux neutrons et aux  $\gamma$ . Il faut donc s'affranchir de cette dernière composante.
- Les verres au lithium :
  - sont des scintillateurs inorganiques.
  - ne présentent pas directement de propriétés de discrimination neutron- $\gamma$  mais, sur les verres  $^6\text{Li}$ , un seuil bidimensionnel obtenu en corrélant les informations temps-énergie déposée permet de sélectionner les neutrons.
  - le verre  $^7\text{Li}$  permet de mesurer le bruit ambiant et les réactions parasites.
  - sont particulièrement adaptés pour la détection des neutrons entre 50 keV et 1 MeV.
- Les scintillateurs organiques :
  - peuvent se présenter sous forme solide (cristaux, plastiques) ou liquide.
  - permettent de mesurer les neutrons pour des énergies supérieures à 250 keV.
  - ont les mêmes propriétés de réponse et sensiblement la même efficacité de détection intrinsèque, qu'ils soient cristallins dopés ou solides.

# Chapitre IV

## Système d'acquisition numérique FASTER

Afin d'utiliser au mieux les développements évoqués précédemment, un système d'acquisition présentant une excellente résolution en temps et pouvant soutenir un fort taux de comptage est nécessaire.

Nous avons donc choisi d'utiliser le système numérique FASTER (Fast Acquisition System for nuclear Research) [56], développé au LPC Caen.

# 1 Généralités sur le système FASTER

FASTER a été conçu de manière à être modulaire et facilement extensible à 128 voies d'acquisition. Il se compose de cartes de circuits logiques programmables de type FPGA<sup>(1)</sup> utilisant le protocole de communication  $\mu$ TCA<sup>(2)</sup>. Celles-ci se déclinent en cartes mères (SYROCO), chacune gérant deux cartes filles (CARAS). Une carte fille comprend deux entrées, soit un total de quatre voies d'acquisition par carte mère. La synchronisation des différentes cartes est réalisée au moyen d'une distribution d'horloge. Les cartes CARAS permettent de numériser le signal sur 12 bits avec une fréquence d'échantillonnage de 500 MHz, soit un point toutes les 2 ns. La dynamique du numériseur est de  $\pm 1,2$  V.

Trois modules de traitement des données sont disponibles :

- le module RF permet de mesurer la radiofréquence d'un accélérateur.
- le module ADC sert à mettre en forme le signal avant de coder son amplitude.
- le module QDC est utilisé pour les mesures de charges et les mesures de temps avec une précision inférieure à la nanoseconde (cf. tableau B.8) .

Ils utilisent des algorithmes permettant de reproduire les principales fonctions de traitement des modules analogiques (QDC<sup>(3)</sup>, ADC<sup>(4)</sup>, CFD<sup>(5)</sup>, TDC<sup>(6)</sup>).

Le système est également doté d'un module de décision. Celui-ci comporte deux niveaux :

- un module de déclenchement : de type booléen ou de type multiplicité.
- un module suiveur : les signaux des voies indiquées en suiveuses ne sont traités et enregistrés que s'ils surviennent dans un intervalle de temps, défini par l'utilisateur, autour de l'instant de déclenchement de l'acquisition.

Lorsque ce module de décision n'est pas activé, les voies déclenchent indépendamment les unes des autres.

Si l'utilisateur ne souhaite pas utiliser les algorithmes de traitement disponibles, les signaux échantillonnés peuvent également être stockés avec un taux maximum de 1 kHz.

FASTER permet de gérer des taux de comptages élevés (jusqu'à 700 000 événements par seconde) sans autre temps mort que celui dû à la durée de traitement du signal (ex :

---

(1). Field-Programmable Gate Array

(2). micro Telecommunications Computing Architecture

(3). Charge-to-Digital Converter : convertisseur de charge analogique-numérique

(4). Analog-to-Digital Converter : convertisseur d'amplitude analogique-numérique

(5). Constant Fraction Discriminator : discriminateur à fraction constante

(6). Time-to-Digital Converter : convertisseur de temps analogique-numérique

largeur des portes d'intégration pour le calcul de charge dans le cas d'un module QDC).

Le système est entièrement piloté par un ordinateur situé en salle de mesure. Il peut donc être placé au plus près du dispositif expérimental afin d'optimiser le rapport signal sur bruit.

Les réglages sont réalisés à l'aide d'interfaces graphiques. De plus, des outils de visualisation en temps réel [57] sont disponibles afin que l'utilisateur puisse s'assurer de la bonne acquisition des données.

Lors de cette thèse, l'algorithme ADC ne permettait pas de sauvegarder l'information temporelle des signaux avec une précision suffisante. Ainsi, seul l'algorithme QDC a été utilisé. La section suivante sera consacrée au détail du mode de fonctionnement de cet algorithme.

## 2 Fonctionnement du module QDC de FASTER

Lorsque le programme QDC est chargé, les signaux passent par diverses étapes de traitement.

Tout d'abord un étage d'entrée permet, selon la gamme du signal, d'appliquer un offset analogique de manière à utiliser de façon optimale les 2,4 V de la dynamique du numériseur. FASTER ne fonctionnant que sur des signaux positifs, cet étage comporte également un inverseur permettant de changer la polarité des signaux négatifs.

Ces derniers passent ensuite dans un module de restauration de ligne de base, constitué par un filtre passe-bas. En mode constant, une valeur définie par l'utilisateur est soustraite au signal physique. En mode dynamique, le système suit la ligne de base et, lorsqu'une valeur de seuil définie par l'utilisateur est franchie, la dernière valeur en mémoire est soustraite au signal. Cette soustraction est effectuée sur la durée du signal plus  $\Delta t$  après que le signal est repassé sous le seuil.  $\Delta t$  est choisi par l'utilisateur.

Une fois la ligne de base restaurée à zéro, le signal passe dans le module déclencheur. Trois types de déclenchement sont disponibles : un déclenchement externe, un déclenchement à seuil et un discriminateur à fraction constante [29]. Pour les deux derniers, le réglage de seuil proposé par FASTER est bidimensionnel : un signal n'est considéré valide que s'il dépasse un certain seuil en amplitude pendant une durée minimale, définie par l'utilisateur. L'ensemble des événements satisfaisant les conditions de franchissement de seuil sont datés avec une précision de 2 ns (précision horloge). Une précision inférieure à la nanoseconde peut être obtenue en utilisant un discriminateur à fraction constante. C'est donc ce mode de fonctionnement qui a été retenu lors des expériences menées au cours de la thèse.

Enfin, les signaux passent dans un module de calcul de charges. Ce dernier permet de définir jusqu'à quatre portes d'intégration différentes.

### 3 Configuration de l'acquisition FASTER lors des mesures de PFNS

Ainsi qu'évoqué précédemment, seul l'algorithme QDC permet de marquer en temps les signaux avec une résolution optimale. Or, comme vu en section 1 du chapitre I, la mesure de l'énergie neutron est réalisée par le biais d'une mesure en temps.

L'acquisition est donc entièrement configurée en mode QDC :

- Pour la chambre à fission et les verres au lithium, l'information amplitude habituellement utilisée est remplacée par une mesure de charge.
- Pour les scintillateurs organiques, trois portes d'intégrations sont définies afin de réaliser la discrimination neutron- $\gamma$  (cf. section 3).

Le module de décision est utilisé en mode booléen, en réalisant un OU sur les voies chambres à fission. Les voies détecteurs neutrons sont placées en suiveuses avec un intervalle de temps dépendant de la base de vol ( $\pm 300$  ns pour des bases de vol de 1 m,  $\pm 500$  ns pour des bases de vol de 2,30 m).

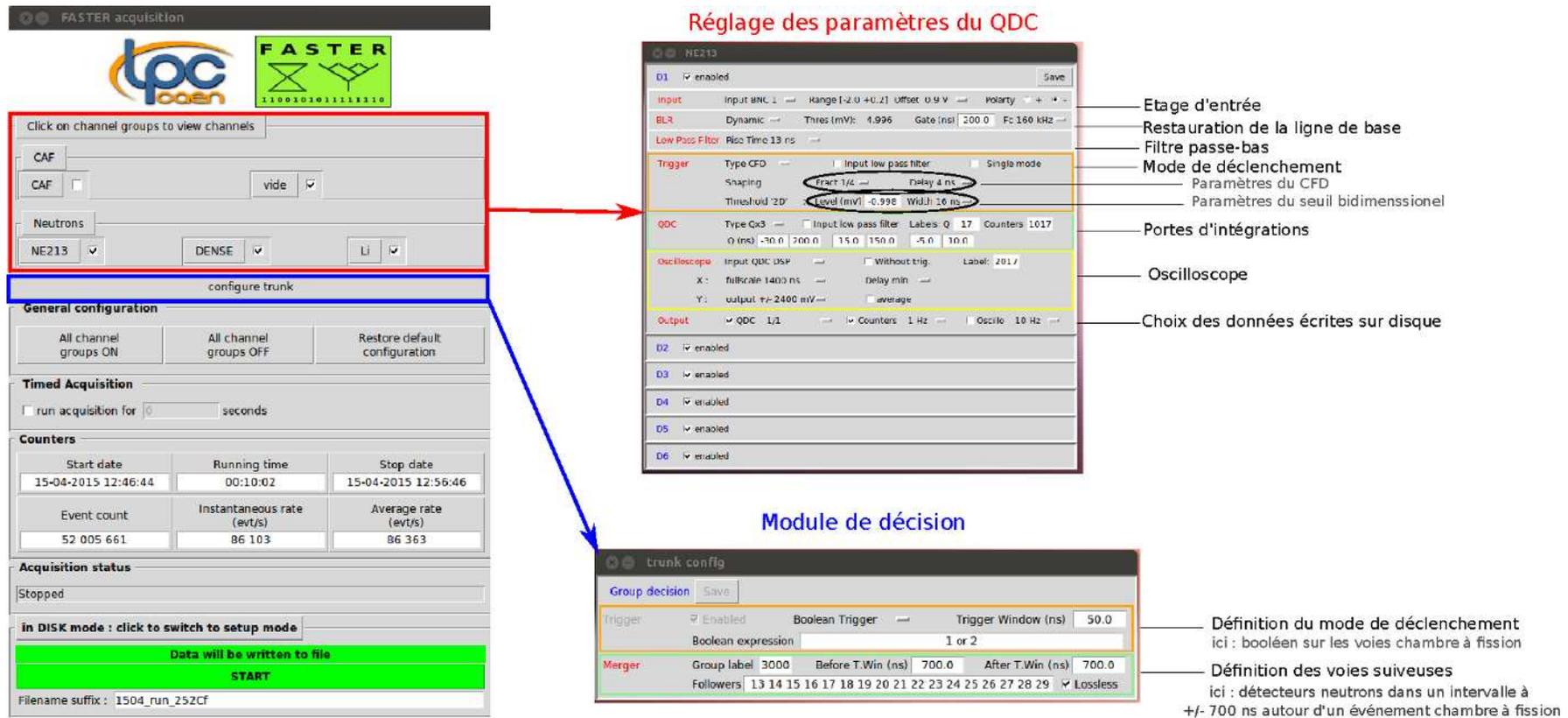


FIGURE B.53 – Interfaces graphiques du système d'acquisition FASTER. Lors des mesures de PFNS, le module de décision était activé en mode booléen avec un "OU" sur les voies de la chambre à fission et les détecteurs neutrons étaient en suiveurs.

**En résumé...**

- FASTER est un système d'acquisition numérique pouvant supporter de forts taux de comptage.
- Trois modules de traitement des données sont disponibles (RF, ADC et QDC) auxquels vient s'ajouter un module de décision pour l'étude de coïncidences.
- Lors des mesures de PFNS, l'acquisition était entièrement configurée en QDC (calcul de charges) et la fenêtre de coïncidence réglée en fonction de la base de vol.



# Chapitre V

## Production de flux de neutrons monocinétiques

Les éléments du dispositif ainsi optimisés, le dernier point, crucial pour l'obtention de mesures précises, est d'avoir un important flux de neutrons induisant la fission de l'actinide étudié. Les diverses installations productrices de neutrons (hors réacteurs expérimentaux) peuvent fournir un spectre neutron :

1. monoénergétique : les neutrons produits ont une énergie définie par la réaction nucléaire. La dispersion sur l'énergie du neutron incident étant relativement faible (quelques dizaines de keV), l'accélérateur peut alors être utilisé en mode continu.  
*Exemples d'installations* : le Van de Graaff 4 MV du CEA,DAM,DIF [58], le Van de Graaff 7 MV du JRC-IRMM<sup>(1)</sup>, le PTB (réactions (p,<sup>7</sup>Li), (p,T), (d,D), (d,T)) [59].
2. « blanc » : les neutrons sont produits sur une large gamme en énergie. Il est alors nécessaire de déterminer à chaque événement fission l'énergie du neutron l'ayant induite. Pour cela, on réalise une mesure du temps de vol entre l'accélérateur, en mode pulsé, et un détecteur de fission.  
*Exemples d'installations* : GELINA du JRC-IRMM, le PTB (réaction (d,Be)) [60], WNR [61, 62], nTOF [63], NFS [64, 65], etc.

Les spectres « blancs » ont l'avantage de permettre de réaliser en une seule expérience plusieurs points de mesure. Les conditions expérimentales étant identiques, celles-ci peuvent être utilisées pour l'étude de systématiques (évolution de la température nucléaire, etc.).

Cependant, peu d'installations permettent à ce jour de réaliser de telles mesures avec un temps de comptage suffisamment long pour obtenir une statistique suffisante sur l'ensemble des énergies neutrons.

Au cours de la thèse, seules des installations productrices de faisceaux quasi-monocinétiques ont été utilisées. Cette partie est consacrée au détail des réactions utilisées pour la production de neutrons ainsi qu'au mode de fonctionnement des installations correspondantes : le 4 MV du CEA,DAM,DIF et le 7 MV du JRC-IRMM en cinématique directe et la source de neutrons LICORNE de l'IPN Orsay en cinématique inverse.

---

(1). Passage à un tandem 4 MV en 2016.

# 1 Réactions de production de neutrons monoénergétiques

Dans le cadre de la production de faisceaux monocinétiques, des particules légères (protons p, deutons d) ou des ions ( ${}^7\text{Li}$ ,  ${}^{10}\text{B}$ , etc.) sont accélérés et conduits jusqu'à une cible dite « de production ». Les réactions nucléaires induites sont à l'origine de l'émission de neutrons monocinétiques dont l'énergie est déterminée par l'énergie de la particule/de l'ion incident(e).

Les quatre réactions communément utilisées [66] et les énergies neutron associées sont résumées dans le tableau B.15 et en figure B.57.

TABLEAU B.15 – Tableau présentant les quatre réactions principales de production de neutrons avec les gammes monoénergétiques associées

Particule	Cible	Q [MeV]	$E_{\text{ion}}$ [MeV]	$E_n$ [MeV]
p	${}^7\text{Li}$	-1,644	1,8 - 2,4	0,03 - 0,7
	T	-0,764	1 - 7	0,07 - 6,2
d			17,590	0,015 - 3,74
		D	3,269	0,04 - 4,4

## Réaction ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$

La réaction  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  permet de produire des neutrons sur une gamme en énergie allant de quelques dizaines de keV à quelques MeV. Cependant, pour des énergies proton dépassant 2,371 MeV (i.e. des énergies neutrons supérieures à 650 keV), un second groupe de neutrons apparaît et les neutrons produits ne sont plus monoénergétiques. Ces neutrons secondaires sont dus à la présence d'un état excité du béryllium, donnant lieu à la réaction  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}^*$ . L'une des principales raisons pour lesquelles la réaction  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  a été remplacée par la réaction  $\text{T}(p,n){}^3\text{He}$  est la chute rapide de la section efficace de production.

## Réaction $\text{T}(p,n){}^3\text{He}$

Cette réaction permet de produire des neutrons monoénergétiques allant de 0,3 à 6 MeV. La réaction  $\text{T}(p,n){}^3\text{He}$  est endothermique ( $Q=-0,764$  MeV) avec un seuil en énergie proton dans le laboratoire de 1,019 MeV. Pour des énergies neutrons proches de cette valeur de seuil, les neutrons sont produits de manière anisotrope (la direction prédominante est celle de l'axe faisceau). Ce cône de production s'élargit avec l'augmentation de l'énergie du proton incident, jusqu'à inclure toutes les directions pour  $E_p \geq 1,148$  MeV. Lorsque  $E_p$  dépasse 8,35 MeV, la réaction de breakup  $\text{T}(p,np)\text{D}$  s'ouvre. Les neutrons produits ne sont alors plus monoénergétiques.

### Réaction $D(d,n)^3\text{He}$

La réaction  $D(d,n)^3\text{He}$  couvre la gamme d'énergie neutron intermédiaire (entre environ 1 et 10 MeV). Pour des énergies deutons incidentes basses, deux type de réactions, quasi-équiprobables, peuvent se produire : (1)  $D(d,p)\text{T}$  ( $Q=4,032$  MeV) et (2)  $D(d,n)^3\text{He}$  ( $Q=3,266$  MeV). Les neutrons produits lors de cette seconde réaction sont bien mono-énergétiques. Cependant, si l'énergie deuton augmente jusqu'à dépasser 4,45 MeV, une troisième voie de réaction s'ouvre, conduisant au breakup du deuton incident  $D(d,np)\text{T}$ . Les neutrons produits ne sont alors plus monoénergétiques.

### Réaction $T(d,n)^4\text{He}$

Cette réaction permet de produire des neutrons monoénergétiques sur une gamme en énergie allant de 14 MeV à environ 20 MeV. Le  $Q$  de réaction élevé (17,586 MeV) permet l'obtention de ces énergies neutrons tout en conservant des énergies deutons relativement faibles (entre quelques centaines de keV et quelques MeV). La dépendance en énergie des neutrons produits à leur angle d'émission est relativement faible pour des énergies deutons de l'ordre de 200 keV.

Pour des énergies deutons de plusieurs MeV, des voies de réactions supplémentaires s'ouvrent et viennent perturber la distribution en énergie des neutrons : la réaction  $T(d,pn)\text{T}$  dès  $E_d \geq 3,71$  MeV et la réaction  $T(d,2n)^3\text{He}$  dès  $E_d \geq 4,92$  MeV.

### Taux de production de neutrons

Le nombre de neutrons émis par stéradian par seconde  $\dot{N}$  au niveau de la cible de production et à un angle  $\theta$  est donné par :

$$\dot{N} = \frac{I}{qe^-} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_\theta N_{\text{cible}} e_{\text{cible}} \quad (\text{B.15})$$

où :

- $I$  : courant incident en  $A$
- $q$  : le nombre de charge de la particule/l'ion accéléré
- $e^- = 1.6 \times 10^{-19}$  C : charge élémentaire
- $\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_\theta$  : section efficace de production de neutrons à l'angle  $\theta$  en  $cm^2.sr$
- $N_{\text{cible}}$  : densité de noyaux dans la cible de production en  $atomes.cm^{-3}$
- $e_{\text{cible}}$  : épaisseur de la cible de production en  $cm$

## 2 Principe de fonctionnement des accélérateurs électrostatiques de type Van de Graaff

Lors des mesures réalisées au cours de ce travail de thèse, trois accélérateurs de type Van de Graaff ont été utilisés : le 4 MV (DAM/DIF), le 7 MV (JRC-IRMM, Geel, Belgique) et le tandem ALTO d'Orsay (IPNO). Ces instruments permettent de générer des ions (légers ou lourds) puis de les accélérer au travers d'un champ électrique produit par un procédé électrostatique [67]. Dans cette section, nous présentons le principe de fonctionnement de ces accélérateurs (cf. figure B.54).

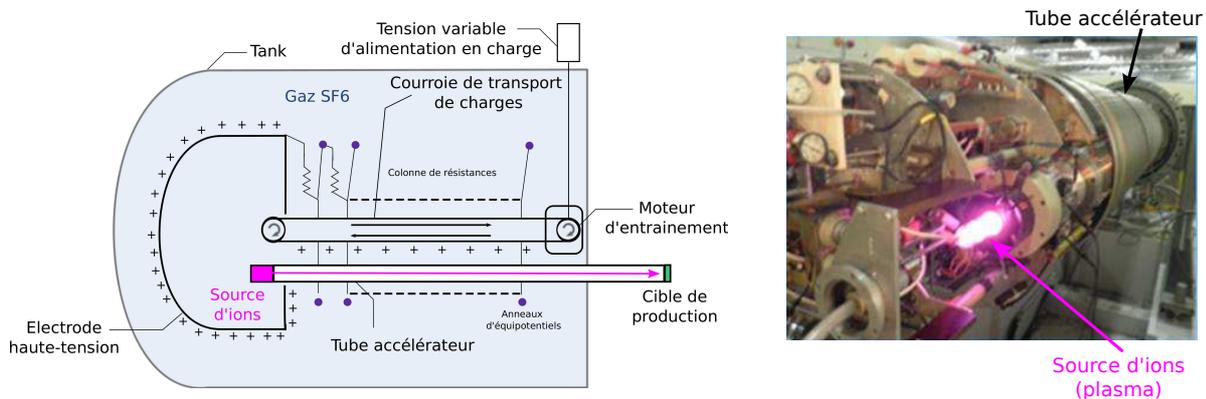


FIGURE B.54 – Principe de fonctionnement d'un accélérateur électrostatique de type Van de Graaff : schéma de principe (à gauche) et photographie du terminal de l'accélérateur 4 MV alors que le tank est ouvert (à droite). Sur cette photographie, la source est allumée.

Dans les accélérateurs à un seul étage (4 MV, 7 MV), la source d'ions se trouve dans l'électrode haute tension de l'accélérateur appelée le terminal.

Selon la nature des ions souhaités, différents types de source peuvent être utilisés. Pour les ions légers (protons, deutons) du 4 MV, cette source est de type RF, dans laquelle un plasma est créé et entretenu par la présence d'un champ électrique haute fréquence (100 MHz) et d'une bobine de confinement.

Les ions ainsi créés sont ensuite accélérés par une haute tension obtenue au terminal au moyen d'un procédé électrostatique : une courroie non-antistatique va permettre de monter des charges au terminal. Cette courroie, en tournant à grande vitesse (60 km/h), va générer ainsi un potentiel électrique très élevé (plusieurs MV) au niveau du terminal. Ce potentiel est adaptable à volonté dans la gamme de fonctionnement de l'accélérateur. Par l'intermédiaire d'un circuit électrique de distribution (de type pont diviseur), ce potentiel est distribué sur une succession de petits gaps (espace entre 2 pièces conductrices) pour obtenir des champs électriques accélérateurs. Ces champs électriques constituent le tube accélérateur. L'accélération totale d'une particule de charge  $q$  sortant de la source d'ions et traversant le tube vaut  $E = qV$ , avec  $V$  la tension du terminal.

Compte tenu des champs électriques élevés obtenus, tous ces dispositifs sont placés dans une enceinte fermée et étanche, appelée tank. Ce dernier est rempli d'un gaz possédant

des propriétés diélectriques permettant d'élever le champ disruptif (seuil de claquage : 17 kV/cm). Dans le cas du 4 MV, il s'agit d'hexafluorure de soufre (SF<sub>6</sub>) à une pression de 5 bars.

Le principe du tandem (accélérateur deux étages) repose sur une géométrie particulière : l'électrode haute tension se trouve au centre du dispositif. Les ions sont alors accélérés une première fois en basse énergie (premier étage d'accélération, situé avant le terminal) puis  $q$  fois en haute énergie (deuxième étage d'accélération, situé après le terminal), soit une accélération totale  $E = (1 + q)V$ .

Pour des particules légères, comme les isotopes de l'hydrogène, l'énergie en sortie du tank est doublée : une tension terminal de 7 MV permet d'accélérer les ions jusqu'à 14 MeV.

Afin d'obtenir ces performances, la polarité du champ accélérateur s'inverse au niveau du terminal. Il faut donc utiliser une source d'ions négative, dont la polarisation sera changée au moment du changement de polarité, au centre du tank. Pour cela, un éplucheur (stripper), qui peut être soit solide (feuille mince de carbone), soit gazeux (N<sub>2</sub>), est utilisé afin de réaliser, a minima, une double capture électronique. Les ions négatifs en sortie de source deviennent ainsi positifs et sont de nouveau accélérés par le champ électrique, avec la même différence de potentiel, mais inversée.

Ce principe de fonctionnement est illustré en figure B.55. Une particularité de ce type d'accélérateurs est que la source d'ions est située à l'extérieur du tank accélérateur, ce qui la rend plus facilement accessible.

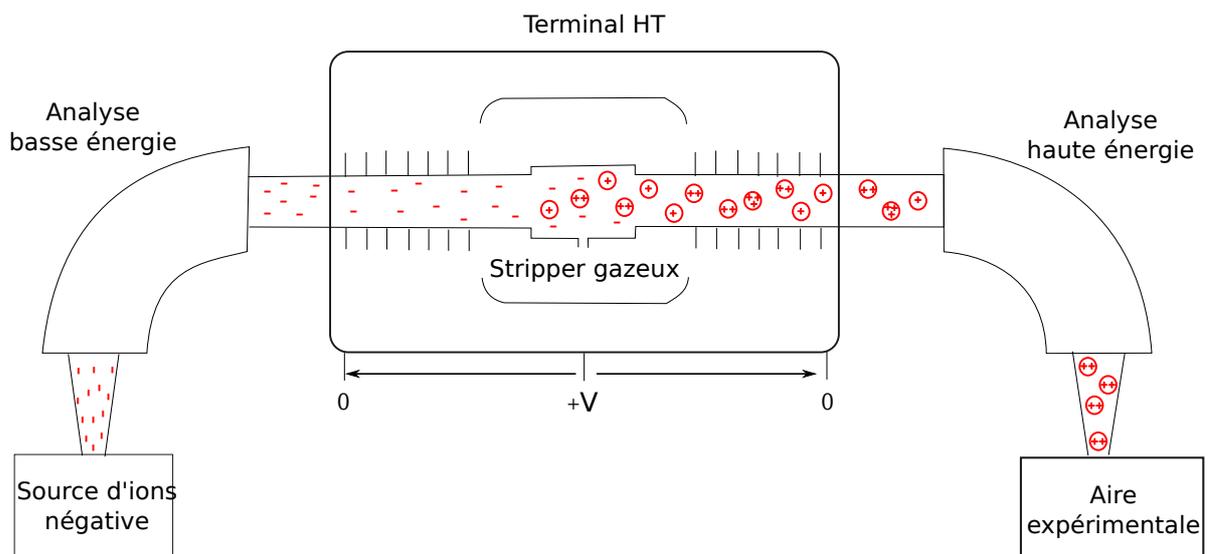


FIGURE B.55 – Principe de fonctionnement d'un accélérateur électrostatique de type tandem dans le cas d'un stripper gazeux.

### 3 Présentation des installations utilisées

Au cours de ce travail, trois installations productrices de neutrons ont été utilisées : deux en cinématique directe (4 MV et 7 MV) et une en cinématique inverse (source de neutron LICORNE du tandem de l'IPN Orsay). Nous présentons ici les caractéristiques de chacune d'entre elles.

#### 3.1 Installations produisant des neutrons en cinématique directe : Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF et Van de Graaff 7 MV du JRC-IRMM

Les accélérateurs Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF et 7 MV du JRC/IRMM permettent, à partir des quatre grandes réactions présentées au paragraphe 1, de produire des neutrons en cinématique directe. Les particules accélérées sont des protons ou des deutons.

Lors des mesures sur le 4 MV, le dispositif expérimental (cf. section C) était placé à  $0^\circ$ , en bout de ligne Mobley (cf. figure B.56). L'accélérateur fonctionnait en mode continu.

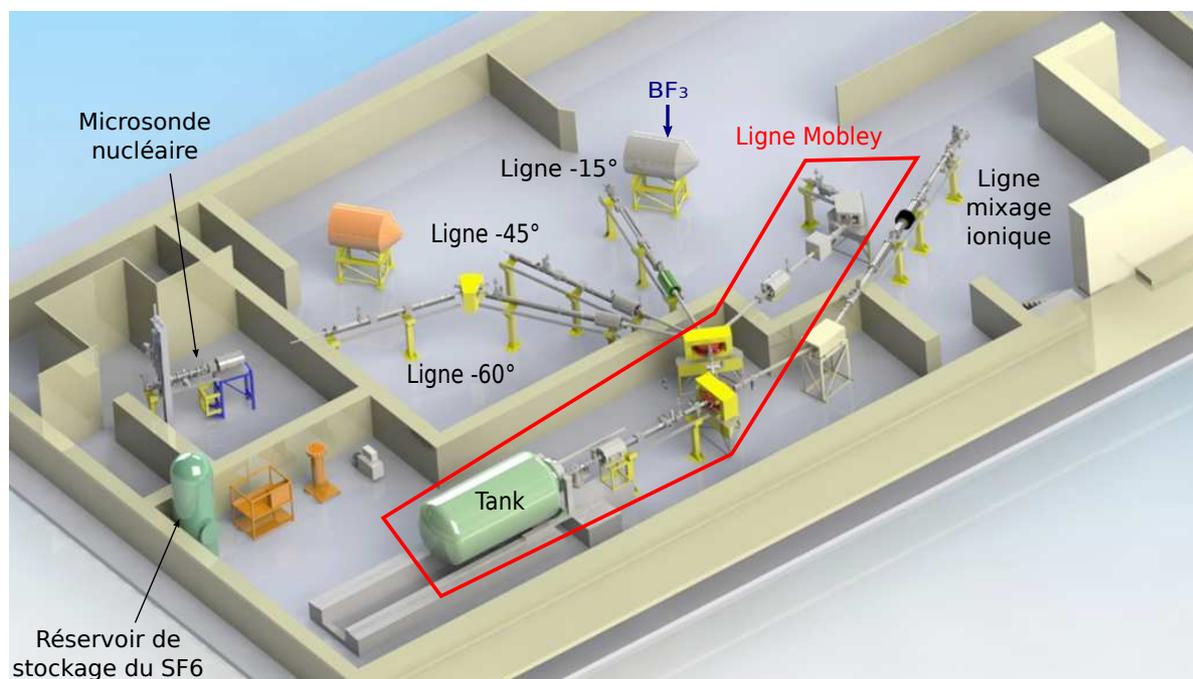


FIGURE B.56 – Plan du hall expérimental du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF. La ligne utilisée pour les mesures de spectres est la ligne Mobley. Sur ce schéma est également représenté le détecteur  $\text{BF}_3$  qui permet d'assurer le monitoring du flux neutron à basse énergie (50 keV - 2 MeV).

Les sections efficaces de production et les énergies neutrons accessibles sont résumées en figure B.57.

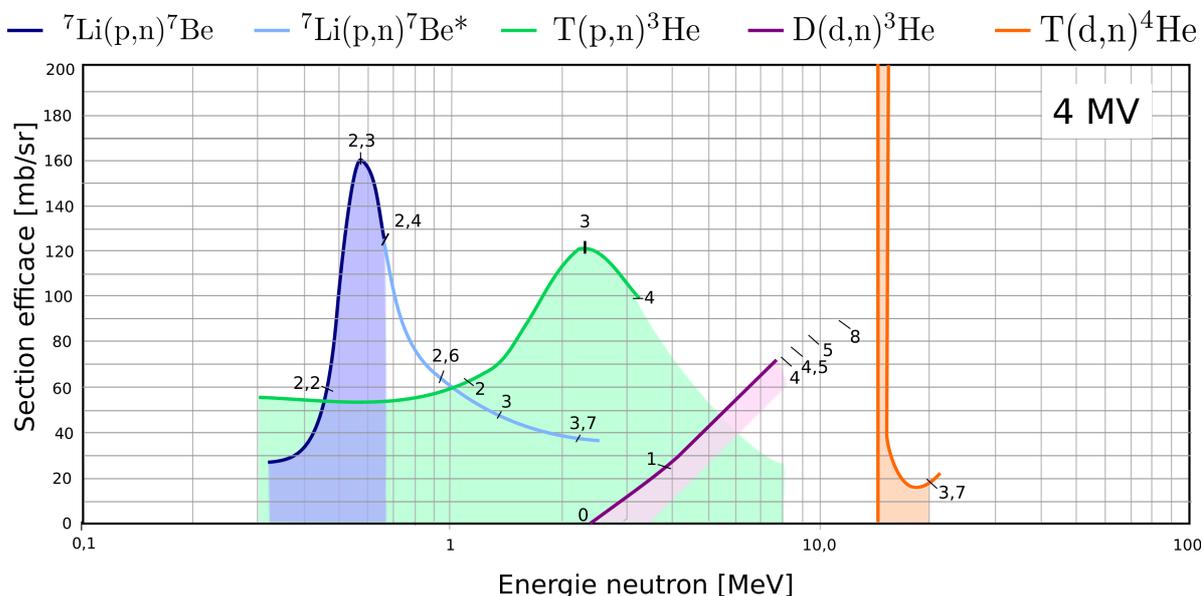


FIGURE B.57 – Sections efficaces de production de neutrons monocinétiques sur l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF en fonction de l'énergie du neutron produit à  $0^\circ$ . Les chiffres indiqués sur les courbes correspondent à l'énergie des ions incidents. Les parties colorées en dessous des zones de section efficace symbolisent les zones où les neutrons produits sont monoénergétiques.

Le tableau B.16 présente des ordres de grandeur du flux neutrons produit à  $0^\circ$  et  $20^\circ$ .

TABLEAU B.16 – Énergies neutrons monocinétiques et ordres de grandeur des flux accessibles sur le Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF pour une cible de  $1\,000\ \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  en TiT ou TiD (implantation de tritium ou de deutérium dans une matrice de titane) et de  $200\ \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  pour le lithium.

Énergie neutrons MeV	Réaction	Énergie ions MeV	Flux maximal à $0^\circ$	Flux maximal à $20^\circ$
			neutron/s/sr	
$0,03 < E_n < 0,7$	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$	$1,8 < E_p < 2,4$	$\sim 3,7 \times 10^8$	$\sim 3,6 \times 10^8$
$0,07 < E_n < 2,9$	$\text{T}(p,n){}^3\text{He}$	$1,0 < E_p < 3,8$	$\sim 8,5 \times 10^8$	$\sim 6,9 \times 10^8$
$3,5 < E_n < 7,0$	$\text{D}(d,n){}^3\text{He}$	$0,5 < E_d < 3,8$	$\sim 5,0 \times 10^8$	$\sim 2,2 \times 10^8$
$16 < E_n < 20,5$	$\text{T}(d,n){}^4\text{He}$	$0,5 < E_d < 3,8$	$\sim 10,2 \times 10^7$	$\sim 7,8 \times 10^7$

Ainsi qu'on peut le voir, la gamme en énergie sur laquelle ces neutrons sont produits est restreinte par rapport à celle présentée dans le tableau B.15. En effet, atteindre des énergies d'ions inférieures à 500 keV et supérieures à 3,5 MeV est peu aisé. Ces zones correspondent aux limites haute et basse de la machine et les atteindre requiert des précautions d'usage. La haute énergie nécessite une période de conditionnement durant laquelle la tension du terminal est augmentée progressivement pour éviter le risque d'apparition d'arcs électriques destructeurs.

L'accélérateur 7 MV du JRC-IRMM permet de produire des neutrons dans une gamme non accessible sur le 4 MV (i.e. entre 3 et 6 MeV pour la réaction  $T(p,n)^3\text{He}$ ).

Sur ces deux installations, le flux de neutrons n'est pas collimaté mais, selon la réaction nucléaire, l'émission est plus ou moins anisotrope (cf. figure B.58). Pour les mesures de PFNS, les dépôts d'actinides sont placés à environ 10 cm de la cible de production. Alors, lors d'une émission dans  $4\pi$ , seuls 10% des neutrons produits seront utiles pour induire la fission de l'actinide étudié : pour un flux au niveau de la cible de production de  $10^7$  n/s/sr, un échantillon placé à 10 cm de la cible ne verra que  $10^6$  n/s. Les neutrons non utilisés pour l'expérience diffusent dans l'environnement et contribuent aux signaux recueillis sur les scintillateurs utilisés pour détecter les neutrons prompts de fission. Ils peuvent également se thermaliser et, dans le cas d'études sur des noyaux fissiles, induire des fissions à la « mauvaise » énergie. Si dans ce dernier cas un simple blindage en cadmium autour de la chambre à fission suffit, ce n'est pas le cas pour les détecteurs neutrons. Les dispositifs de blindage utilisés pour réduire au maximum la contribution des neutrons produits par l'accélérateur sont encombrants. Par ailleurs, comme nous le verrons en partie C, ils viennent distordre le spectre en énergie des neutrons prompts de fission mesuré.

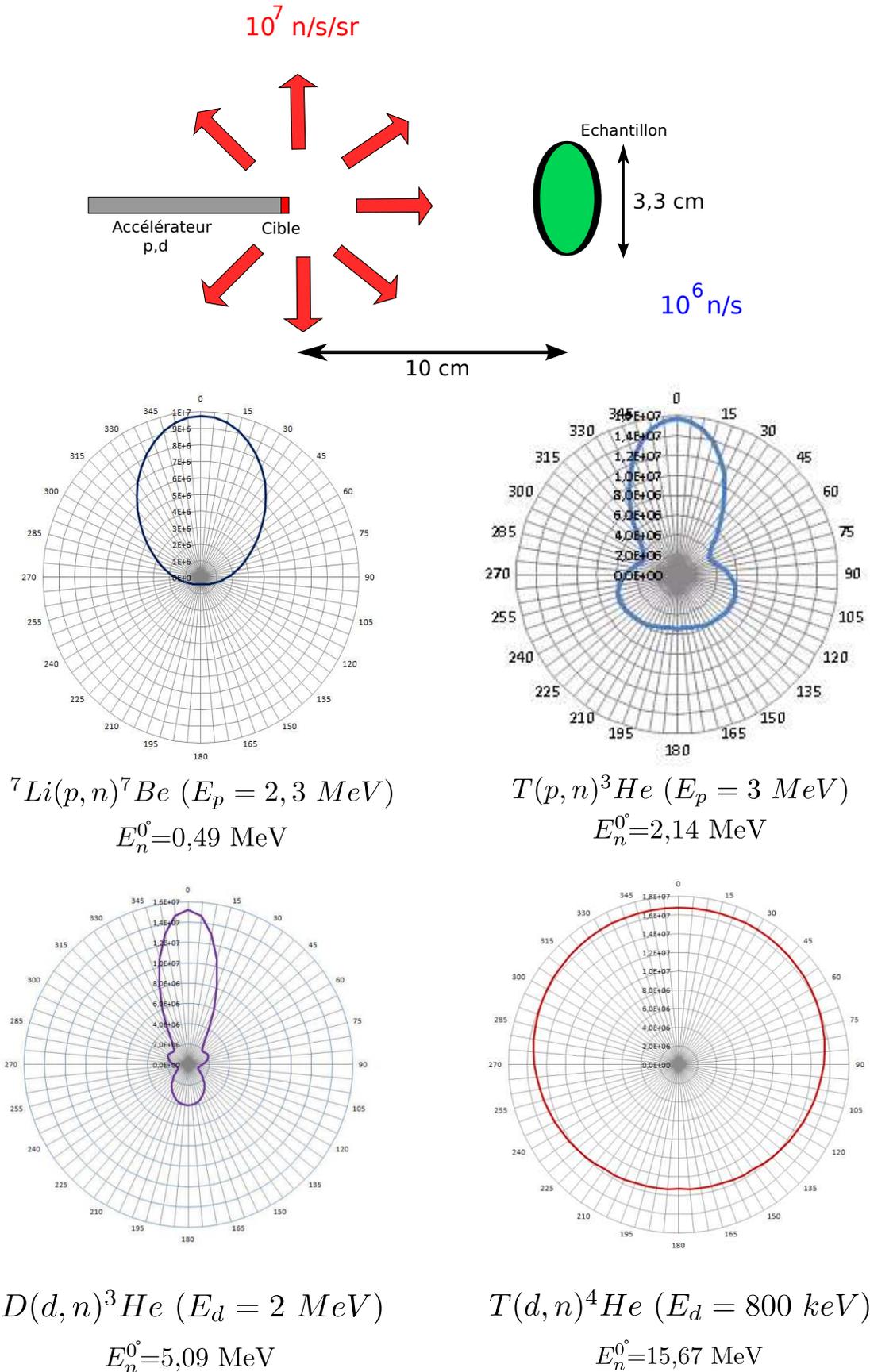


FIGURE B.58 – Production de neutrons en cinématique directe : des ions légers (p,d) sont accélérés jusqu’à une cible de production. Les quatre figures du bas représentent, pour chacune des quatre réactions de production, le lobe d’émission neutron pour une énergie d’ion incidente donnée. Les valeurs indiquées correspondent à l’intensité du flux de neutrons en neutron/ $\mu\text{C}$ /sr.

### 3.2 Installation produisant des neutrons en cinématique inverse : source LICORNE de l'IPN Orsay

Une alternative à la production de neutrons en cinématique directe est l'utilisation de la cinématique inverse : au lieu de la réaction  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ , les neutrons sont produits par la réaction  ${}^1\text{H}({}^7\text{Li},n){}^7\text{Be}$ . Tel est le cas de la source de neutrons LICORNE (Lithium Inverse Cinématiques ORsay NEutron source) de l'IPN Orsay [68]. Le tandem ALTO (15 MV) est utilisé afin d'accélérer en haute énergie (seconde étage du tandem) des ions  ${}^7\text{Li}^{3+}$ . Ceux-ci sont ensuite transportés jusqu'à une cible de production (cf. figure B.59).

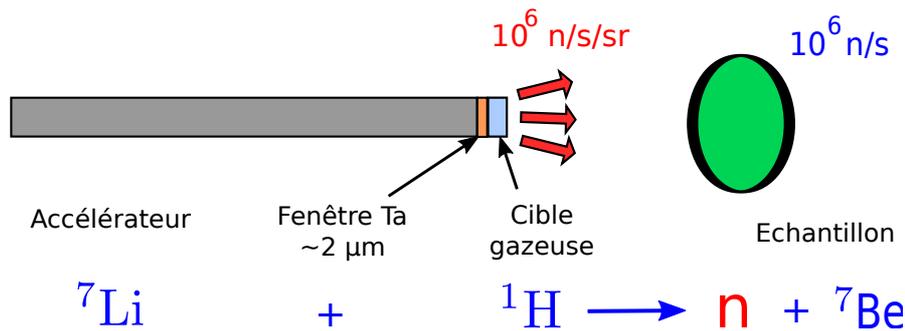


FIGURE B.59 – Production de neutrons en cinématique inverse : les ions  ${}^7\text{Li}^{3+}$  sont accélérés jusqu'à une cible d'hydrogène gazeux. Tous les neutrons produits sont utiles lorsque l'échantillon étudié est placé à 10 cm de la cible de production.

Cette cible est constituée d'hydrogène gazeux en circulation. L'étanchéité est assurée à l'aide d'une fine feuille de tantale ( $2\ \mu\text{m}$ ) dans laquelle les ions lithium perdent une énergie  $\Delta E$ . Cette dernière doit donc être la plus fine possible pour limiter la perte d'énergie tout en étant suffisamment résistante pour assurer la tenue mécanique de la cible malgré l'échauffement dû au faisceau.

#### Directionnalité de l'émission neutronique

De par la cinématique de la réaction, les neutrons émergents sont produits dans un cône de même direction que le faisceau et avec une très faible ouverture angulaire dans le référentiel du laboratoire (cf. figure B.60). Ainsi, en considérant un flux de  $10^6\ \text{n/s/sr}$  (flux moyen accessible sur l'installation), une cible placée à  $0^\circ$  et 10 cm de la cible de production verra  $10^6\ \text{n/s}$ .

Néanmoins, plus l'énergie lithium est loin du seuil de la réaction (13,098 MeV), plus l'angle d'émission s'ouvre. A une énergie lithium de 16,5 MeV<sup>(2)</sup>, l'ouverture angulaire est acceptable ( $\pm 27^\circ$ ). La part de neutrons diffusés dans l'environnement reste plus faible que dans le cas d'une production en cinématique directe non collimatée. Pour les mesures de PFNS, la chambre à fission est placée à  $0^\circ$ . Les détecteurs neutrons peuvent être disposés autour de cette chambre sans utiliser de blindage spécifique vis à vis des neutrons sources. Leur position et leur nombre ne sont plus contraints.

(2). A partir de 16,9 MeV, une nouvelle voie de réaction,  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}^*$ , s'ouvre et à une énergie lithium correspondent quatre énergies neutrons.

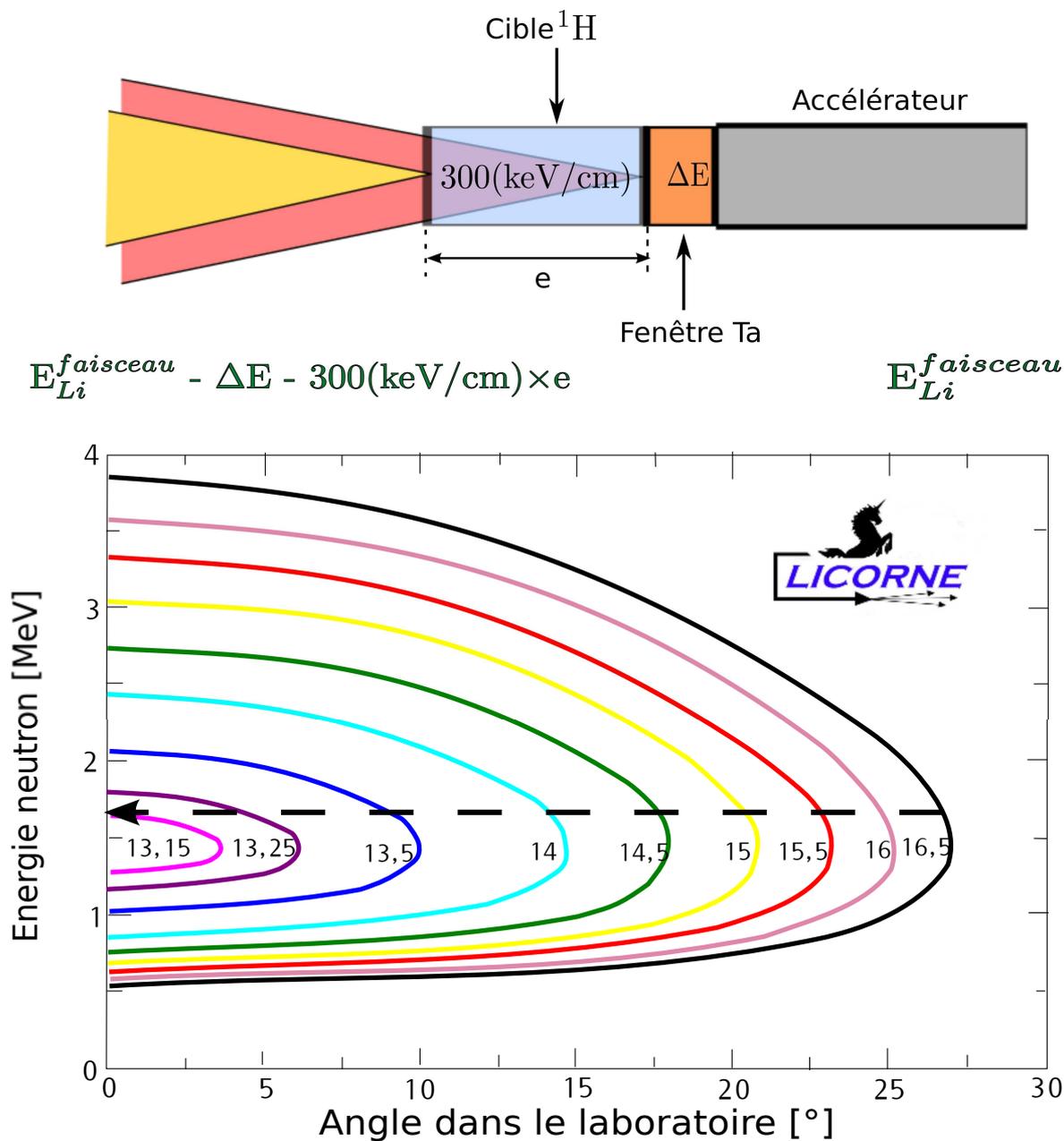


FIGURE B.60 – Cinématique de l'émission neutronique sur la source de neutrons LICORNE. Le lithium perd une énergie  $\Delta E$  dans la fenêtre en tantale avant de traverser la cible gazeuse d'hydrogène où il perd environ 300 keV/cm à pression atmosphérique. Les chiffres indiqués en noir correspondent à l'énergie des ions lithium après perte d'énergie dans le tantale. L'angle maximal d'émission dans le référentiel du laboratoire dépend de l'énergie lithium. De plus, pour une énergie lithium, deux groupes d'énergie neutrons sont produits.

### Énergie des neutrons produits

La source LICORNE permet donc d'obtenir des flux de neutrons naturellement colimatés. Elle a cependant l'inconvénient de ne pas être monoénergétique mais quasi-monoénergétique. En effet, pour chaque énergie lithium, deux groupes de neutrons sont produits dans le référentiel du laboratoire. Ces deux groupes correspondent aux émissions vers l'avant (groupe de haute énergie) et vers l'arrière (groupe de basse énergie) dans le référentiel du centre de masse. Les détails des calculs de cinématique sont donnés dans la référence [66]. Définir une énergie lithium et un angle dans le référentiel du laboratoire revient donc à définir deux énergies neutrons incidentes (sauf à l'angle correspondant à l'ouverture maximale du cône). Afin de différencier entre les énergies neutrons produites, l'accélérateur peut être utilisé en mode pulsé.

La figure B.60 présente la cinématique de la réaction pour différentes énergies lithium. Si l'on considère une énergie lithium en entrée de cible de 15 MeV, alors un détecteur placé à  $0^\circ$  par rapport à l'axe du faisceau dans le référentiel du laboratoire, verra deux groupes de neutrons : un groupe de basse énergie à environ 650 keV et un groupe de haute énergie à environ 3 MeV.

La dispersion sur l'énergie des neutrons provient de la perte d'énergie des atomes de lithium dans la cible gazeuse d'hydrogène. En effet, pour une pression de 1 bar, ceux-ci perdent environ 300 keV/cm. Plus la cible d'hydrogène sera épaisse ou à pression élevée, plus le flux de neutron produit sera intense mais sa dispersion en énergie grande. La dispersion sur l'énergie des neutrons produits correspond environ à la moitié de la dispersion sur l'énergie lithium.

### En résumé...

- Quatre réactions principales permettent de produire des neutrons monoénergétiques.
- Ces réactions peuvent être utilisées en cinématique directe (Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF, Van de Graaff 7 MV du JRC/IRMM) ou en cinématique inverse (source de neutrons LICORNE de l'IPN Orsay).
- En cinématique directe, les neutrons sont :
  - produits avec une faible dispersion en énergie (de l'ordre de la dizaine de keV).
  - émis dans  $4\pi \Rightarrow$ 
    - \* seuls 10% des neutrons produits sont utiles.
    - \* le reste diffuse dans la salle et génère un bruit de fond contre lequel les détecteurs neutrons doivent être protégés.
- En cinématique inverse :
  - Le flux de neutrons est naturellement collimaté de par la cinématique de la réaction  $\Rightarrow$  le retour de salle est faible pour les neutrons sources  $\Rightarrow$  il n'est pas nécessaire de blinder les détecteurs neutrons.
  - Pour une énergie lithium incidente et à un angle donné, deux groupes de neutrons sont produits.
  - La dispersion en énergie des neutrons provient de la perte d'énergie des atomes de lithium dans la cible d'hydrogène gazeux.

## Les points clés de la partie B :

- La distribution en énergie des neutrons prompts de fission est mesurée en utilisant la technique du temps de vol.
- Une bonne résolution en temps du système est nécessaire pour accéder à une bonne résolution en énergie.
- Détection de la fission :
  - Elle est réalisée à l'aide de chambres à fission, qui sont des détecteurs de type chambre d'ionisation.
  - De nouvelles chambres à fission ont été développées :
    - \* Elles permettent de discriminer près de 98% des fissions.
    - \* Elles ont une résolution en temps satisfaisante (de l'ordre de 1 ns à mi-hauteur).
    - \* Elles permettent de réduire à 3% le nombre de neutrons diffusés détectés lors des mesures de PFNS.
    - \* Elles permettent d'obtenir une distorsion du spectre de neutrons de fission inférieure à 30%.
- Détection des neutrons :
  - Elle est réalisée au moyen de scintillateurs inorganiques de type « verre au lithium » entre 50 keV et 1 MeV et par des scintillateurs organiques pour des énergies supérieures à 250 keV.
  - A l'aide d'un blindage en plomb et en optimisant les portes d'intégration, il est possible de discriminer entre neutrons et  $\gamma$  sur des scintillateurs organiques pour des énergies neutrons de 250 keV.
  - Les détecteurs cristallins de type p-terphenyle n'apportent pas un gain sensible de discrimination pour les basses énergies neutrons.
- Le système d'acquisition numérique FASTER permet de supporter de forts taux de comptages mais également d'enregistrer les signaux en sortie des détecteurs, ce qui a permis d'optimiser la discrimination neutron- $\gamma$  hors-ligne.
- La production de neutrons incidents peut être réalisée en :
  - cinématique directe :
    - \* Les neutrons peuvent être produits avec une énergie allant de quelques dizaines de keV à 20 MeV.
    - \* Les neutrons sont émis dans  $4\pi$  Il faut blinder les détecteurs neutrons lors des mesures de PFNS.
  - cinématique inverse avec la source LICORNE :
    - \* Les neutrons peuvent être produits avec une énergie allant de 500 keV à 4 MeV.
    - \* Ils sont émis dans un cône autour de l'axe du faisceau incident . Il n'est plus nécessaire de blinder les détecteurs neutrons.
    - \* La source est quasi-monénergétique : à une énergie lithium correspondent deux énergies neutrons.

## Partie C

# Mesures de spectres en énergie des neutrons prompts de fission



# Chapitre I

## De la mesure aux spectres en énergie des neutrons prompts de fission

Ainsi que nous l'avons vu dans le chapitre I de la partie B de ce mémoire (page 45) le spectre en énergie des neutrons prompts de fission n'est pas mesuré directement mais en utilisant la technique du temps de vol. Les chapitres qui ont suivi ont été consacrés à la présentation du mode de fonctionnement et à l'optimisation des outils expérimentaux utilisés pour les mesures de spectres. Cette troisième et dernière partie présente le travail d'optimisation réalisé sur les éléments de blindage du dispositif expérimental et leur disposition, ainsi que les différentes campagnes de mesures effectuées. Nous décrivons la méthode utilisée pour l'analyse des données recueillies et pour obtenir les distributions en énergie des neutrons prompts, puis présentons le travail de simulation effectué pour corriger des distorsions. Enfin, les résultats sont interprétés à l'aide des modèles présentés au chapitre II de la partie A.

# 1 Dispositifs expérimentaux

L'énergie des neutrons prompts de fission est déterminée en mesurant leur temps de vol entre une cible active de fission et un scintillateur (cf. partie B, chapitre I). Ce temps de vol est ensuite converti en énergie. Comme cela a été évoqué au chapitre V de la partie B, selon que le flux de neutrons induisant la fission est directionnel ou non, le dispositif expérimental utilisé ne sera pas le même.

Dans cette section, nous présentons le travail réalisé sur l'optimisation du dispositif expérimental lors des mesures en cinématique directe, réalisées auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF et du 7 MV du JRC-IRMM, ainsi que le dispositif expérimental utilisé lors des mesures en cinématique inverse auprès de la source de neutrons LICORNE.

## 1.1 Cas d'un flux de neutrons non directionnel

Lorsque le flux de neutrons incidents n'est pas directionnel, il est nécessaire d'utiliser un blindage autour des scintillateurs afin d'assurer que seuls les neutrons de fission parviendront au détecteur. Ces dispositifs de blindage, appelés « bombardes » par la suite, sont essentiellement constitués de paraffine borée. De par l'encombrement qu'ils génèrent, ils limitent le nombre de scintillateurs utilisables. Par ailleurs, ces bombardes sont à l'origine de distorsions sur les spectres neutron mesurés. En effet, un neutron de fission peut interagir avec le corps d'une bombe avant de parvenir au détecteur. Il sera alors mesuré avec un temps plus long que s'il avait eu une trajectoire directe et/ou avec une énergie différente de lors de son émission. Il est donc important de choisir les bombardes afin qu'elles induisent le moins de distorsion possible, tout en offrant un blindage efficace contre les neutrons produits par l'accélérateur.

### 1.1.1 Mesure sur l' $^{235}\text{U}$ auprès du Van de Graaff 7 MV du JRC-IRMM

Une mesure, réalisée auprès de l'accélérateur Van de Graaff 7 MV du JRC-IRMM, a permis d'étudier la fission de l' $^{235}\text{U}$  induite par des neutrons de 500 keV. Le dispositif expérimental utilisé est présenté en figure C.1. Il se compose d'une chambre à fission contenant de l' $^{235}\text{U}$  et de deux scintillateurs organiques (un p-terphenyle et un scintillateur liquide de type NE213) placés dans deux petites bombardes afin de les protéger du bruit ambiant. De plus, deux protections en plomb permettent d'empêcher que les  $\gamma$  produits au niveau de la cible de production de l'accélérateur ne parviennent aux scintillateurs.

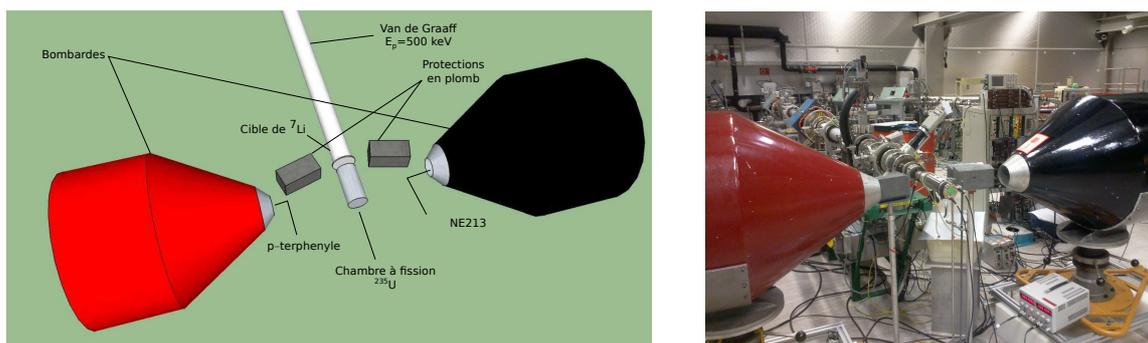


FIGURE C.1 – Dispositif expérimental utilisé pour la mesure du spectre en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission induite par des neutrons de 500 keV de l' $^{235}\text{U}$ . La détection des neutrons est réalisée au moyen de deux scintillateurs organiques, placés dans des bombardes afin de permettre une réduction du bruit ambiant. Des protections en plomb permettent de limiter la détection des  $\gamma$  produits au niveau de la cible de production de l'accélérateur.

Le système d'acquisition [69] a été développé au sein du JRC-IRMM. Il s'agit d'un système numérique utilisant des cartes Acqiris. Contrairement au système FASTER (cf. partie B, chapitre IV), ce système ne gère pas, au cours de l'acquisition, le traitement du signal (i.e. filtrage, intégrations, etc.). Les signaux physiques sont enregistrés et seront traités hors-ligne par l'utilisateur. Les principaux désavantages de ce format sont qu'il ne permet pas la visualisation en ligne des données, qu'il génère un important volume de données mais surtout qu'il ne permet pas de soutenir de forts taux de comptage. En revanche, il présente l'avantage d'offrir à l'utilisateur la possibilité de changer, lors du post-traitement, les portes d'intégrations, les seuils de déclenchement, etc.

Au moment où cette mesure a été réalisée, ce système ne comportait que quatre voies. Nous en avons utilisé trois : une pour l' $^{235}\text{U}$  et deux pour les scintillateurs organiques (une par détecteur). L'acquisition ne pouvant soutenir de forts taux de comptage, nous avons utilisé des modules analogiques afin de ne la déclencher que lors de coïncidences entre un événement dans la chambre à fission et la détection d'une particule (neutron ou  $\gamma$ ) dans l'un des scintillateurs (cf. figure C.2).

Les résultats sont présentés au chapitre II.

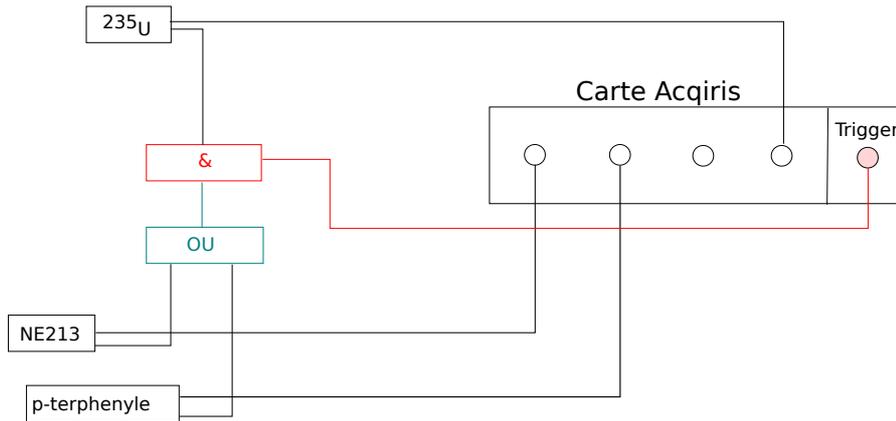


FIGURE C.2 – Schéma logique de l’acquisition utilisée lors de la mesure de PFNS de l’ $^{235}\text{U}$  auprès du 7 MV du JRC-IRMM. Un OU sur les détecteurs neutrons couplé à un ET avec la chambre à fission permet de ne déclencher l’acquisition que lors d’une coïncidence chambre à fission-détecteur neutron.

### 1.1.2 Mesures sur l’ $^{238}\text{U}$ auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF

Cinq campagnes de mesures du spectre en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission induite par neutrons de l’ $^{238}\text{U}$  ont été effectuées auprès de l’accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF.

Le flux de neutrons produit par l’accélérateur n’étant pas directionnel, les détecteurs neutrons doivent être placés dans des bombardes. Nous avons réalisé plusieurs essais afin de déterminer une configuration optimale pour les mesures de PFNS auprès de cette installation.

Nous avons tout d’abord utilisé une bombarde de petite dimension (cf. figure C.3) dans laquelle était placée l’un des détecteurs p-terphenyle présenté en partie B, chapitre III. Le détecteur n’était pas placé au fond de la bombarde afin de minimiser la distance de vol (i.e. maximiser l’efficacité géométrique de détection).

A l’aide de simulations avec MCNPX, nous avons étudié la distorsion générée par cette bombarde sur le spectre mesuré. Pour cela, le résultat d’une première simulation réalisée en positionnant une source de  $^{252}\text{Cf}$  à 1 m du détecteur p-terphenyle et avec la bombarde est divisé par le résultat obtenu dans les mêmes conditions mais sans la bombarde.

Ainsi qu’on peut le constater en figure C.3, la petite bombarde permet d’obtenir de faibles distorsions (de l’ordre de 5%), sauf pour des énergies neutrons inférieures à 250 keV.

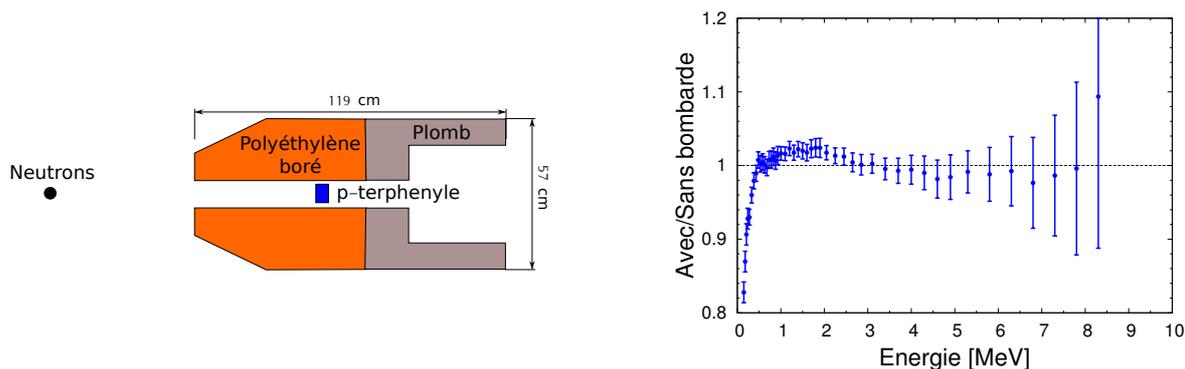


FIGURE C.3 – Distorsion générée par une petite bombarde faite de plomb et de polyéthylène boré sur le spectre en énergie des neutrons prompts de fission, mesuré avec un détecteur p-terphenyle positionné à 1 m de la source. Cette distorsion est inférieure à 5%, sauf pour des énergies neutrons inférieures à 250 keV.

Cependant, nous ne possédions qu'une seule de ces bombardes. Pour pouvoir augmenter l'efficacité géométrique de détection du dispositif, nous avons ajouté des détecteurs supplémentaires en les plaçant à l'intérieur de bombardes de plus grande dimension. Nous avons, dans un premier temps, placé des détecteurs de petite dimension ( $\varnothing 2'' \times 2''$ ) à l'avant de la bombarde (position 1 en figure C.4). Cette configuration a été choisie dans l'optique de conserver une faible base de vol.

Les distorsions observées sur le spectre mesuré (courbe bleue en figure C.4) sont de plus de 50% pour des énergies inférieures à 500 keV. Nous avons donc considéré un autre cas : celui d'une cellule de plus grande dimension ( $\varnothing 12,5 \times 5$  cm), placée plus loin dans la bombarde (position 2 en figure C.4). Bien que 2,5 fois plus éloignée, le diamètre de la cellule étant 2,5 fois plus grand que celui de la précédente, l'efficacité géométrique reste sensiblement la même. Les distorsions sur le spectre mesuré sont alors beaucoup plus faibles (autour de 5% seulement pour des énergies neutrons inférieures à 500 keV).

Cette configuration a donc été retenue comme étant optimale pour des mesures auprès du 4 MV. Ces bombardes étant très volumineuses, il n'est possible de placer qu'au maximum 5 scintillateurs autour de la chambre, ainsi qu'on peut le voir en figure C.5.

Pour ces mesures en cinématique directe la dispersion sur l'énergie des neutrons incidents est estimée à partir de la dispersion sur l'énergie du faisceau. Elle est de l'ordre d'une centaine de keV.

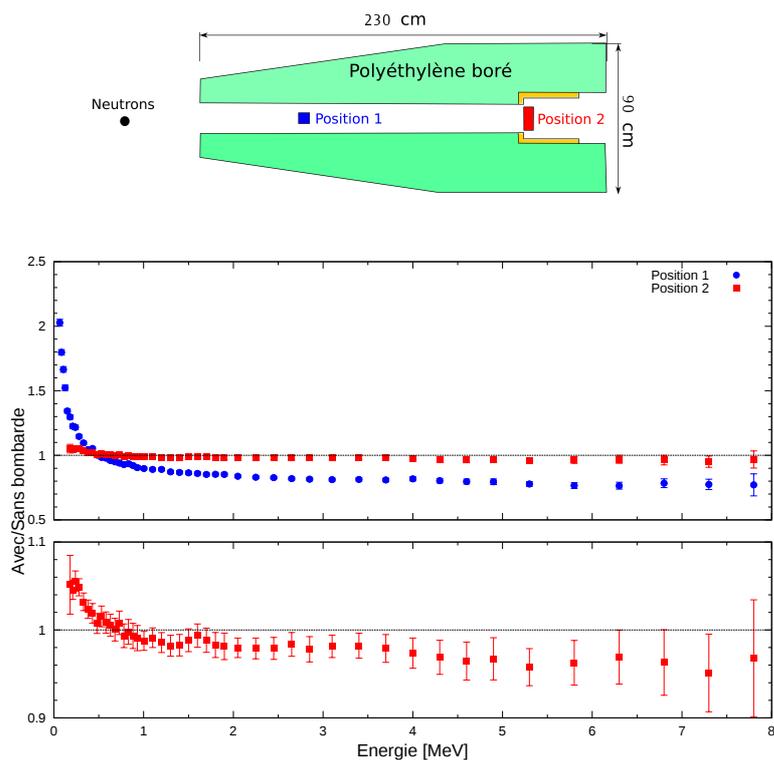


FIGURE C.4 – Simulation de la distorsion générée par une grande bombarde faite de polyéthylène boré sur le spectre en énergie des neutrons prompts de fission obtenu en utilisant un détecteur de 2" de diamètre et 2" d'épaisseur positionné à 1 m de la source (position 1) en bleu et un détecteur de 12,5 cm de diamètre et 5 cm d'épaisseur placé à 2,40 m (position 2) en rouge. Le panneau du bas correspond à un agrandissement pour la distorsion du détecteur en position 2.

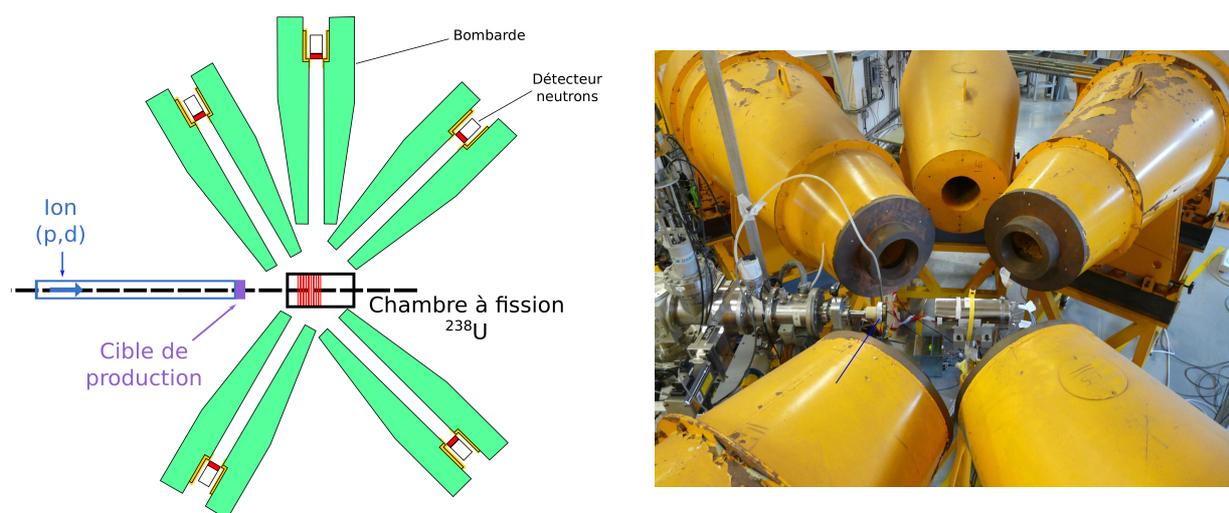


FIGURE C.5 – Dispositif expérimental pour la mesure du spectre en énergie des neutrons prompts de fission de  $^{238}\text{U}$  induite par des neutrons de 15 MeV auprès du 4 MV du CEA, DAM, DIF.

## 1.2 Cas d'un flux de neutrons collimaté ou directionnel

Des mesures sur  $^{238}\text{U}$  ont également été effectuées auprès de la source de neutrons LICORNE de l'IPNO (cf. partie B chapitre V). Le flux de neutrons produit étant directionnel, il n'est pas nécessaire d'utiliser de blindage autour des détecteurs neutrons. Il est alors possible d'utiliser un plus grand nombre de scintillateurs (13), positionnés à différents angles autour de la chambre à fission, ainsi qu'on peut le voir en figure C.6.

A cette occasion, nous avons également complété le dispositif avec l'ajout de quatre verres au lithium (cf. partie B chapitre III) : trois verres GS20 ( $^6\text{Li}$ ) et un verre GS30 ( $^7\text{Li}$ ). Ces détecteurs permettent d'accroître l'efficacité de détection pour des énergies neutrons inférieures à 500 keV.

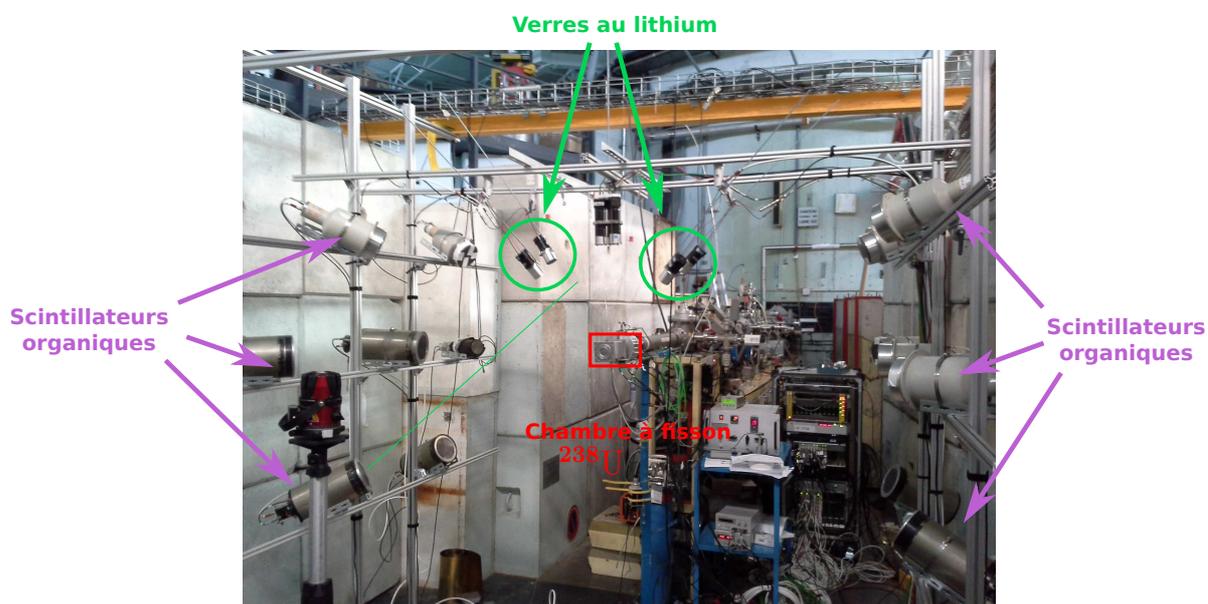


FIGURE C.6 – Photographie du dispositif expérimental utilisé lors des mesures auprès de la source de neutrons LICORNE de l'IPN Orsay.

Pour ces mesures, la cible gazeuse de production utilisée avait une épaisseur de 2 cm pour une pression en hydrogène de 1,3 bar. Afin de déterminer l'énergie des neutrons incidents et la dispersion sur leur énergie induite par la cible gazeuse, nous avons réalisé une mesure temps de vol entre l'accélérateur (avec le module RF de FASTER (cf. partie B chapitre IV)), et un scintillateur liquide organique placé dans l'axe du faisceau. Le résultat de ces caractérisations et leur correspondance sur la courbe de section efficace de fission de  $^{238}\text{U}$  est présenté en figure C.7.

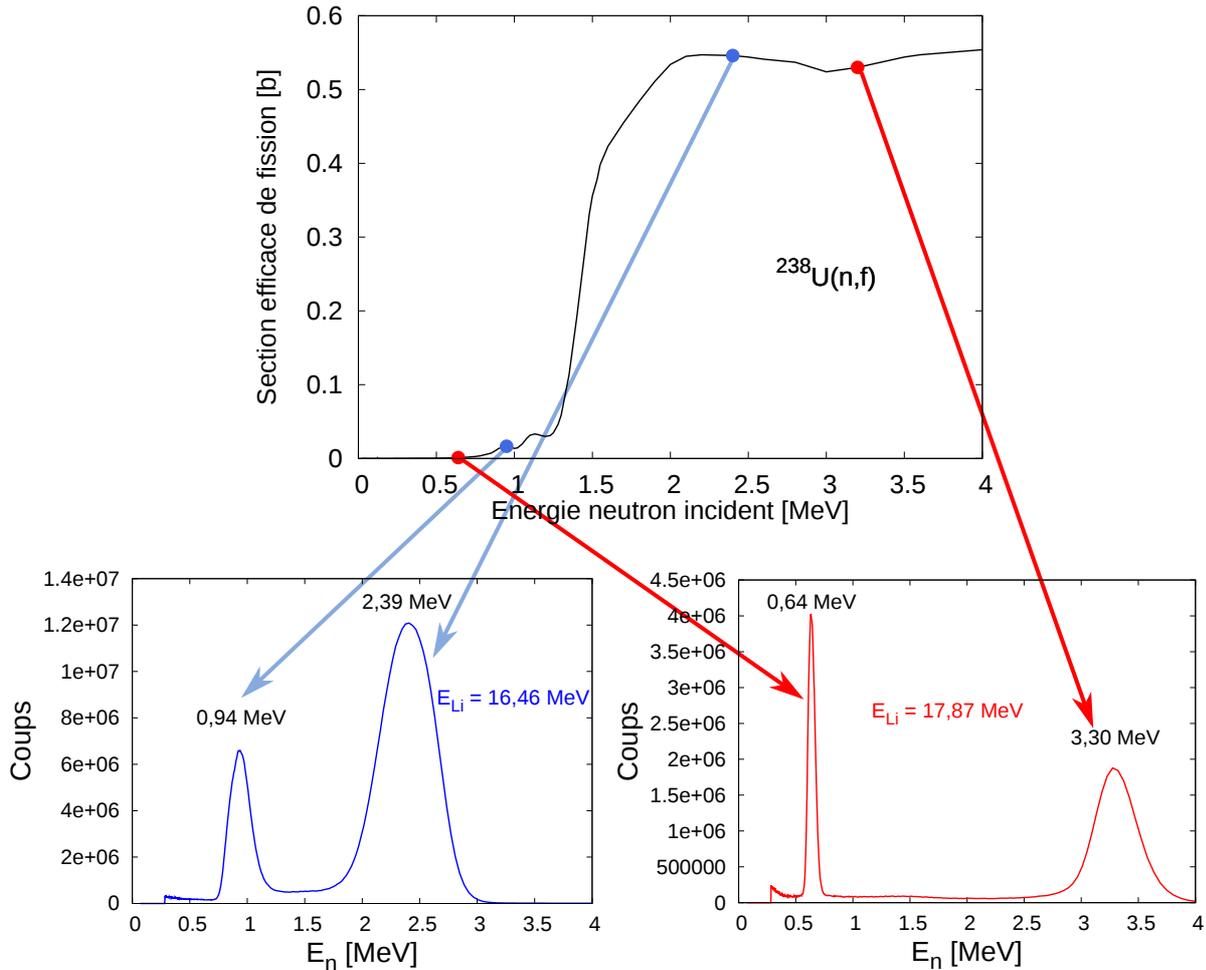


FIGURE C.7 – Caractérisation de l'énergie des neutrons incidents lors des mesures de PFNS sur l' $^{238}\text{U}$  avec LICORNE. Le panneau supérieur représente la position des énergies des neutrons incidents sur la courbe de section efficace de fission. Les panneaux inférieurs correspondent à la caractérisation du faisceau obtenue par temps de vol pour chacune des énergies lithium.

Suite à une mauvaise estimation de la perte d'énergie du lithium dans la fenêtre en tantale, lors de la mesure à 2,4 MeV, le groupe de neutrons de basse énergie se situe juste à l'ouverture de la première chance de fission, au lieu d'en-dessous du seuil, comme cela était initialement prévu. Néanmoins, le taux de production de neutrons de 1 MeV est plus faible que celui de neutrons de 2,4 MeV. Ainsi, moins de 2,8% des fissions sont induites par des neutrons de cette énergie.

Afin d'estimer la dispersion sur l'énergie des neutrons incidents, une fonction gaussienne est ajustée sur la composante haute énergie de la distribution mesurée par temps de vol. La largeur à mi-hauteur correspond à la somme quadratique de la résolution sur l'énergie des neutrons produits et de la résolution liée à la mesure de temps de vol (cf. partie B, chapitre I, page 46), qui dépend de l'incertitude sur la base de vol et de la résolution en temps du système de mesure. L'incertitude sur la base de vol provient de l'épaisseur de la cible de production (2 cm) et de l'épaisseur de la cellule scintillante utilisée pour le monitoring (cellule EDEN de 20 cm d'épaisseur). La résolution en temps provient de la pulsation du faisceau et de la résolution en temps du détecteur. Elle est de l'ordre de 2 ns. La résolution en énergie des neutrons incidents est d'environ 200 keV.

### 1.3 Synthèse des campagnes de mesure

Ainsi que nous avons pu le voir, diverses campagnes de mesures de PFNS ont été effectuées au cours de la thèse. Nous en résumons les caractéristiques dans le tableau C.1. Ce dernier présente pour chaque mesure :

- la nature de l'actinide étudié
- l'installation où la mesure a été effectuée
- l'énergie des neutrons incidents et la dispersion sur cette énergie
- le modèle de la chambre à fission (cf. partie B, chapitre II)
- le nombre et le type des détecteurs neutrons
- le type de blindage
- la base de vol moyenne

TABLEAU C.1 – Tableau résumant les caractéristiques des dispositifs expérimentaux utilisés. L'appellation BC501A se réfère à des scintillateurs liquides de taille  $\varnothing 2'' \times 2''$  et l'appellation NE213 à des scintillateurs liquides du même type, mais de taille  $\varnothing 12,5 \times 5$  cm.

Actinide	Installation	Énergie [MeV]	Chambre à fission	Détecteurs neutrons	Blindage	Base de vol moyenne [m]
$^{235}\text{U}$	7MV du JRC/IRMM (Cinématique directe)	$0,56 \pm 0,05$	Ancienne	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 1 p-terphenyle</li> <li>• 1 BC501A</li> </ul>	Petites bombardes	1
$^{238}\text{U}$	4MV du CEA, DAM, DIF (Cinématique directe)	$1,6 \pm 0,1$	Ancienne	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 1 p-terphenyle</li> <li>• 1 BC501A</li> </ul>	Grandes bombardes	0,96
		$5,1 \pm 0,1$	Ancienne	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 1 p-terphenyle</li> </ul>	Petite bombarde	1,06
		$15,3 \pm 0,4$	Ancienne	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 5 NE213</li> </ul>	Grandes bombardes	2,45
		$2,0 \pm 0,1$	Nouvelle	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 4 NE213</li> </ul>	Grandes bombardes	2,35
		$2,6 \pm 0,1$	Nouvelle	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 4 NE213</li> </ul>	Grandes bombardes	2,35
	LICORNE (Cinématique inverse)	$2,4 \pm 0,20$	Nouvelle	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 13 NE213</li> <li>• 3 verres <math>^6\text{Li}</math></li> <li>• 1 verre <math>^7\text{Li}</math></li> </ul>	Non	1,34
	$3,3 \pm 0,23$	Nouvelle	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 13 NE213</li> <li>• 3 verres <math>^6\text{Li}</math></li> <li>• 1 verre <math>^7\text{Li}</math></li> </ul>	Non	1,34	

La figure C.8 situe les différentes mesures de PFNS de l' $^{238}\text{U}$  sur la courbe de section efficace de fission.

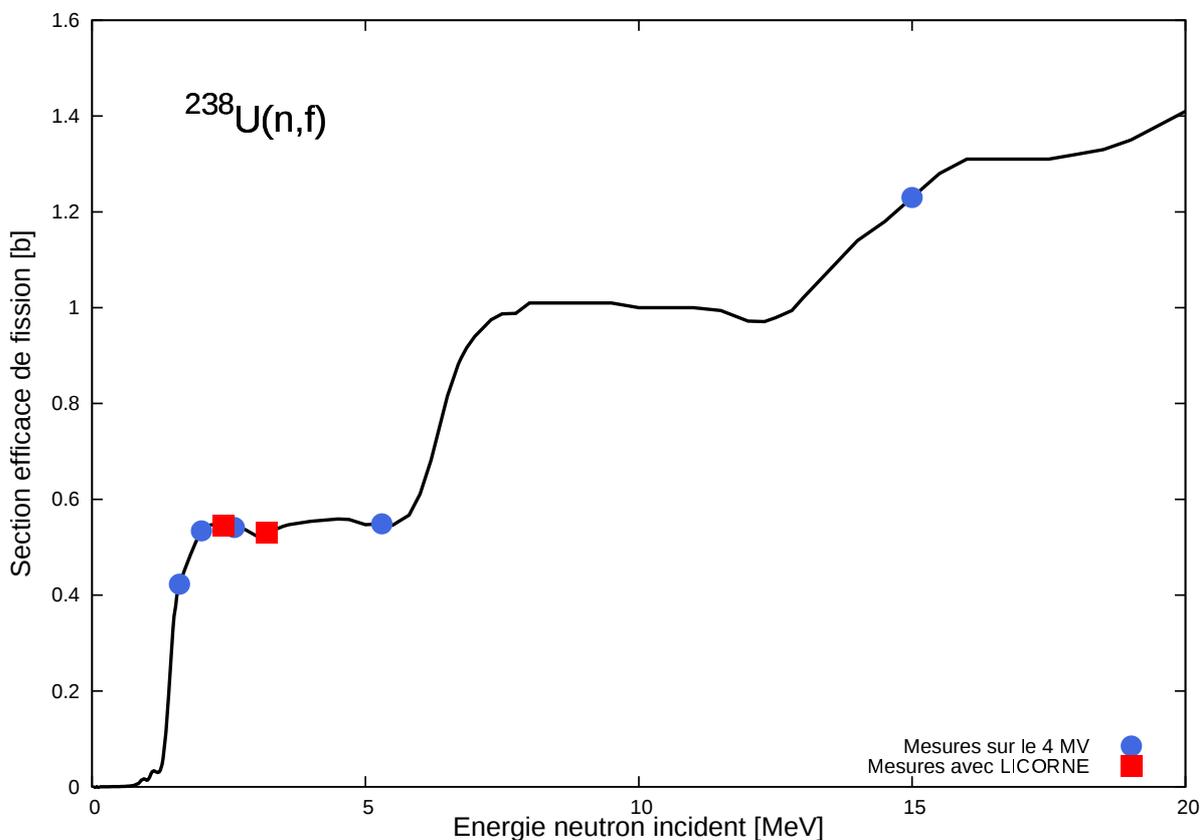


FIGURE C.8 – Mesures de PFNS sur l' $^{238}\text{U}$  : correspondance entre les énergies des neutrons incidents et la courbe de section efficace de fission.

Ces mesures permettent d'explorer l'évolution de la distribution en énergie des neutrons prompts de fission avec l'énergie du neutron incident sur toute la zone correspondant à la fission de première chance. Le point à 15 MeV se situe à l'ouverture de la fission de troisième chance.

Deux mesures ont été réalisées pour une énergie des neutrons incidents similaire : une pour des neutrons de 2,4 MeV auprès de la source LICORNE et une pour des neutrons de 2,6 MeV auprès du 4MV. Le tableau C.2 présente quelques valeurs caractéristiques pour chacune de ces expériences.

TABLEAU C.2 – Taux de comptage et rapport signal sur bruit lors de mesures auprès du 4 MV et avec la source de neutrons LICORNE.

Installation	4 MV	LICORNE
Taux de fissions (/s)	80	50
Base de vol moyenne (m)	2,35	1,0
Taux de coïncidence fission-neutron (/s)	0,02	0,1
Signal/Bruit	3	9

Bien que le flux de neutrons (et donc le taux de fissions) soit légèrement plus faible auprès de la source LICORNE, les détecteurs neutrons étant disposés plus proche de la chambre à fission, le taux de coïncidence fission-neutron est 5 fois plus élevé que lors de mesures auprès du 4 MV.

Par ailleurs, les neutrons étant émis de manière directionnelle avec la source LICORNE, le rapport signal sur bruit est 3 fois meilleur que lors de mesures auprès du 4 MV.

## 2 Des données expérimentales aux spectres en énergie

Lors des campagnes de mesures sur l' $^{238}\text{U}$  évoquées précédemment, les signaux ont été partiellement traités puis enregistrés avec le système d'acquisition numérique FASTER (cf. partie B chapitre IV).

Dans cette section, nous présentons plus en détails la manière dont les distributions en énergie des neutrons prompts de fission sont obtenues.

### 2.1 Construction du spectre temps de vol neutrons

Les données sont enregistrées dans l'ordre chronologique. Pour chaque événement sont stockés :

- son numéro depuis le début de l'acquisition
- le numéro de la voie sur laquelle il a eu lieu
- l'instant auquel il a eu lieu
- entre une et trois charges (i.e. résultats d'intégrations sur le signal)

Le module de décision est activé en mode booléen avec un OU sur les voies chambres à fission. Les détecteurs neutrons sont placés en suiveurs. Lorsqu'un événement « détecteur neutron » se produit dans la fenêtre temporelle désirée (300 ns pour une base de vol de 1 m et 500 ns pour une base de vol de 2,4 m) autour d'un événement « chambre à fission », un événement de type coïncidence est généré dans lequel sont regroupés l'événement « chambre à fission » et l'événement « détecteur neutron ».

Pour plus de facilité lors de l'analyse, les données au format FASTER sont transformées en arbres ROOT<sup>(1)</sup>. Chacun des événements enregistré ayant été marqué en temps, il est possible de reconstruire, à partir de ces arbres, le spectre temps de vol des neutrons sur chacun des scintillateurs utilisés.

---

(1). ROOT [70] est un environnement pour l'analyse de données développé au CERN en 1994 par René Brun et Fons Rademakers. Originellement conçu pour la physique de haute énergie, il contient de nombreux outils pouvant être utilisés dans d'autres disciplines et s'appuie sur une programmation orientée objet grâce à un interpréteur C/C++.

### 2.1.1 Discrimination $\alpha$ -fission

Comme nous l'avons vu en partie B, chapitre II, les actinides peuvent fissionner ou se désintégrer par émission de particules  $\alpha$ . Ce dernier type de désintégration est également détecté au sein de la chambre à fission et génère des coïncidences fortuites. Afin de ne pas prendre en compte ces dernières lors de la reconstruction du spectre temps de vol, un seuil est placé sur l'amplitude des événements survenant dans la chambre à fission. Celui-ci permet de ne conserver que les signaux générés par les fragments de fission (cf. figure C.9).

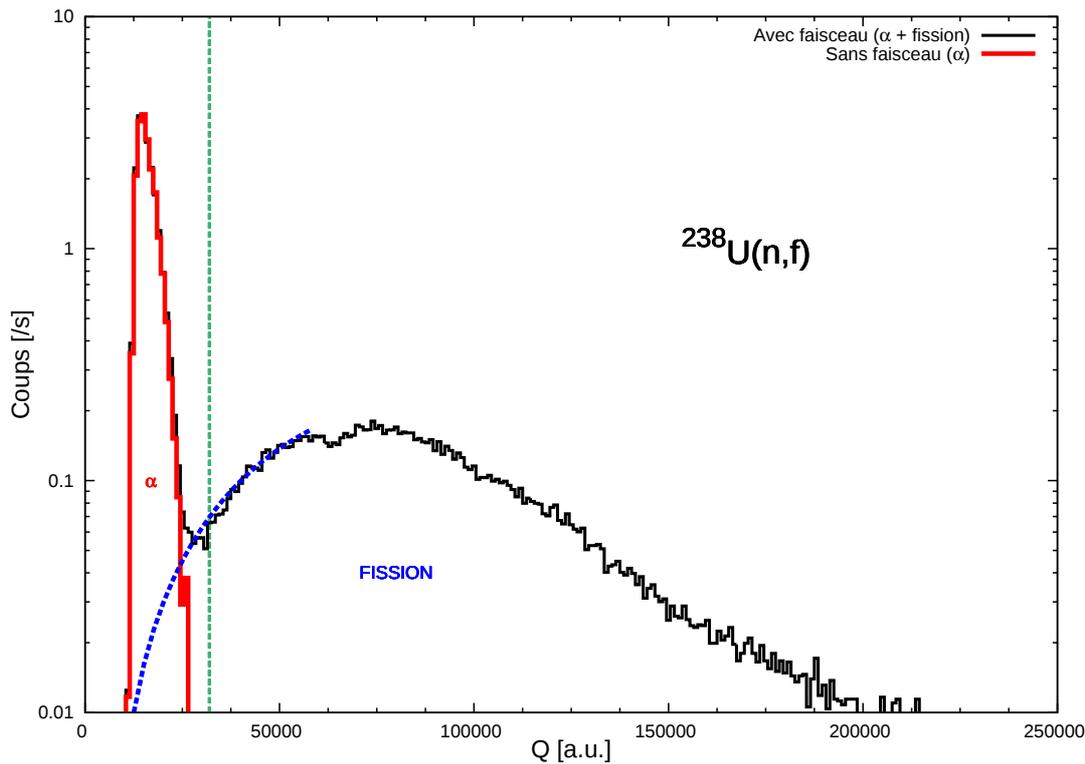


FIGURE C.9 – Discrimination  $\alpha$ -fission et seuil de coupure appliqué lors de la reconstruction des spectres temps de vol. Cette discrimination a été obtenue sur la nouvelle chambre à fission  $^{238}\text{U}$  présentée en partie B, chapitre II.

En raison du seuil utilisé, la part de fission perdue ne correspond pas aux 2,9% estimés de la zone de recouvrement (cf. partie B, chapitre II, page 74) mais à 4% du nombre total de fission. Le spectre temps de vol ainsi obtenu, présenté en trait plein noir sur la figure C.10, ne comporte que les coïncidences entre les événements du détecteur neutron et les fissions.

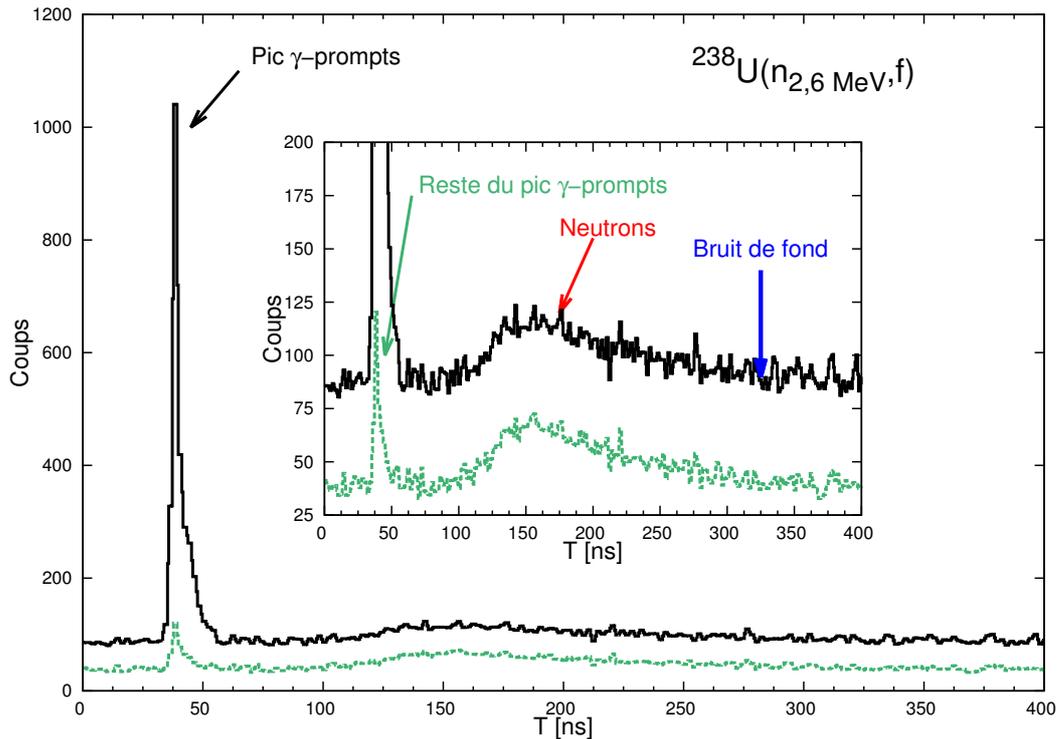


FIGURE C.10 – Spectre temps de vol reconstruit après discrimination  $\alpha$ -fission (en noir) puis après discrimination neutron- $\gamma$  (en pointillés verts) lors d'une mesure sur le Van de Graaff 4 MV du CEA. Ces deux spectres présentent trois composantes : un pic  $\gamma$ , une distribution neutron et une composante de bruit de fond.

Ce spectre présente trois composantes :

1. un pic correspondant aux  $\gamma$ -prompts émis lors du processus de fission : les photons sont tous émis de manière quasi-simultanée et se propagent tous à la même vitesse. Ils devraient donc tous arriver au même instant sur le détecteur. La largeur du pic observée est représentative de la résolution en temps du système.
2. une distribution neutron : les neutrons se propageant plus lentement que les photons, elle se situe après le pic  $\gamma$ . La largeur de cette distribution est représentative de la distribution en énergie des neutrons convoluée de la résolution en temps du système.
3. le bruit de fond ambiant (neutronique et électromagnétique) : il est essentiellement dû aux neutrons et  $\gamma$  diffusés dans l'environnement, qui génèrent des coïncidences fortuites.

### 2.1.2 Discrimination neutron- $\gamma$

L'étape suivante consiste à discriminer entre les événements neutrons et les événements  $\gamma$  afin de ne plus conserver que la composante neutron du spectre temps de vol.

Les verres au lithium n'ont été utilisés que sur l'installation LICORNE, laquelle permet d'obtenir des flux de neutrons incidents directionnels et donc peu de bruit lié au faisceau. Ainsi, la discrimination peut être réalisée à partir d'un seuil bidimensionnel énergie déposée-temps réduit, ainsi que présenté en partie B, chapitre III, page 94.

Pour les scintillateurs organiques, la discrimination est réalisée en étudiant la forme du signal, ainsi que nous l'avons vu au chapitre III de la partie B. La figure C.11 présente la discrimination neutron- $\gamma$  obtenue sur l'un des détecteurs NE213 ( $\varnothing 12,5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ ).

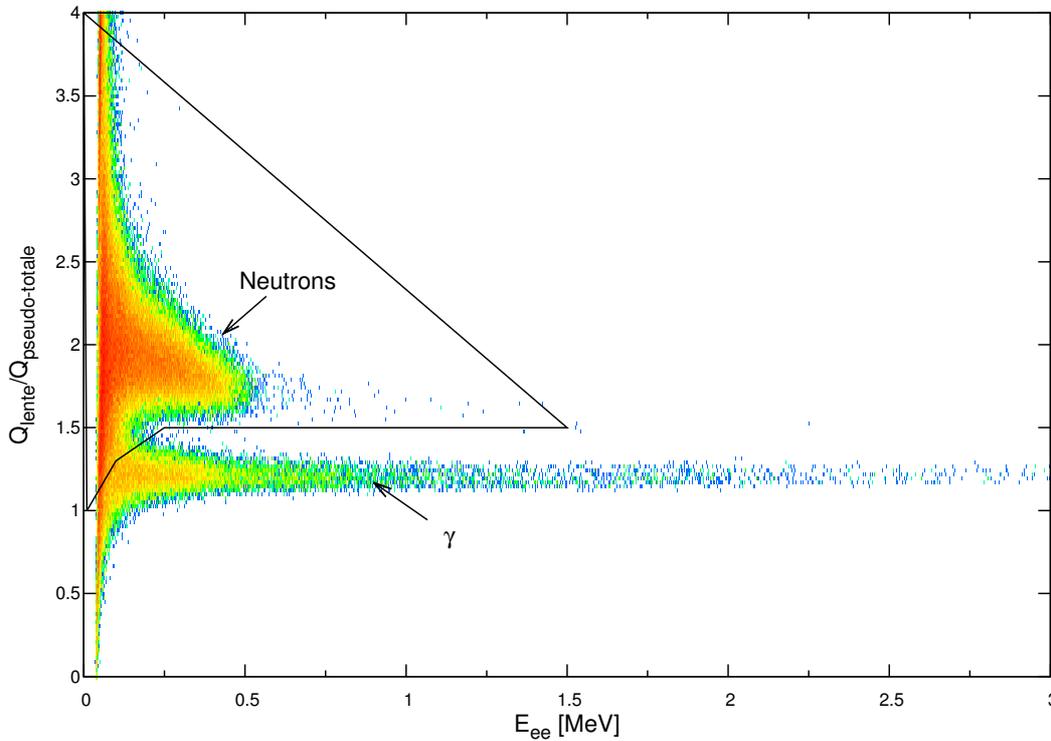


FIGURE C.11 – Discrimination neutron- $\gamma$  sur un détecteur NE213 lors d'une campagne de mesure auprès du 4 MV. L'axe des abscisses correspond à l'énergie équivalent-électron déposée dans le volume du scintillateur et l'axe des ordonnées au rapport des charges calculées en intégrant la composante lente et la composante pseudo-totale du signal (cf. partie B, chapitre III). Le contour représente la sélection des neutrons effectuée lors de l'analyse des données.

Le spectre en pointillés vert sur la figure C.10 correspond au spectre noir de la même figure après discrimination, c'est-à-dire en appliquant la coupure sélectionnant les neutrons (cf. figure C.11).

Ce spectre présente un reste du pic  $\gamma$ -prompt (environ 20%) et une composante bruit de fond en plus de la composante neutron, qui nous intéresse pour notre étude.

## 2.2 Du temps à l'énergie

Le spectre temps de vol obtenu ne peut pas être directement converti en énergie. Il doit d'abord être recalé en temps et la composante liée au bruit de fond doit être soustraite.

### 2.2.1 Étalonnage en temps

Pour recalé en temps le spectre temps de vol, on utilise sa composante  $\gamma$ . En effet, les photons se propagent à la vitesse de la lumière  $c$ , soit environ 30 cm/ns. Connaissant la base de vol  $L_{vol}$  <sup>(2)</sup> (cf. partie B, chapitre I, page 46), il est possible de calculer le temps au bout duquel ils auraient dû être détectés. L'ajustement d'une fonction gaussienne sur le pic  $\gamma$  donne l'instant  $T_\gamma$  auquel la détection s'est effectivement produite. L'intégralité du spectre est alors translaté d'une valeur  $-T_0 = -(T_\gamma - \frac{L_{vol}}{c})$ . Le résultat est présenté en figure C.12.

### 2.2.2 Correction de bruit de fond

Une fois le spectre recalé en temps, il s'agit de soustraire la composante de bruit de fond. Deux cas de figure se présentent alors : le cas d'un bruit de fond non corrélé et le cas d'un bruit de fond corrélé.

#### Bruit de fond non corrélé

Lors des mesures auprès du Van de Graaff 4 MV de CEA, DAM, DIF et du 7 MV du JRC/IRMM, les murs étaient éloignés de l'endroit où se situaient les dispositifs expérimentaux. Par conséquent, le bruit de fond observé n'est dû qu'aux neutrons et  $\gamma$  du faisceau, diffusant dans l'environnement. L'accélérateur étant utilisé en mode continu, ce phénomène est non corrélé en temps. Le bruit de fond est alors plat, ainsi qu'on peut le constater en figure C.12.

Il est estimé en moyennant la composante du spectre située à la droite de la distribution neutron, puis soustrait sur l'ensemble de la gamme en temps.

---

(2). La source est considérée ponctuelle au milieu de la chambre à fission et l'interaction dans le détecteur neutron comme ayant lieu au milieu de la cellule scintillante.

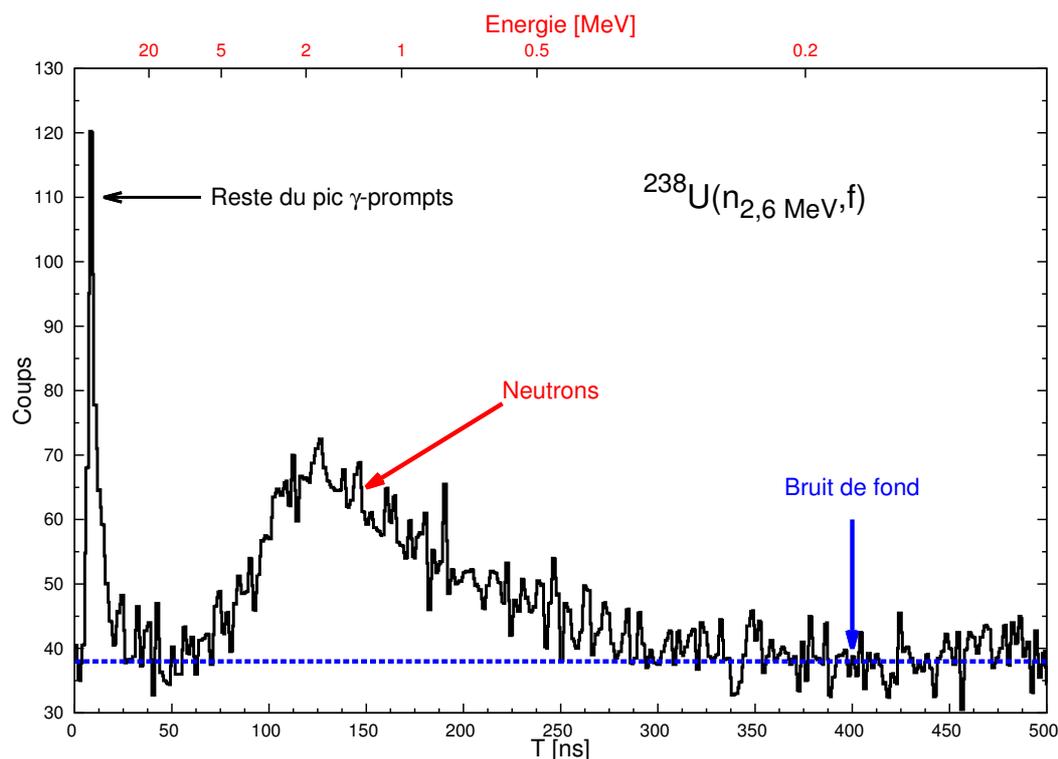


FIGURE C.12 – Composante neutron du spectre temps de vol étalonné en temps, après discrimination  $\alpha$ -fission et discrimination neutron- $\gamma$ , lors d'une mesure auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF. Le bruit est non corrélé en temps.

### Bruit de fond corrélé

Lors des mesures effectuées auprès de l'installation LICORNE, les murs étaient proches des détecteurs NE213 (environ 60 cm). Le bruit de fond observé a alors deux composantes (cf. figure C.13).

- ① une composante non corrélée en temps, due aux neutrons et  $\gamma$  du faisceau diffusant dans l'environnement.
- ② une composante corrélée en temps, due aux neutrons de fission diffusant sur les murs de la salle avant d'interagir dans le volume du scintillateur.

La première composante peut être estimée selon la technique présentée au paragraphe précédent. En revanche, la composante corrélée est plus compliquée à déterminer. En effet, elle dépend de la distribution en énergie des neutrons émis lors de la fission et n'est pas présente sur l'intégralité du spectre. Elle a été déterminée à l'aide d'un travail de simulation, présenté plus en détail en section 3.1.

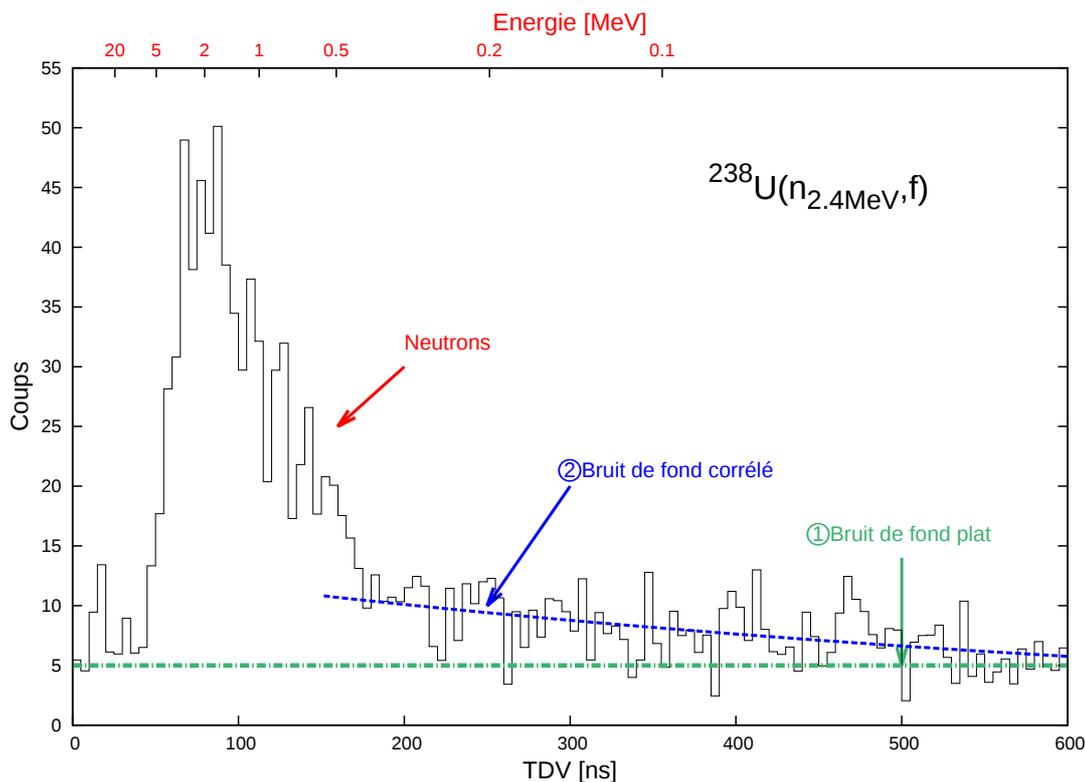


FIGURE C.13 – Composante neutron du spectre temps de vol étalonné en temps, après discrimination  $\alpha$ -fission et discrimination neutron- $\gamma$ , lors d'une mesure auprès de la source de neutrons LICORNE. Le bruit de fond a deux composantes : une corrélée et une non-corrélée en temps.

### 2.2.3 Conversion en énergie

Le spectre temps de vol, corrigé du bruit de fond, est ensuite converti en énergie. Le spectre en énergie est obtenu en convertissant borne à borne le spectre temps de vol à l'aide de l'équation B.1, page 46. Ce spectre est ensuite normalisé de la largeur des canaux (afin d'obtenir des coups par unité d'énergie) et du nombre de fission. Il est également corrigé de l'efficacité de détection de la cellule.

### 2.2.4 Correction de l'efficacité de détection

L'efficacité de détection a deux composantes (cf. partie B chapitre III) : une composante géométrique, qui dépend de l'angle solide intercepté par le détecteur, et une composante intrinsèque qui dépend de l'énergie du neutron détecté, du seuil de détection, etc.

Usuellement, le spectre en énergie des neutrons prompts du  $^{252}\text{Cf}$  est utilisé pour déterminer une efficacité intrinsèque de détection dites « effective ».

Pour cela, la chambre  $^{238}\text{U}$  est remplacée par une chambre, de même géométrie, contenant du  $^{252}\text{Cf}$ , toute chose identique par ailleurs.

Ainsi, le rapport du spectre mesuré sur celui de l'évaluation de Mannhart [20], permet de déterminer une efficacité intrinsèque effective, car prenant en compte les distorsions dues à la géométrie du dispositif. Cette efficacité est ensuite utilisée pour corriger les distributions en énergie des neutrons prompts de  $^{238}\text{U}$ .

Dans le cas de l'utilisation de plusieurs cellules scintillantes, les spectres mesurés sur chacune d'entre elles sont corrigés de cette efficacité effective puis sommés.

Cette méthode présente cependant quelques limites. Pour une bonne prise en compte des distorsions, la géométrie de la chambre  $^{252}\text{Cf}$  doit être exactement la même que celle de la chambre contenant l'actinide étudié, ce qui n'était pas le cas lors de la mesure sur  $^{235}\text{U}$  et sur 3 des mesures sur  $^{238}\text{U}$  (à 1,6, 5,1 et 15,3 MeV). Par ailleurs, la distribution en énergie des neutrons émis par le  $^{252}\text{Cf}$  est différente de celle des neutrons émis lors de la fission de  $^{238}\text{U}$  ou de  $^{235}\text{U}$ . Or les distorsions sur le spectre mesuré sont issues des interactions des neutrons dans l'environnement, qui dépendent de l'énergie de ces derniers. Les corrections à apporter peuvent donc ne pas être de même ampleur, ainsi que cela a été démontré sur des détecteurs de type « verre au lithium », dans la référence [71].

Afin de jauger de cet effet sur des scintillateurs liquides de type NE213, nous avons simulé avec et sans bombe les distributions en énergie des neutrons prompts obtenues pour une source de  $^{252}\text{Cf}$  et avec de  $^{238}\text{U}$ . Pour chaque actinide, le rapport des deux configurations est présenté en partie (a) de la figure C.14. Afin de mieux appréhender la différence entre ces deux courbes, leur différence est présentée en terme de pourcentage sur la partie (b) de cette même figure.

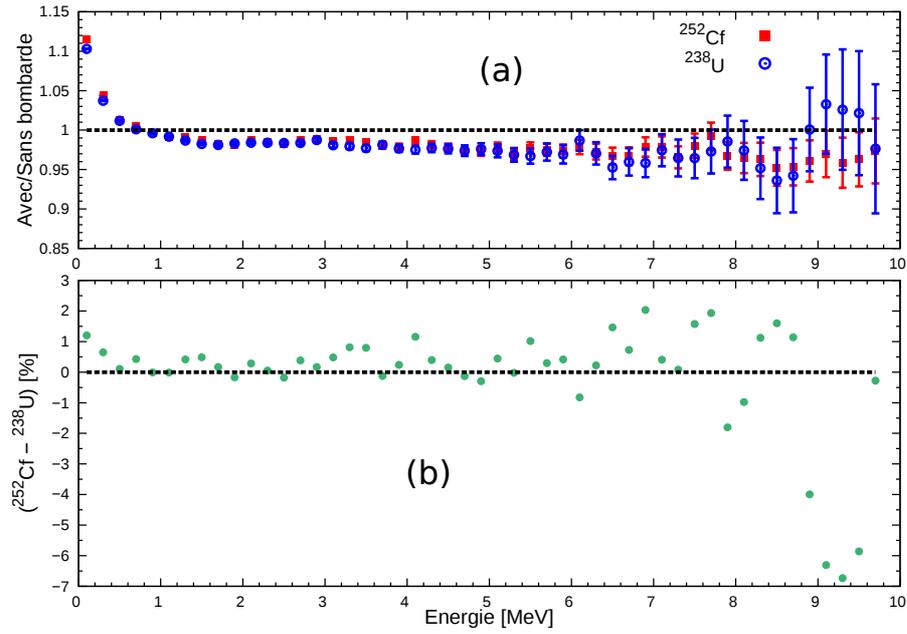


FIGURE C.14 – Le panneau (a) présente les rapports des spectres simulés avec et sans bombarde pour une source de  $^{252}\text{Cf}$  et pour de l' $^{238}\text{U}$ . Le panneau (b) présente la différence entre ces deux rapports en terme de pourcentage.

Pour des scintillateurs liquides de type NE213, une correction d'efficacité à partir du  $^{252}\text{Cf}$  est une très bonne première approximation, pour peu que la mesure en  $^{252}\text{Cf}$  ait été réalisée dans les mêmes conditions géométriques que la mesure avec actinide. De légères différences peuvent tout de même être observées. Elles sont de l'ordre de 1 à 2% pour des énergies neutrons inférieures à 1 MeV et de l'ordre de 5% pour des énergies de l'ordre de la dizaine de MeV (cf. figure C.14).

### 3 Correction des distorsions par simulations avec MCNPX-PoliMi

Les distorsions sur le spectre en énergie des neutrons prompts mesuré ont deux composantes. La première correspond au bruit de fond issus des neutrons et  $\gamma$  diffusant dans l'environnement, et la seconde aux déformations du spectre dues aux dispositifs de blindage utilisés lors de mesures en cinématique directe.

Ces distorsions dépendent non seulement de la géométrie du dispositif expérimental et de la salle mais aussi de la distribution en énergie des neutrons émis lors de la fission de l'actinide étudié.

Afin de les corriger au mieux, nous avons choisi d'utiliser le code de simulation Monte Carlo MCNPX-PoliMi développé par S. Pozzi et *al.* [54]. Celui-ci permet de prendre en compte la courbe de réponse en lumière des détecteurs neutrons, leurs résolutions en temps ainsi que leurs résolutions en énergie. L'ensemble de ces paramètres a été déterminé en partie B, chapitre III.

MCNPX-PoliMi permet de prendre en compte un seuil de détection, tel celui utilisé lors du traitement des données expérimentales, mais également l'efficacité intrinsèque du détecteur. Ces deux points sont extrêmement importants pour pouvoir corriger correctement des distorsions, et ce particulièrement dans le domaine des basses énergies des neutrons prompts qui nous intéresse plus spécifiquement.

Cette section se divise en deux parties. Nous présentons tout d'abord les simulations utilisées pour corriger du bruit de fond corrélé, observé lors des mesures réalisées auprès de la source LICORNE, avant de présenter les simulations utilisées pour corriger de la distorsion issue de l'utilisation de bombardés lors des mesures auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF.

#### 3.1 Bruit de fond corrélé dans le cas des mesures avec la source LICORNE

Ainsi que nous l'avons vu au paragraphe 2.2.2 de ce chapitre, lors des mesures auprès de l'installation LICORNE, le bruit de fond avait deux composantes. Une composante non corrélée en temps, due aux diffusions des neutrons et  $\gamma$  du faisceau dans l'environnement, et une composante corrélée en temps, due aux neutrons émis lors de la fission diffusant dans l'environnement avant de revenir interagir dans la cellule scintillante.

Afin d'estimer cette dernière composante, nous avons modélisé l'ensemble du dispositif sous MCNPX-PoliMi. La première étape a été de valider la fonction de transfert simulée (i.e. l'effet de la géométrie sur le spectre), ainsi que la méthode reposant sur l'utilisation de ces simulations pour corriger les spectres expérimentaux.

Pour cela, nous avons utilisé la chambre  $^{252}\text{Cf}$ , décrite en partie B chapitre II. Cet actinide fissionnant spontanément, mesurer le spectre en énergie des neutrons prompts émis permet de ne mesurer, en plus des neutrons de fission directs, que les neutrons de fission diffusés (i.e. la composante de bruit de fond corrélée en temps).

Le spectre temps de vol mesuré est présenté en partie (a) de la figure C.15 et comparé, en partie (b) à celui obtenu lors d'une mesure avec le même dispositif placé au-dessus de la fosse de Bruyères-le-Châtel (mesure sans la composante due à la diffusion des neutrons de fission sur les murs proches). Le bruit de fond corrélé est nettement visible sur la partie (a) pour des temps supérieurs à 150 ns.

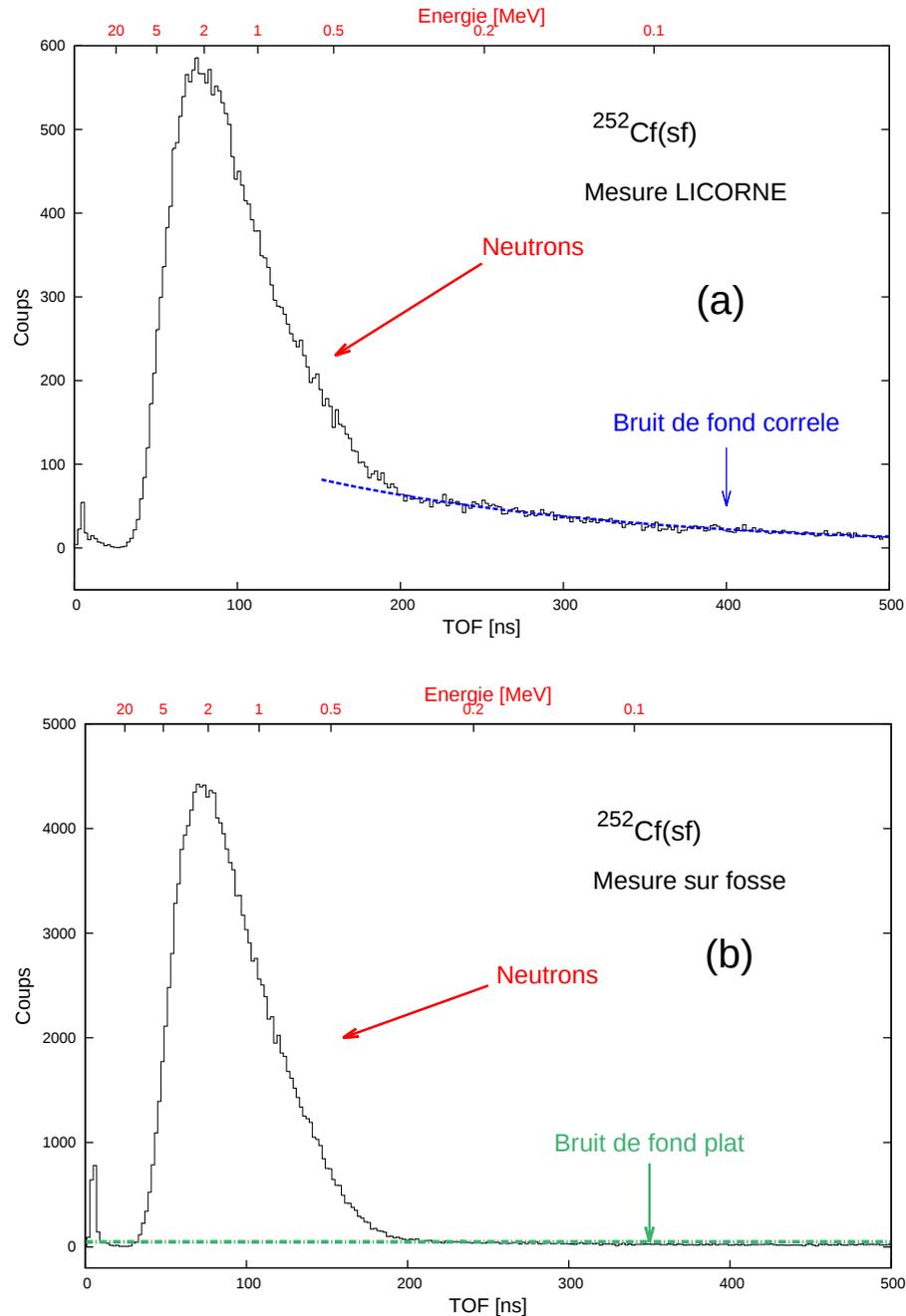


FIGURE C.15 – Spectres temps de vol du  $^{252}\text{Cf}$  mesuré dans la salle où se situe LICORNE (*en haut*) et en plaçant le dispositif au-dessus de la fosse (*en bas*).

Une première simulation du spectre temps de vol est réalisée en prenant en compte la géométrie du dispositif expérimental (détecteurs neutrons, chambre à fission, murs, sol) puis une seconde en remplaçant tous les éléments de ce dispositif par de l'air. Les résultats de ces simulations sont présentés en figure C.16 et comparé au spectre expérimental.

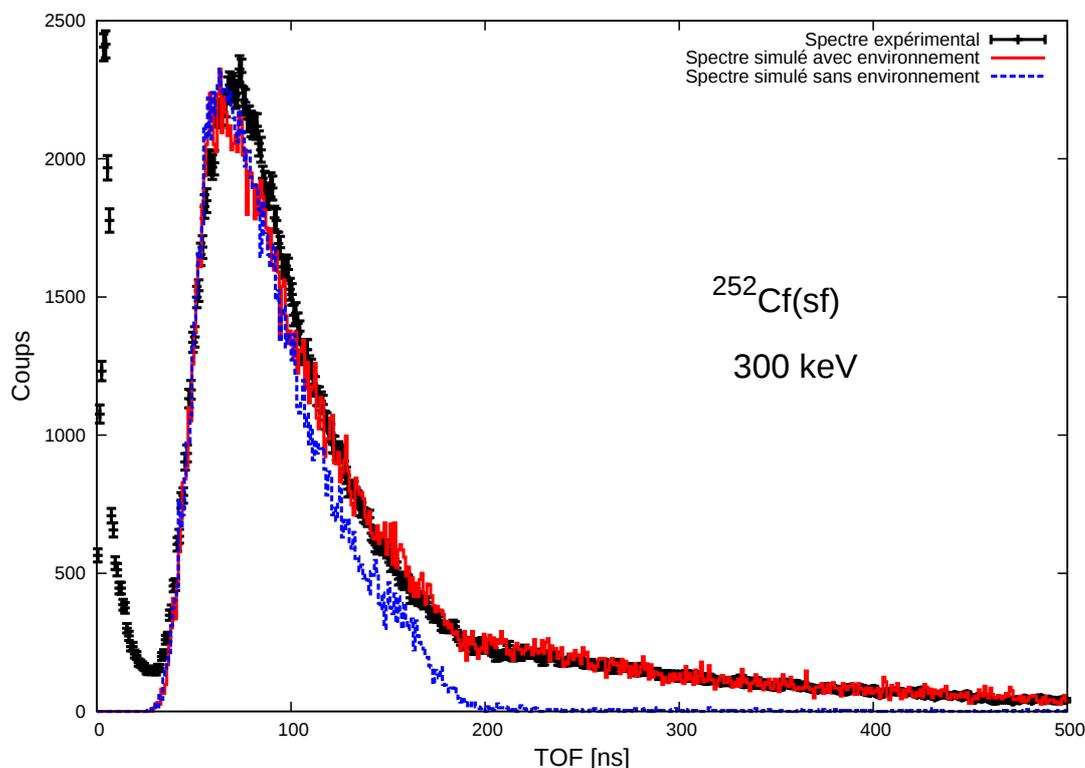


FIGURE C.16 – Spectre temps de vol du  $^{252}\text{Cf}$  mesuré dans la salle LICORNE comparé aux simulations avec et sans environnement pour un seuil en énergie neutron de 300 keV.

L'accord obtenu entre le spectre temps de vol simulé avec environnement (en rouge) et le spectre temps de vol expérimental (en noir) est relativement bon. En particulier, le bruit de fond corrélé visible au delà de 150 ns est très bien reproduit. De légères différences sont observées autour de 100 ns. Néanmoins, cela n'est pas critique pour notre étude. En effet, la composante de bruit de fond corrélé est obtenue en retranchant au spectre simulé avec environnement (en rouge) celui simulé sans environnement (en bleu). Ces deux spectres étant identiques dans cette zone, la composante bruit de fond corrélé y est négligeable.

Le bruit de fond corrélé, déterminé en utilisant les spectres simulés, est retranché au spectre expérimental, puis celui-ci est converti en énergie. Le résultat de cette conversion est présenté en figure C.17.

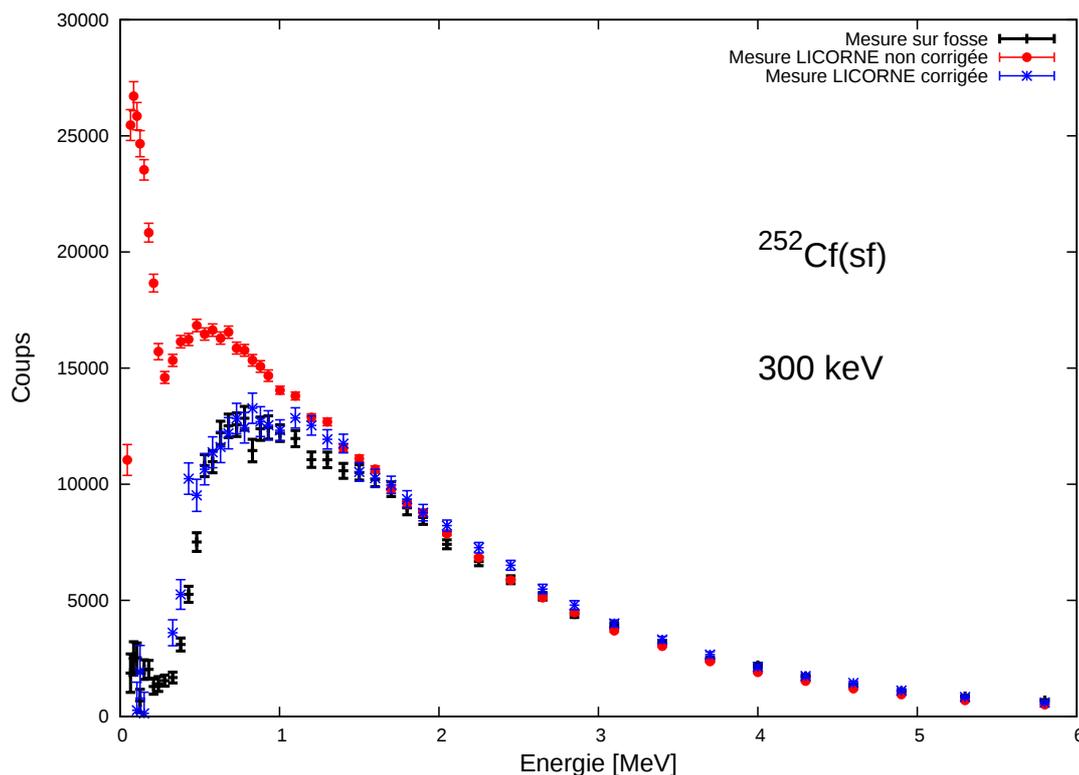


FIGURE C.17 – Spectres en énergie des neutrons prompts émis par le  $^{252}\text{Cf}$  : comparaison des mesures sur fosse et dans la salle LICORNE avant et après correction du bruit de fond corrélé pour un seuil en énergie neutron de 300 keV

Le spectre noir correspond au spectre obtenu sur fosse (i.e. dans un environnement à bas bruit de fond). Pour la mesure réalisée dans la salle LICORNE, le spectre rouge correspond au spectre obtenu sans correction de la composante de bruit de fond corrélé et le spectre bleu à celui obtenu après correction de ce bruit de fond. Les spectres bleu et noir sont en excellent accord, ce qui nous permet de valider à la fois la fonction de transfert simulée, mais également la méthode consistant à déterminer la composante de bruit de fond corrélé à soustraire au moyen de simulations avec MCNPX-PoliMi.

Afin de corriger avec le plus d'exactitude possible les données sur l' $^{238}\text{U}$ , de nouvelles simulations ont été réalisées en modélisant la source de neutrons de fission par un spectre de Watt. Les paramètres utilisés ont initialement été déterminés à partir du spectre tel qu'il est disponible dans la base de données évaluées JEFF puis, au besoin, ajustés pour reproduire au mieux le spectre temps de vol expérimental. Le résultat des simulations, présenté en figure C.18, est en bon accord avec le spectre expérimental.

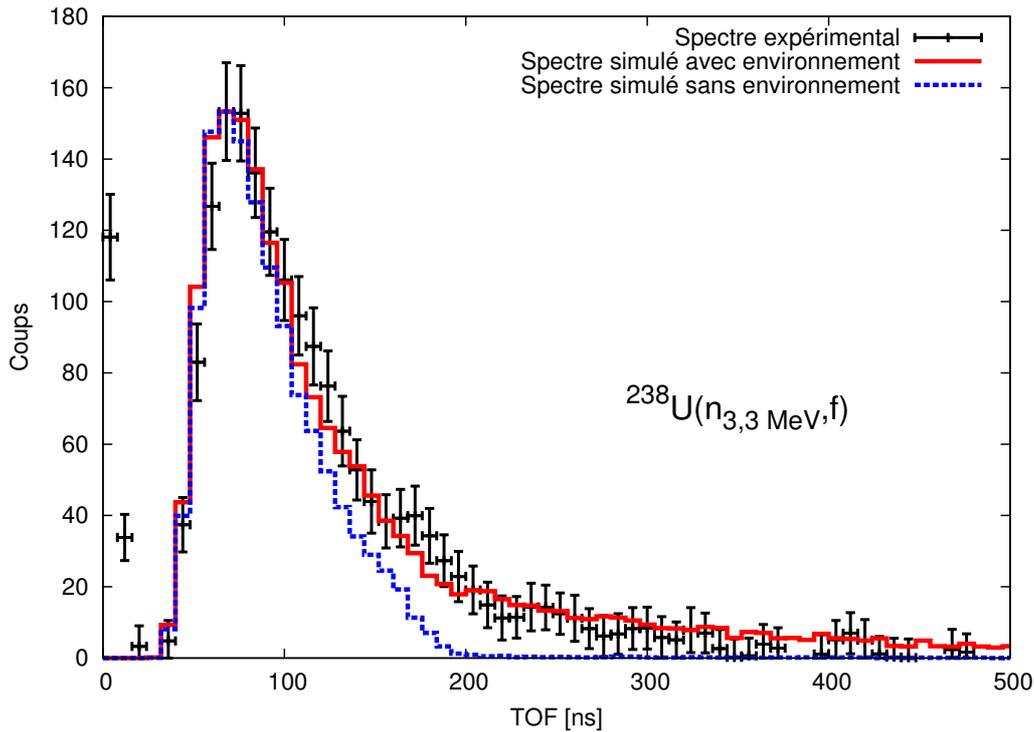


FIGURE C.18 – Spectre temps de vol de l' $^{238}\text{U}$  mesuré dans la salle LICORNE comparé aux simulations avec et sans environnement pour un seuil en énergie neutron de 300 keV

Les composantes bruit de fond sont ainsi estimées pour chacun des détecteurs puis soustraites des spectres expérimentaux. Ces derniers sont ensuite convertis en énergie et corrigés de l'efficacité de détection. Les résultats sont présentés dans le chapitre II.

### 3.2 Distorsions liées aux bombardements dans le cas des mesures en cinématique directe

La seconde forme que peuvent prendre les distorsions observées est celle de déformations du spectre expérimental en temps de vol suite à l'utilisation de dispositifs de blindage.

Afin de déterminer ces distorsions, chacun des dispositifs utilisés lors des mesures sur le 4 MV est modélisé avec MCNPX-PoliMi.

Une première simulation est réalisée afin de reproduire les spectres expérimentaux, puis une seconde afin de déterminer le spectre qui aurait été mesuré sans les dispositifs de blindage et si l'actinide n'avait pas été contenu dans une enceinte. Un exemple est présenté en figure C.19.

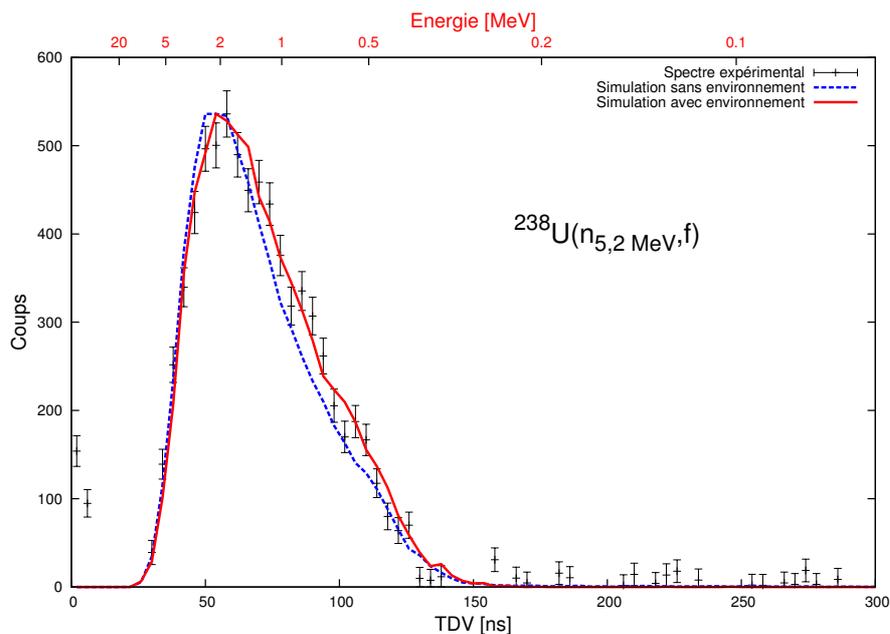


FIGURE C.19 – Comparaison d’un spectre temps de vol mesuré lors d’une campagne de mesure auprès du 4 MV aux spectres temps de vol simulés avec et sans environnement. Les distorsions induites par l’environnement sont nettement visibles pour des énergies inférieures à 2 MeV (temps supérieurs à 50 ns).

L’effet de l’environnement est particulièrement visible pour des neutrons ayant une énergie inférieure à 1 MeV. Par ailleurs, on observe également un léger décalage (de l’ordre de 5 ns) sur la position du sommet de la distribution.

Les spectres temps de vol ainsi simulés sont ensuite convertis en énergie (cf. partie (a) de la figure C.20).

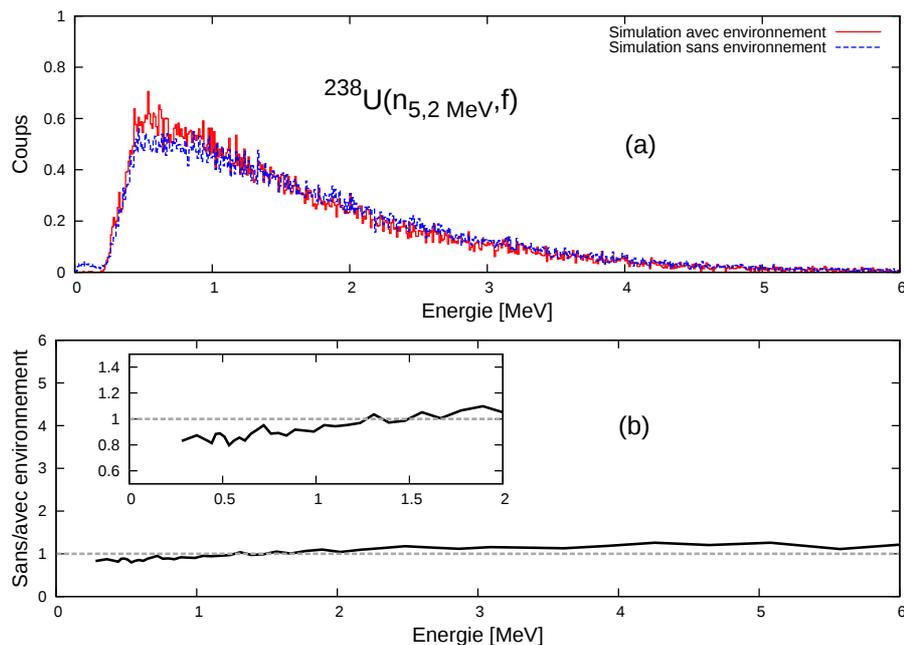


FIGURE C.20 – Spectres en énergie issus de la conversion en énergie des spectres temps de vol simulés (*en haut*) et rapport de ces deux spectres (*en bas*). Le rapport des deux spectres simulés donne la correction à appliquer au spectre en énergie des neutrons prompts mesurés. Ces corrections sont particulièrement prononcées pour des énergies neutrons inférieures à 1 MeV.

Le rapport des spectres résultants, présenté en partie (b) de la figure C.20, donne la correction à appliquer, en plus de la correction d'efficacité, sur le spectre expérimental. Ces corrections sont particulièrement importantes (entre 10 et 20%) pour des énergies neutrons inférieures à 1 MeV. Les résultats sont présentés dans le chapitre II.

## En résumé...

- Le dispositif expérimental utilisé dépend du flux de neutrons :
  - Lorsque le flux n'est pas directionnel, il faut blinder les détecteurs neutrons. On peut donc en utiliser cinq au maximum lors de mesures auprès du 4 MV du CEA, DAM, DIF.
  - Lorsque le flux est directionnel, il n'est pas nécessaire de blinder les détecteurs neutrons. Il est alors possible d'augmenter leur nombre (13 scintillateurs organiques + 4 verres au lithium lors des mesures auprès de la source LICORNE).
- Au cours de la thèse plusieurs mesures de spectres ont été effectuées :
  - une mesure sur l' $^{235}\text{U}$  pour la fission induite par des neutrons de 500 keV.
  - sept mesures sur l' $^{238}\text{U}$  pour des énergies neutrons incidentes de 1,6, 2, 2,4, 2,6, 3,3, 5,2 et 15,1 MeV. Ces mesures permettent d'étudier l'évolution du spectre en fonction de l'énergie du neutron incident sur toute la gamme correspondant à la première chance de fission.
  - Les résultats sont présentés dans le chapitre suivant.
- Le spectre temps de vol neutron obtenu après discrimination  $\alpha$ -fission et discrimination neutron- $\gamma$  doit être :
  - étalonné en temps. Ce travail est réalisé à l'aide de la composante  $\gamma$ -prompts du spectre.
  - corrigé du bruit de fond. Lorsque celui-ci est corrélé à la fission, cette correction est réalisée par simulation.
  - corrigé de l'efficacité de détection.
  - corrigé des distorsions liées à la géométrie du dispositif expérimental :
    - \* soit en déterminant une efficacité effective à partir de la mesure du spectre du  $^{252}\text{Cf}$ . Cette technique impose cependant d'être dans les mêmes conditions géométriques que pour la mesure sur actinide. Elle est également source de quelques biais en raison des différences entre le spectre des neutrons du  $^{252}\text{Cf}$  et celui de l'actinide.
    - \* soit de procéder par simulation, choix que nous avons fait.



# Chapitre II

## Résultats et interprétations

Les expériences présentées dans le chapitre précédent ont été analysées et les distorsions sur les spectres mesurés ont été corrigées à l'aide de simulations avec MCNPX-PoliMi. Dans ce dernier chapitre, nous présentons les résultats obtenus puis les interprétons et les comparons aux résultats fournis par les modèles présentés au chapitre II de la partie A.

Pour des questions de représentation, l'intégrale du spectre a été normalisée à 1. Le découpage en énergie a été choisi de manière à conserver des barres d'erreurs d'environ 5% pour des énergies neutrons inférieures à 5 MeV.

La barre d'erreur en ordonnée correspond à la propagation quadratique de l'incertitude statistique à chaque étape de l'analyse. La barre d'erreur en abscisse représente la largeur des canaux et ne reflète pas la résolution en énergie de la mesure  $\sigma_E$ . En effet, cette dernière dépend de l'incertitude issue de l'utilisation de la technique du temps de vol (cf. équation B.2, page 46), pondérée par le nombre de neutrons contenu dans le canal :

$$\sigma_E = \frac{E \sqrt{2 \left[ \left( \frac{\sigma_L}{L} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{\Delta t}}{\Delta t} \right)^2 \right]}}{\sqrt{N}} \quad (\text{C.1})$$

avec :

- $E$  : l'énergie moyenne du canal.
- $L$  : la base de vol.
- $\sigma_L$  : l'incertitude sur la base de vol.
- $\Delta t$  : le temps de vol d'un neutron d'énergie  $E$ .
- $\sigma_{\Delta t}$  : la résolution en temps du système.
- $N$  : le nombre de neutrons dans le canal.

$N$  étant grand, la résolution de la mesure reste très bonne, même à haute énergie. Par exemple, pour une énergie neutron de 6 MeV, une base de vol de 1 m avec une résolution en temps de 6 ns à mi-hauteur et  $N=2096$ ,  $\frac{\sigma_E}{E}$  est de l'ordre de 3%.

## 1 PFNS de l' $^{238}\text{U}$

Cette partie est consacrée à la présentation des résultats des mesures sur l' $^{238}\text{U}$ .

### 1.1 Résultats des campagnes de mesures

Les mesures ont été réalisées auprès de deux installations différentes. Les corrections apportées au spectre mesuré ne sont pas de même nature selon l'installation utilisée. Par conséquent, nous avons choisi de présenter les résultats en fonction de l'installation où la mesure a été réalisée.

#### 1.1.1 Mesures auprès de l'accélérateur 4 MV du CEA, DAM, DIF

Lors des mesures auprès du 4 MV, les détecteurs sont placés dans des bombardes. L'utilisation d'un écran de plomb et de portes d'intégrations optimisées permet, malgré les distorsions générées par les bombardes et un important bruit de fond provenant du faisceau, d'abaisser le seuil de détection des neutrons à environ 600 keV.

### PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 1,6 MeV

La figure C.21 présente le résultat de la mesure de PFNS de  $^{238}\text{U}$  pour une énergie du neutron incident de 1,6 MeV.

Le spectre obtenu est comparé aux évaluations B-VII et JEFF-3.1.2 ainsi qu'aux prédictions des codes GEF et FIFRELIN.

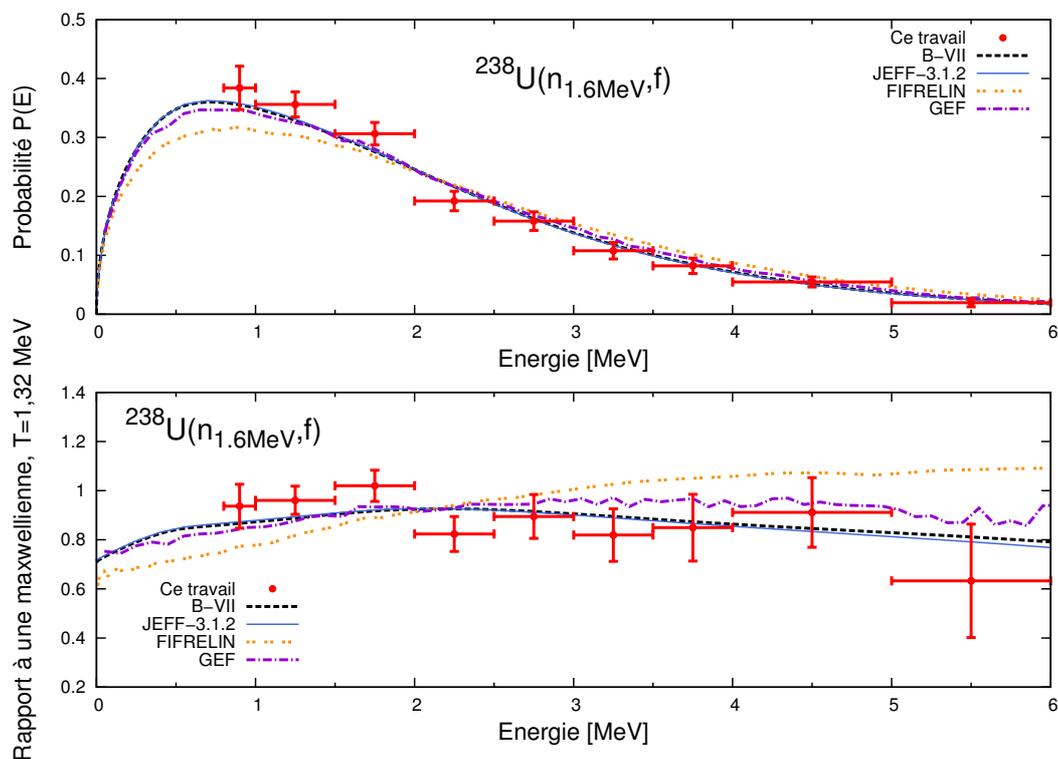


FIGURE C.21 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 1,6 MeV de  $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Nos données et les évaluations B-VII et JEFF présentent la même tendance. Néanmoins, un écart de près de 20% est observé entre ces évaluations et nos données pour une énergie de 5,5 MeV. Cet écart est d'environ 30% par rapport au code GEF. Cette mesure a été réalisée dans la configuration la plus défavorable en terme de distorsions sur le spectre. Malgré des corrections au moyen de simulations, les distorsions étaient trop importantes pour être complètement corrigées.

### PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 2 MeV

Le spectre obtenu pour des neutrons incidents de 2 MeV est présenté en figure C.22 et comparé aux mêmes évaluations et codes que pour la mesure à 1,6 MeV, mais également à une mesure réalisée en cible passive (cf. paragraphe 2.1, page 48) par Baba et *al.* [28].

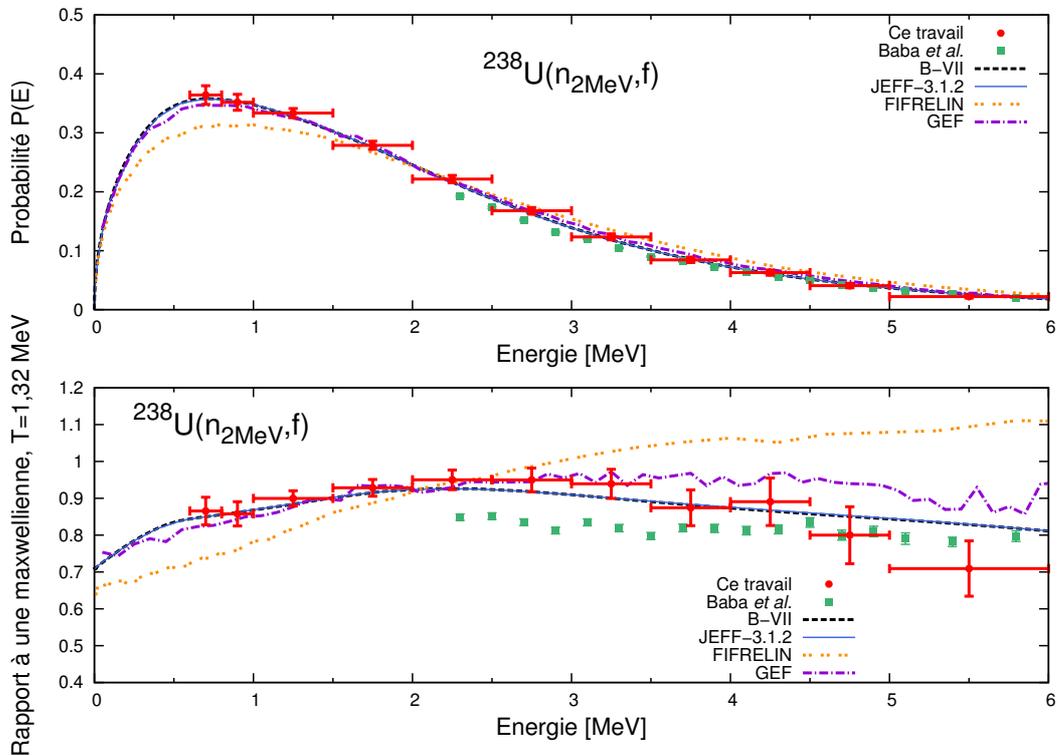


FIGURE C.22 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 2 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Nos données sont en désaccord avec celles de Baba et *al.*. En revanche, elles présentent globalement la même forme que celle des évaluations et du code GEF avec des écarts de l'ordre de 2-3% pour des énergies supérieures à 2 MeV et d'environ 10% au-delà de 5 MeV.

### PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 2,6 MeV

La figure C.23 présente le résultat de la mesure de PFNS de  $^{238}\text{U}$  pour une énergie du neutron incident de 2,6 MeV.

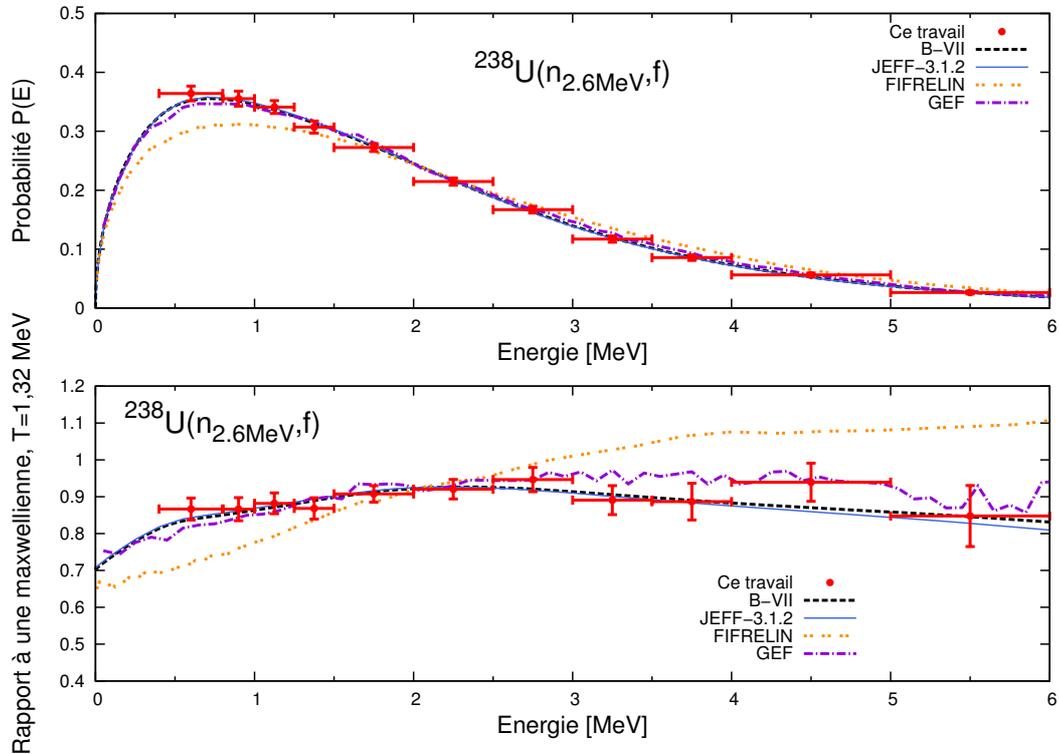


FIGURE C.23 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 2,6 MeV de  $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Les évaluations sont en excellent accord avec nos données, ce qui n'est pas le cas des résultats du code FIFRELIN.

### PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 5,1 MeV

Le résultat de la mesure pour des neutrons incidents de 5,1 MeV est présenté en figure C.24.

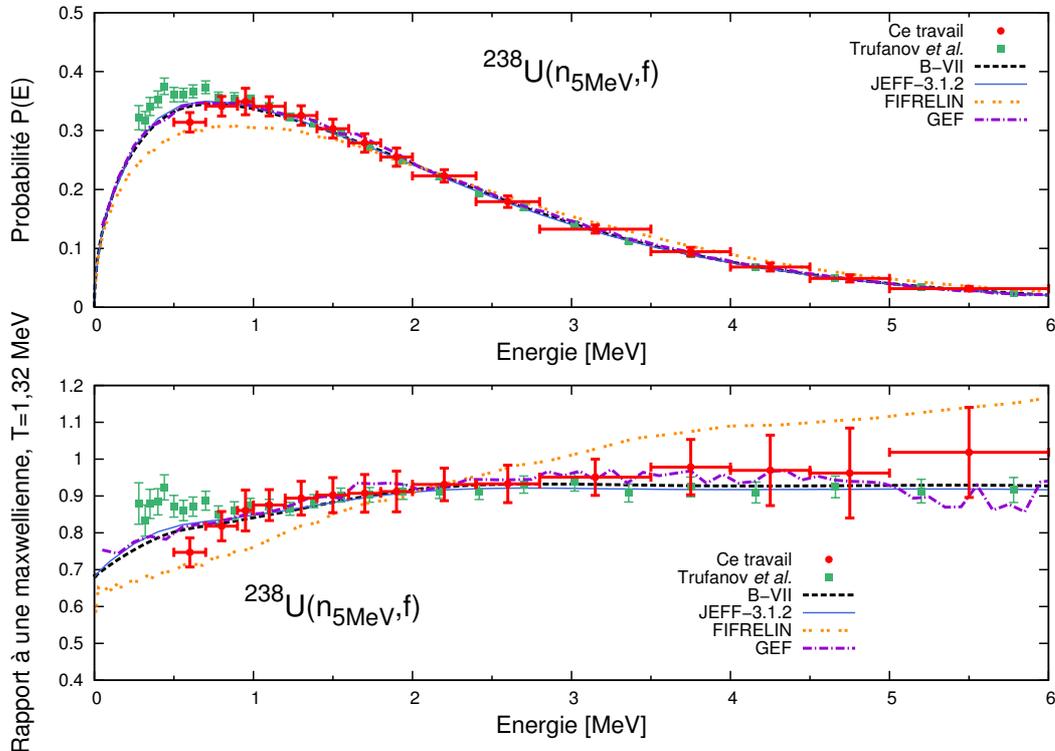


FIGURE C.24 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 5,1 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Sur une gamme allant de 800 keV à 5 MeV, les données recueillies lors de la thèse sont en très bon accord avec la mesure réalisée précédemment par Trufanov *et al.* [72] et présentent la même tendance que les évaluations B-VII et JEFF.

Entre 600 et 800 keV notre mesure est légèrement inférieure aux prédictions des évaluations (environ 5%). En revanche, elle présente un désaccord de près de 20% avec le mesure de Trufanov *et al.*. Entre 5 et 6 MeV, notre mesure est très légèrement supérieure (environ 10%) aux évaluations.

Ces effets en-dessous de 800 keV et au-dessus de 5 MeV pourraient provenir des corrections appliquées sur le spectre, qui sont encore perfectibles.

## PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 15,3 MeV

Enfin, le résultat de la mesure à 15,3 MeV est présenté en figure C.25.

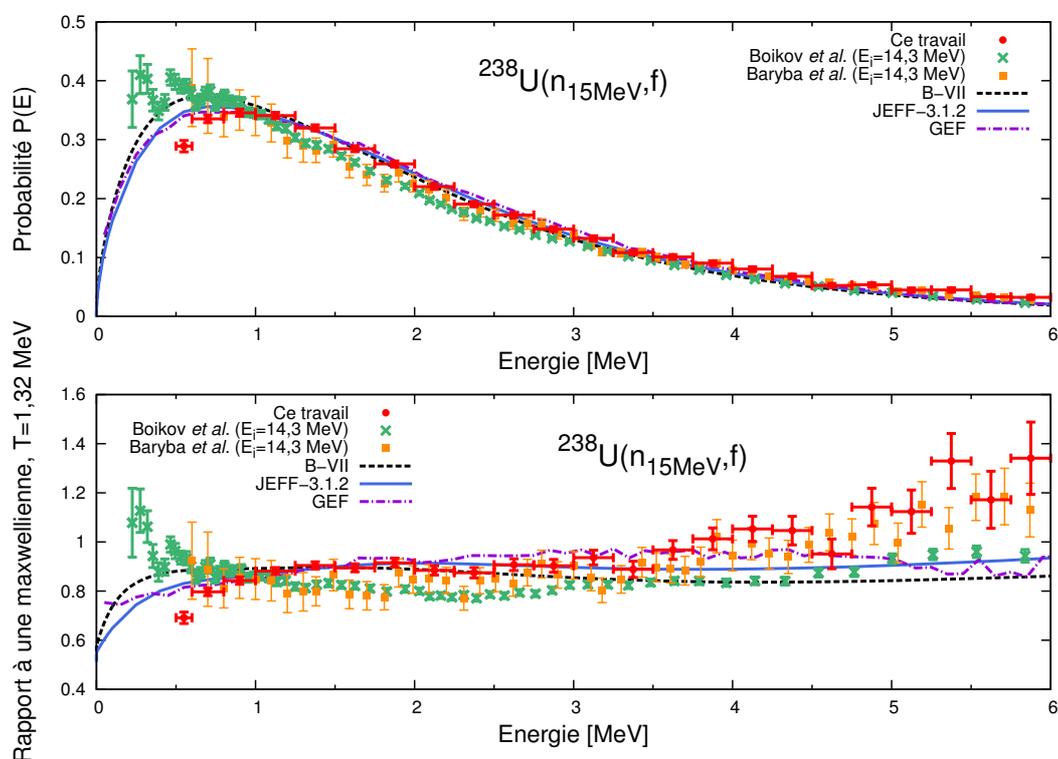


FIGURE C.25 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 15,3 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Le résultat du code FIFRELIN n'est pas représenté car il ne permet pas, au moment de ces travaux, de traiter les multiples chances de fission. Le spectre obtenu est comparé à ceux précédemment mesurés par Boikov *et al.* [73] et par Baryba *et al.* [74] ainsi qu'aux évaluations.

L'évaluation JEFF-3.1.2 est en bon accord sur toute la gamme entre 600 keV et 3,5 MeV avec nos données. Au-delà, elle dévie de près de 20% par rapport aux données. En revanche, un accord relativement bon est obtenu avec les données de Baryba *et al.* sur une gamme allant de 3 à 6 MeV.

### 1.1.2 Mesures auprès de la source LICORNE

Lors des mesures auprès de l'installation LICORNE, les spectres enregistrés présentent un bruit de fond corrélé. Ce dernier est corrigé à l'aide de simulations selon la méthode présentée au chapitre I, page 172.

#### PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 2,4 MeV

Le résultat obtenu pour une fission induite par des neutrons de 2,4 MeV est représenté en figure C.26.

Les points rouges correspondent au spectre mesuré avec les cellules NE213 et les points bleus au spectre mesuré avec les verres au lithium. En raison du manque de statistique important, seuls quatre points sont présentés pour ces derniers.

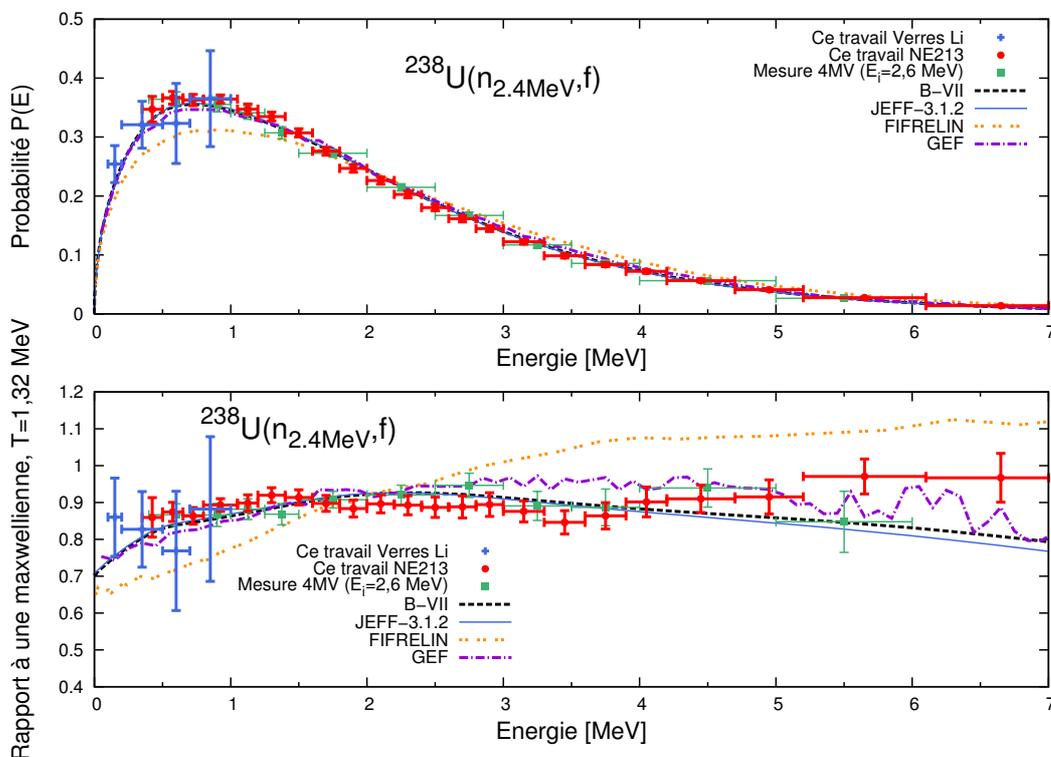


FIGURE C.26 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 2,4 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Dans la limite des barres d'erreurs, nous observons un recouvrement entre la mesure réalisée avec les verres au lithium et celle réalisée avec les scintillateurs NE213.

La mesure avec les détecteurs NE213 est également comparée à la mesure réalisée sur le 4 MV pour une énergie similaire (2,6 MeV). Les résultats sont en très bon accord, ainsi qu'avec les évaluations, sur toute la gamme entre 400 keV et 5 MeV. Au-delà, le spectre mesuré auprès de l'installation LICORNE est supérieur d'environ 15%. Cet excellent

---

accord nous permet de valider les corrections effectuées par simulation tant en terme de distorsion (mesure 4 MV) qu'en terme de bruit de fond corrélé (mesure LICORNE).

### PFNS pour un faisceau de neutrons incidents de 3,3 MeV

La figure C.27 présente le spectre mesuré pour la fission induite par des neutrons de 3,3 MeV. Les conventions pour le spectre mesuré avec les verres au lithium et celui mesuré avec les cellules NE213 sont les mêmes que pour la figure précédente.

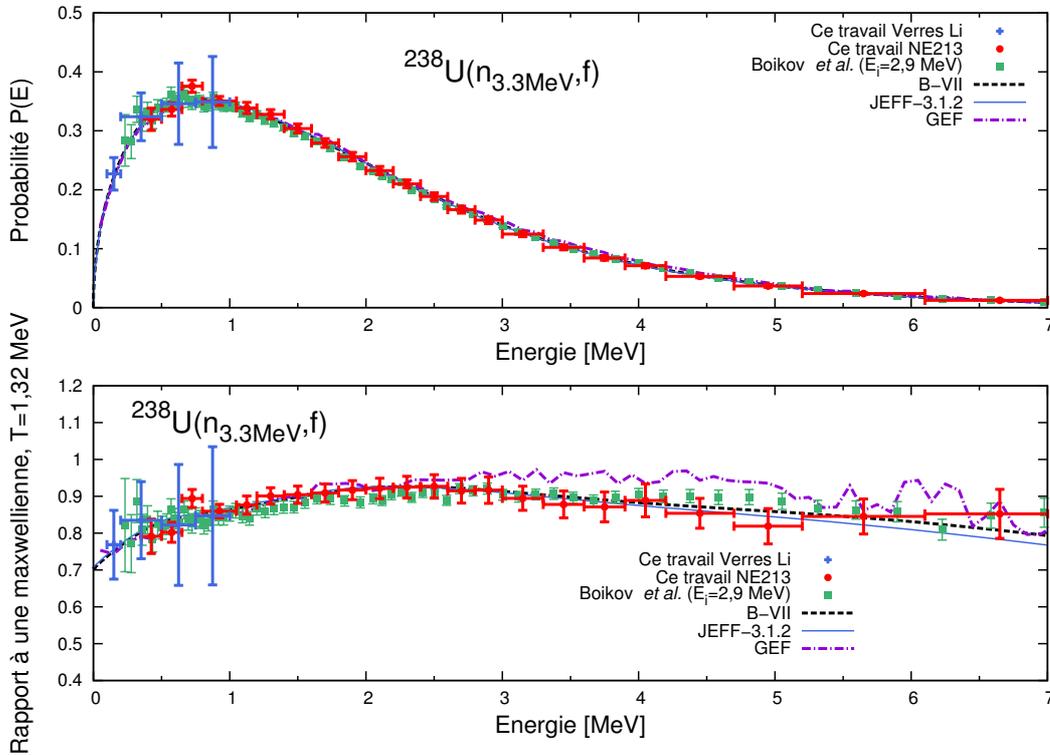


FIGURE C.27 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 3,3 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Cette fois encore, les importantes barres d'erreur empêchent d'être complètement affirmatif, mais le spectre mesuré avec les verres au lithium est en bon accord avec celui mesuré avec les NE213.

Par ailleurs, ce dernier spectre est en excellent accord avec la mesure effectuée par Boikov et *al.* [73] sur l'ensemble de la gamme.

## 1.2 Commentaires sur les résultats des codes GEF et FIFRELIN

Ainsi qu'on peut le voir sur les figures C.21, C.22, C.23, C.24, C.25, C.26 et C.27, la prédiction du code GEF est en bon accord avec celles des évaluations, avec un écart maximal de l'ordre de 10%.

Ce n'est pas le cas des prédictions du code FIFRELIN qui peuvent présenter des écarts allant jusqu'à 30% ainsi qu'une pente très différente. Plusieurs raisons expliquent un tel résultat.

Tout d'abord, les spectres en énergie des neutrons prompts sont très sensibles à la paramétrisation de la densité de niveaux des fragments, mais également à la répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments. Par ailleurs l'utilisation d'un formalisme d'Hauser-Feschbach ne permet de reproduire les évaluations qu'avec une précision allant de 15 à 20% sur la gamme 1 keV-10 MeV [75, 76, 77] (ce qui est déjà très satisfaisant pour un modèle principalement microscopique).

Aux effets mentionnés ci-dessus vient s'ajouter l'effet du rendement corrélé en masse, charge et énergie cinétique des fragments  $Y(A,Z,TKE)$ , utilisé comme paramètre d'entrée du code FIFRELIN. Si ce paramètre est relativement bien connu pour les systèmes fissionnants les plus classiques ( $^{252}\text{Cf(sf)}$ ,  $^{235}\text{U(n_{th},f)}$  et  $^{239}\text{Pu(n_{th},f)}$ ), ce n'est pas le cas pour la fission induite par neutrons de  $l^{238}\text{U}$ . Cela explique les différences plus importantes observées sur ce système [78].

## 1.3 Énergie moyenne des neutrons prompts

A partir des spectres présentés en figures C.21, C.21, C.22, C.24, C.25, C.26 et C.27, il est possible de déterminer l'énergie moyenne des neutrons prompts émis.

### Ajustement fonctionnel

Une première façon de déterminer l'énergie moyenne des neutrons est d'ajuster un spectre de Maxwell (cf. équation A.1, page 30) ou un spectre de Watt (cf. équation A.2, page 30) sur la distribution mesurée.

L'énergie moyenne des neutrons est calculée à partir des paramètres des spectres ainsi ajustés. Les énergies moyennes obtenues sont présentées en figure C.28 et dans le tableau C.3. Elles sont comparées à celles déterminées par Ethvignot et *al.* [79] et aux valeurs obtenues en ajustant un spectre de Watt sur les spectres disponibles dans la base EXFOR à ces énergies [72, 73, 74]. Elles sont également comparées à l'énergie moyenne calculée avec le code de Bruyères-le-Châtel (BRC), qui utilise une variante du modèle de Madland-Nix (cf. chapitre II, page 32) [80].

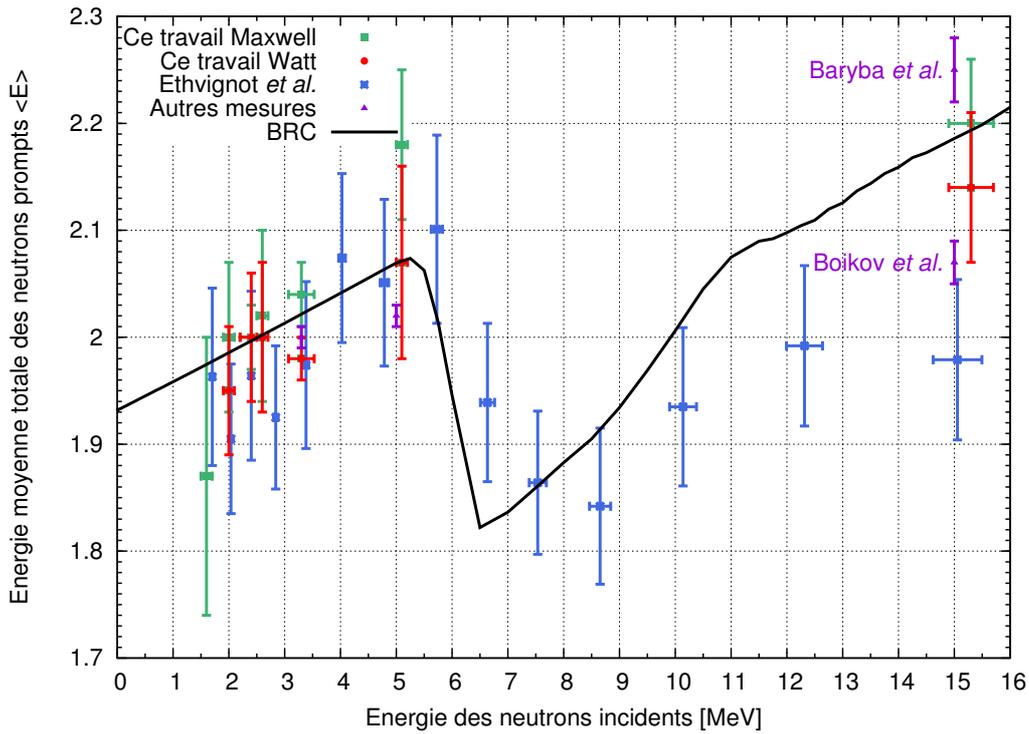


FIGURE C.28 – Énergies moyennes déterminées par ajustement fonctionnel pour la fission de  $^{238}\text{U}$ . La légende « Autres mesures » fait référence aux mesures [72], [73] et [74].

TABLEAU C.3 – Énergies moyennes totales des neutrons prompts de fission de  $^{238}\text{U}$  déterminées par ajustement fonctionnel

Énergie incidente [MeV]	$\langle E \rangle_{\text{Maxwell}}$ [MeV]	$\langle E \rangle_{\text{Watt}}$ [MeV]	$\langle E \rangle_{\text{BRC}}$ [MeV]
$1,6 \pm 0,1$	$1,87 \pm 0,13$	$1,87 \pm 0,96$	1,9746
$2,0 \pm 0,1$	$2,00 \pm 0,07$	$1,95 \pm 0,06$	1,9746
$2,40 \pm 0,20$	$2,00 \pm 0,03$	$2,00 \pm 0,06$	1,9966
$2,6 \pm 0,1$	$2,02 \pm 0,08$	$2,00 \pm 0,07$	2,0021
$3,30 \pm 0,23$	$2,07 \pm 0,03$	$1,98 \pm 0,02$	2,0216
$5,1 \pm 0,1$	$2,18 \pm 0,07$	$2,07 \pm 0,09$	2,0738
$15,3 \pm 0,4$	$2,20 \pm 0,06$	$2,14 \pm 0,07$	2,1859

Ainsi qu'illustré sur cette figure, l'énergie moyenne des neutrons prompts ainsi déterminée dépend sensiblement de la forme fonctionnelle (Maxwell ou Watt) choisie pour l'ajustement. Un spectre de Maxwell ne permet souvent pas de reproduire parfaitement la forme de la distribution mesurée. A cet égard, un spectre de Watt offre plus de liberté car il possède deux paramètres ajustables. Lors de mesures avec une faible statistique, cela peut se révéler un désavantage car, comme on peut le voir sur la mesure à 1,6 MeV, l'ajustement d'un spectre de Watt sur les données n'a pas convergé. La forme spectrale obtenue avec un spectre de Maxwell ou un spectre de Watt étant dif-

férente, l'énergie moyenne des neutrons prompts n'est pas la même. Les valeurs obtenues avec ces deux formes spectrales restent compatibles, compte tenu des barres d'erreurs (entre 3 et 8%), sauf à 3,3 MeV.

Nos résultats sont en relativement bon accord avec les énergies mesurées par Ethvignot et *al.*, mais aussi avec les résultats obtenus sur de précédentes mesures [72, 73, 74]. Le résultat du calcul BRC est également en très bon accord avec nos données, sauf à 1,6 MeV. En considérant la valeur obtenue avec un spectre de Watt, l'écart est au maximum de 5% à 15 MeV.

Cette méthode présente cependant un inconvénient majeur : l'énergie moyenne déterminée dépend non seulement de la forme fonctionnelle choisie mais également de la gamme utilisée pour l'ajustement.

### Moyenne du spectre mesuré

Afin de s'affranchir de ce problème, une solution consiste à calculer l'énergie moyenne partielle des neutrons prompts sur une gamme en énergie définie (i.e. celle de la mesure). Pour ces travaux, nous avons choisi de la calculer, selon la formule C.2, entre 600 keV et 5,5 MeV afin que l'énergie moyenne partielle  $\langle E \rangle$  ainsi obtenue soit comparable pour toutes les mesures.

$$\langle E \rangle = \frac{\sum_{i=1}^n E_i \left(\frac{dN}{dE}\right)_i dE_i}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{dN}{dE}\right)_i dE_i} \quad (\text{C.2})$$

où :

- $n$  représente le nombre de canaux.
- $E_i$  représente l'énergie moyenne au canal  $i$ .
- $\left(\frac{dN}{dE}\right)_i$  représente la probabilité que le neutron ait une énergie  $E_i$ .
- $dE_i$  représente la largeur du canal  $i$ .

L'incertitude sur la valeur ainsi calculée est déterminée en propageant les incertitudes selon :

$$\sigma_{\langle E \rangle}^2 = \sum_{i=1}^n \left[ \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial \left(\frac{dN}{dE}\right)_i} \sigma_{\left(\frac{dN}{dE}\right)_i} \right]^2 + \left[ \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial E_i} \sigma_{E_i} \right]^2 \quad (\text{C.3})$$

où

- $\sigma_{\left(\frac{dN}{dE}\right)_i}$  représente l'erreur sur  $\left(\frac{dN}{dE}\right)_i$ .

- $\sigma_{E_i}$  représente l'erreur sur la valeur de l'énergie moyenne et correspond à la largeur du canal.

Le premier terme du membre de droite de l'équation C.3 s'exprime, pour  $i=j$ , selon :

$$\frac{\partial \langle E \rangle}{\partial \left(\frac{dN}{dE}\right)_j} = \frac{E_j \sum_{k=1}^n \left(\frac{dN}{dE}\right)_k dE_k - \sum_{k=1}^n E_k \left(\frac{dN}{dE}\right)_k dE_k}{\left(\sum_{k=1}^n \left(\frac{dN}{dE}\right)_k dE_k\right)^2} \quad (\text{C.4})$$

Le second terme s'exprime selon :

$$\frac{\partial \langle E \rangle}{\partial E_j} = \frac{\left(\frac{dN}{dE}\right)_j dE_j}{\sum_{k=1}^n \left(\frac{dN}{dE}\right)_k dE_k} \ll 1 \quad (\text{C.5})$$

et est négligeable.

Les résultats, présentés en figure C.29 et dans le tableau C.4, sont comparés à ceux obtenus avec un calcul BRC utilisant les mêmes coupures. La valeur correspondant à une énergie du neutron incident de 1,6 MeV n'est pas représentée car le seuil expérimental (de 800 keV) ne permet pas d'effectuer une comparaison dans les mêmes conditions.

TABLEAU C.4 – Énergies moyennes des neutrons prompts de fission de  $^{238}\text{U}$  entre 600 keV et 5,5 MeV, déterminées par calcul de la moyenne du spectre mesuré

Énergie incidente [MeV]	$\langle E \rangle_{[0,6-5,5 \text{ MeV}]}$ [MeV]	$\langle E \rangle_{\text{BRC } [0,6-5,5 \text{ MeV}]}$ [MeV]
$2,0 \pm 0,1$	$2,116 \pm 0,017$	2,1040
$2,40 \pm 0,20$	$2,115 \pm 0,009$	2,1100
$2,6 \pm 0,1$	$2,115 \pm 0,016$	2,1130
$3,30 \pm 0,23$	$2,151 \pm 0,009$	2,1234
$5,1 \pm 0,1$	$2,165 \pm 0,022$	2,1526
$15,3 \pm 0,4$	$2,204 \pm 0,009$	2,1653

Les énergies moyennes partielles ainsi extraites présentent une erreur d'environ 2%, sauf pour les mesures à 2,4 et 3,3 auprès de LICORNE et la mesure avec 5 scintillateurs à 15,3 MeV au 4 MV, où l'erreur est inférieure à 1%.

Nos résultats sont en bon accord avec les énergies moyennes extraites de précédentes mesures [72, 73, 74], sauf à 15 MeV. Cette énergie du neutron incident étant localisée sur l'ouverture de la troisième chance de fission, il est possible que l'énergie moyenne des neutrons prompts varie rapidement dans cette zone. Cela pourrait expliquer les différences observées.



Cependant, cette augmentation étant très faible, elle n'est pas incompatible avec l'hypothèse d'une énergie moyenne quasi-constante en dessous de 15 MeV.

Les données recueillies au cours de ce travail de thèse ne permettent donc pas de trancher entre ces deux hypothèses. Pour y parvenir, il faudrait étudier l'évolution de l'énergie moyenne sur une plus grande gamme en énergie des neutrons incidents avec une bonne précision statistique (erreur inférieure à 1% sur la valeur de l'énergie moyenne).

## 2 PFNS de l' $^{235}\text{U}$

Dans cette dernière section, nous présentons le spectre mesuré pour la fission de  $^{235}\text{U}$  induite par des neutrons de 560 keV (cf. figure C.30).

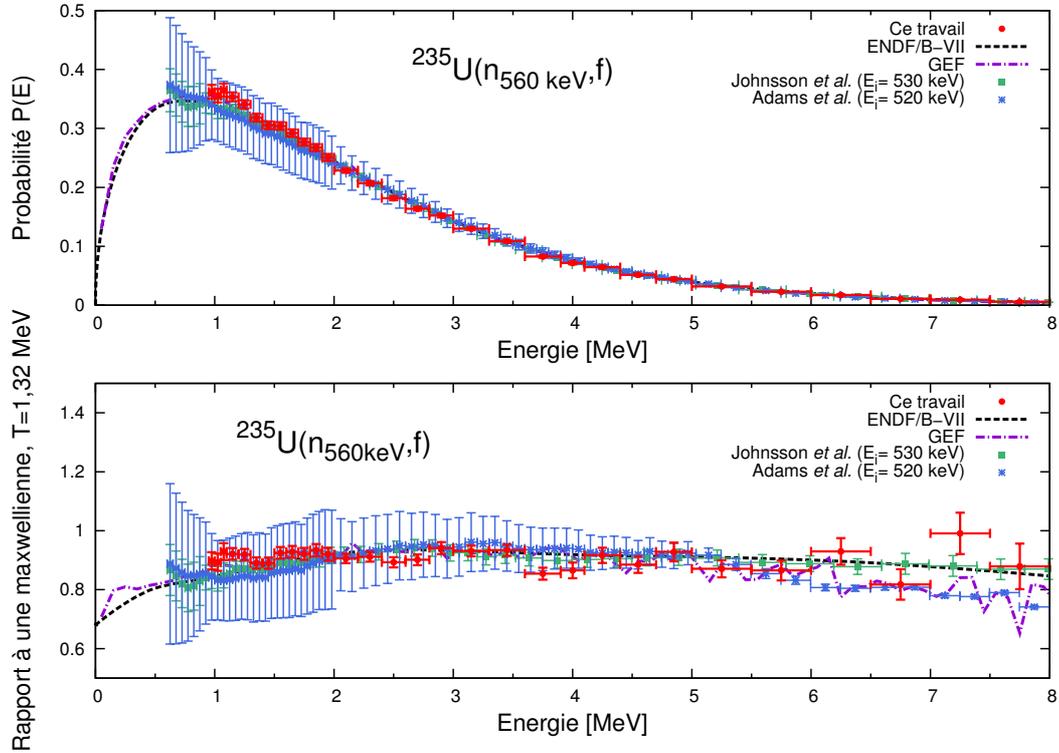


FIGURE C.30 – Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 560 keV de  $^{235}\text{U}$ . La partie supérieure de la figure correspond à une représentation en terme de probabilité et la partie inférieure à un rapport à une maxwellienne de température  $T=1,32$ .

Sur toute la gamme entre 1 et 8 MeV, le spectre mesuré est en très bon accord avec les mesures précédentes [83, 84] et est bien reproduit par l'évaluation B-VII. Les énergies moyennes obtenues avec et sans coupures sont présentées dans le tableau C.5 et comparées à celles obtenues avec le code BRC.

TABLEAU C.5 – Énergie moyenne des neutrons prompts émis lors de la fission induite par des neutrons de 560 keV de  $^{235}\text{U}$

	Ce travail	BRC
$\langle E \rangle_{\text{Watt}}$ [MeV]	$1,97 \pm 0,05$	1.9769
Énergie moyenne [0,975 - 7,750 MeV]	$2,540 \pm 0,007$	2.5356

Les valeurs sont en excellent accord tant pour l'énergie moyenne totale que pour l'énergie moyenne entre 975 keV et 7,75 MeV.

### En résumé...

- L'utilisation de simulations permet, dans une certaine mesure, de corriger efficacement des distorsions induites par la géométrie du dispositif expérimental.
- Les verres au lithium sont une alternative prometteuse pour l'étude de la composante du spectre en énergie des neutrons émis inférieure à 1 MeV.
- Pour une plus grande précision des résultats, l'énergie moyenne des neutrons émis est calculée en estimant la moyenne du spectre mesuré (prise en compte des coupures expérimentales et des erreurs statistiques).
- En  $^{238}\text{U}$  :
  - les spectres mesurés sont en relativement bon accord avec les évaluations et/ou une mesure précédente.
  - l'énergie moyenne des neutrons prompts augmente d'une centaine de keV entre 2 et 15,3 MeV.
  - la faible précision statistique de nos mesures et la faible gamme en énergie de neutrons incidents ne permettent pas de conclure quant à l'évolution de l'énergie moyenne des neutrons prompts avec l'augmentation de l'énergie des neutrons incidents.
- En  $^{235}\text{U}$ , le spectre mesuré est en bon accord avec les mesures précédentes et l'évaluation B-VII. Les énergies moyennes obtenues sont en excellent accord avec celles fournies par le code BRC.

### Les points clés de la partie C :

- Selon que le flux de neutrons produits par l'accélérateur est directionnel ou non, le dispositif expérimental n'est pas le même :
  - pour un flux non directionnel l'utilisation d'imposants dispositifs de blindage est nécessaire. Ceux-ci induisent de fortes distorsions sur le spectre mesuré, notamment pour des énergies inférieures à 1 MeV. Celles-ci peuvent, dans une certaine mesure, être corrigées à l'aide de simulations.
  - pour un flux directionnel, l'utilisation de blindages n'étant pas nécessaire, le dispositif peut comporter plus de détecteurs neutrons. Par ailleurs, la mesure étant moins bruitée et peu distordue, il est possible d'avoir un seuil en énergie plus bas que lors de mesures avec un flux non directionnel.
- L'utilisation de verres au lithium constitue une perspective intéressante pour améliorer la détection des neutrons ayant une énergie inférieure à 1 MeV.
- Les simulations avec MCNPX-PoliMi permettent de corriger de manière satisfaisante le bruit de fond corrélé, dû à la proximité des murs, observé sur les mesures réalisées auprès de l'installation LICORNE.
- Pour des énergies de neutrons incidents de 1,6, 2, 2,4, 2,6, 3,3, 5,1, et 15,3 sur  $^{238}\text{U}$  et 560 keV sur  $^{235}\text{U}$ , les spectres mesurés au cours de la thèse sont en bon accord avec les évaluations et les mesures disponibles dans la base de données EXFOR.
- Les mesures réalisées ne permettent pas de trancher entre une augmentation progressive ou non de l'énergie moyenne des neutrons prompts avant l'ouverture de la troisième chance de fission. D'autres mesures complémentaires seront nécessaires.



# Conclusion et perspectives



# Conclusion

L'objectif principal de la thèse était l'optimisation d'un dispositif expérimental dédié à la mesure du spectre en énergie des neutrons prompts de fission, et ce plus particulièrement pour des énergies de neutrons émis inférieures à 1 MeV.

## Outils expérimentaux

L'énergie des neutrons prompts de fission est déterminée à partir d'une mesure de temps de vol entre une chambre à fission et un détecteur de neutrons. Une partie de ce travail de thèse a donc été consacrée à l'optimisation des propriétés de réponse de ces détecteurs.

### Chambres à fission

Le premier axe d'amélioration considéré a été celui de la chambre à fission. Les chambres disponibles au début de ces travaux ne permettant plus de répondre à nos besoins en terme de précision sur la mesure de PFNS, nous en avons développé et construit de nouvelles. Ce nouveau modèle de chambre et l'électronique associée permettent une discrimination quasi-totale entre désintégrations  $\alpha$  et fissions (seuls 2-3% des fissions ne sont pas discriminées). La résolution en temps est d'environ 1 ns à mi-hauteur, ce qui est satisfaisant pour les mesures de PFNS. Enfin, ces nouvelles chambres induisent peu de distorsion sur le spectre en énergie des neutrons prompts de fission (environ 10%).

### Détection des neutrons

Le second axe considéré est celui de la détection des neutrons. Cette dernière est principalement réalisée à l'aide de scintillateurs organiques, également sensibles aux rayonnements  $\gamma$ . Ainsi, le seuil intrinsèque minimal de discrimination usuellement accessible est de l'ordre de 500 keV. Nous avons tout d'abord cherché à diminuer ce seuil. Pour cela, nous avons étudié l'effet d'un écran de plomb placé devant le scintillateur et déterminé les portes d'intégrations permettant d'optimiser la discrimination neutron- $\gamma$ . Dans un environnement à bas bruit de fond, l'énergie neutron minimale accessible est alors d'environ 250 keV.

Par ailleurs, nous avons réalisé une étude comparative entre un scintillateur cristallin de

type p-terphenyle et un scintillateur liquide de type BC501A. L'objectif de cette étude était de déterminer si le meilleur rendement lumineux des cristaux permet, soit d'obtenir une meilleure discrimination, soit une plus grande efficacité de détection. Tel n'est pas le cas. Nous avons donc choisi, pour les mesures dans un environnement à bas bruit de fond, de compléter le dispositif avec des verres au lithium (mesure entre 50 keV et 1 MeV).

## Mesures de PFNS

La seconde partie de ce travail de thèse a été dédiée aux mesures de PFNS, principalement sur  $^{238}\text{U}$ . Les dispositifs expérimentaux ont été choisis et optimisés en fonction de l'installation productrice de neutrons (flux directionnel ou non).

### Dispositif expérimental et corrections des distorsions

Les données ainsi recueillies présentent deux types de distorsions : les distorsions dues à la géométrie du dispositif et, pour les mesures auprès de l'installation LICORNE, la correction d'un bruit de fond corrélé dû aux neutrons de fission diffusant dans l'environnement. Ces deux effets vont essentiellement distordre le spectre pour des énergies inférieures à 1 MeV. Cela, combiné à la faible efficacité de détection des verres au lithium ou au fait que la discrimination neutron- $\gamma$  soit peu aisée à ces énergies pour les scintillateurs organiques, rend extrêmement difficile une mesure précise de cette zone du spectre. L'utilisation du code MCNPX-PoliMi permet tout de même, dans une certaine limite, de corriger de manière satisfaisante ces effets de distorsions.

### Mesures sur $^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}$

Les spectres ainsi obtenus ont été comparés à différents modèles. Dans certains cas, les corrections avec simulations ne suffisent pas à corriger complètement les distorsions causées par la géométrie du dispositif (ex : mesure sur  $^{238}\text{U}$  à 1,6 MeV réalisée dans la configuration la plus défavorable). Dans les autres cas, les spectres ainsi corrigés sont en excellent accord avec les évaluations et/ou de précédentes mesures. On observe tout de même dans certaines régions (essentiellement à très basse et à très haute énergie) des écarts pouvant varier entre 5 et 10%.

Les énergies moyennes totales extraites à partir de ces spectres sont entachées de fortes incertitudes en raison du manque de statistique sur les données. Néanmoins, elles restent en relativement bon accord avec les données disponibles et la valeur calculée par le code BRC (au plus 5% d'écart). Cet écart est réduit à 2% lors d'une comparaison avec l'énergie moyenne partielle des neutrons (entre 0,6 et 5,5 MeV). Dans ce dernier cas, l'énergie moyenne semble augmenter d'une centaine de keV entre 3 et 15,3 MeV. Cette augmentation étant très faible, elle reste compatible avec l'hypothèse

---

d'une énergie moyenne constante jusqu'à environ 12 MeV. De nouvelles mesures précises ( $< 1\%$ ) et permettant d'étudier toute la gamme en énergie neutron incidente entre 2 et 30 MeV sont nécessaires pour pouvoir trancher.



# Perspectives

Le travail d'optimisation des outils expérimentaux réalisé ouvre plusieurs axes d'études.

## Chambres à fission

Les nouvelles chambres à fission développées au cours de la thèse permettent d'obtenir d'excellentes propriétés de discrimination  $\alpha$ -fission. Elles pourraient donc être utilisées lors de mesures nécessitant un veto fission, comme par exemple la mesure de la section efficace de la réaction (n,xn). Pour cela, il serait cependant nécessaire d'estimer de façon précise l'efficacité de détection des fissions.

Ces nouvelles chambres et l'électronique associée permettent également de supporter de forts taux de comptages. Cela ouvre des perspectives d'étude sur des actinides ayant une forte activité  $\alpha$  comme le  $^{239}\text{Pu}$  mais aussi les actinides mineurs comme l' $^{243}\text{Am}$  ou encore le  $^{240}\text{Pu}$ .

Par ailleurs, des chambres « multi-corps » (i.e. contenant plusieurs actinides) permettraient de mesurer, dans les mêmes conditions expérimentales, les spectres en énergie des neutrons prompts pour plusieurs actinides, mais aussi de réaliser des mesures relatives (comme par exemple celle de la section efficace de fission du  $^{241}\text{Pu}$  relativement à celle de l' $^{235}\text{U}$ ).

Enfin, ces chambres peuvent être utilisées pour mesurer la distribution en énergie des  $\gamma$ -prompts. De premières mesures ont déjà été effectuées par M. Lebois et J. Wilson de l'IPN Orsay lors des mesures de PFNS réalisées auprès de la source LICORNE. La proposition d'expérience NSI86 acceptée au PAC ALTO devrait permettre de poursuivre ces mesures dès 2016.

## Détection des neutrons lors des mesures de PFNS

Malgré leur importante sensibilité à l'environnement (supports de détecteurs, câbles, etc.) les verres au lithium semblent une alternative prometteuse pour l'étude de la composante basse énergie du spectre en énergie des neutrons prompts. Néanmoins, pour parvenir à une mesure précise du spectre avec ces détecteurs, il est nécessaire de pouvoir les simuler avec précision [71] mais aussi d'en augmenter le nombre (i.e. l'efficacité géométrique). A cet effet, le LANL a développé le système de détection Chi-nu [85]. Celui-ci a deux versions : une version comportant 20 verres au  $^6\text{Li}$  ainsi qu'une version

comportant 54 scintillateurs liquides pour la mesure de neutrons d'énergie supérieure à 500 keV.

Du fait du grand nombre de détecteurs disponibles, la version « scintillateurs liquides » de Chi-nu devrait permettre d'obtenir de faibles incertitudes statistiques, même dans le domaine de haute énergie ( $> 6$  MeV) où la probabilité d'émission des neutrons prompts est faible.

## Mesures de PFNS

Dans un premier temps, de nouvelles mesures, plus précises, peuvent être réalisées avec la chambre  $^{238}\text{U}$ . Une première campagne de mesure est d'ors et déjà prévue pour la fin de l'année 2015. Elle se déroulera au LANL. Les neutrons prompts seront détectés en utilisant la version comportant 54 scintillateurs liquides du système de détection Chi-nu. Les neutrons incidents n'étant pas monocinétiques, les données recueillies permettront d'étudier l'évolution de la distribution en énergie des neutrons prompts (température, énergie moyenne, etc.) en fonction de l'énergie du neutron ayant induit la fission, et peut-être de trancher quant à l'évolution ou non de l'énergie moyenne des neutrons émis pour des énergies incidentes inférieures à 12 MeV.

Le second axe envisagé est la construction de nouvelles chambres à fission contenant d'autres actinides, comme l' $^{235}\text{U}$  ou le  $^{239}\text{Pu}$ . Ces nouvelles chambres, utilisées tant sur des installations produisant des neutrons (quasi-)monocinétiques (ex : LICORNE) que des installations produisant des spectres blancs (ex : NFS), permettront de mesurer les distributions en énergie des neutrons prompts de ces actinides.

# Annexe



# Estimation des taux de comptage sur différentes installations

Cette annexe présente la méthode utilisée pour réaliser une estimation préalable des taux de comptage sur les spectres en énergie des neutrons prompts. Celle-ci est ensuite appliquée au cas de l' $^{238}\text{U}$  pour différentes installations de production de neutrons (Van de Graaff 4 MV, NFS et nTOF-EAR2).

## A Méthode pour l'estimation de mesures de spectres neutrons

Un flux de neutrons est produit par l'interaction d'un faisceau d'ions, délivré par un accélérateur, avec une cible de production (cf. Partie B, chapitre V). Une chambre à fission (cf. Partie B, chapitre II) est placée dans ce flux. Lors d'une fission, le gaz est ionisé par les fragments de fission, ce qui produit un signal électrique déclenchant la mesure de temps de vol. Cette dernière est arrêtée par la détection des neutrons prompts de fission au moyen de scintillateurs organiques ou inorganiques couplés à des photomultiplicateurs (cf. Partie B, chapitre III).

Afin d'estimer la statistique des spectres en énergie des neutrons prompts de fission mesurés, il faut donc déterminer le nombre de ces neutrons ainsi que leur énergie, puis convoluer ce résultat à l'efficacité de détection des détecteurs neutrons utilisés.

### A.1 Estimation du taux de fission et du taux de neutrons prompts

Le nombre moyen de neutrons prompts émis est calculé en multipliant le taux de fission  $\tau_f(E_i)$  dans la chambre par le nombre moyen de neutrons prompts émis à chaque réaction en fonction de l'énergie ( $E_i$ ) des neutrons incidents  $\bar{\nu}(E_i)$ .

Ce dernier paramètre peut, soit être extrait des données nucléaires, soit estimé de manière empirique à partir de la formule de Fréhaut et Bois [86]. Quant au taux de fission, il dépend de la quantité d'actinide disponible, mais également

de l'intensité et de l'énergie du flux de neutrons produits par l'accélérateur. Pour une énergie de neutrons incidents donnée,  $\tau_f(E_i)$  s'exprime selon :

$$\tau_f(E_i) = \sigma_f(E_i) \frac{N_a}{A} m_{\text{US}} \dot{N}_{\text{dépôt}}(E_i) \quad (\text{i})$$

avec :

$\sigma_f(E_i)$  : section efficace de fission de l' $^{238}\text{U}$  à l'énergie  $E_i$  en  $\text{cm}^2$

$N_a = 6.02 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$  : nombre d'Avogadro

$A$  : masse atomique de l' $^{238}\text{U}$  en  $\text{mg.mol}^{-1}$

$m_{\text{US}}$  : masse surfacique d' $^{238}\text{U}$  en  $\text{mg.cm}^{-2}$

$\dot{N}_{\text{dépôt}}(E_i)$  : nombre de neutrons incidents d'énergie  $E_i$  sur le dépôt par seconde en *neutrons.s* $^{-1}$

Le nombre de neutrons incidents d'énergie  $E_i$  sur le dépôt par seconde  $\dot{N}_{\text{dépôt}}(E_i)$  dépend de l'intensité du faisceau et de la géométrie selon laquelle sont disposés les dépôts d'actinide suivant :

$$\dot{N}_{\text{dépôt}}(E_i) = \frac{I}{e^-} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{E_i, 0^\circ} N_{\text{cible}} e_{\text{cible}} \Delta\Omega_{\text{dépôt}} \quad (\text{ii})$$

où :

$I$  : courant incident en  $A$

$e^- = 1.6 \times 10^{-19} \text{ C}$  : charge élémentaire

$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{E_i, 0^\circ}$  : section efficace différentielle de production de neutrons d'énergie  $E_i$  à  $0^\circ$  en  $\text{cm.sr}^{-1}$

$N_{\text{cible}}$  : densité de noyaux dans la cible de production de neutrons en *atomes.cm* $^{-3}$

$e_{\text{cible}}$  : épaisseur de la cible de production de neutrons en  $\text{cm}$

$\Delta\Omega_{\text{dépôt}} = \frac{\pi D_{\text{dépôts}}^2}{4L_{\text{cible-dépôts}}^2}$  : angle solide sous-tendu par les dépôts d'actinide en  $\text{sr}$

$D_{\text{dépôts}}$  : diamètre des dépôts d' $^{238}\text{U}$  en  $\text{cm}$

$L_{\text{cible-dépôt}}$  : distance entre la cible de production de neutrons et les dépôts en  $\text{cm}$

## A.2 Taux d'émission des neutrons prompts et modélisation de leur distribution en énergie

Une fois les taux de fission et d'émission des neutrons prompts déterminés, il reste à modéliser la distribution en énergie de ces neutrons.

Dans le cas de la fission de l' $^{238}\text{U}$ , nous avons choisi d'utiliser un spectre maxwellien (cf. Partie A, chapitre II, page 30), normalisé à 1, avec une température  $T = 1,3 \text{ MeV}$ .

Les courbes d'efficacité intrinsèque de détection des détecteurs neutrons ayant été préalablement déterminées, le spectre mesuré pour une énergie incidente neutron donnée

peut alors être calculé suivant l'équation :

$$\frac{dN}{dE}(E_i, E) = \frac{\Omega}{4\pi} T_{\text{comptage}} \tau_f(E_i) \bar{\nu}(E_i) P(E) \varepsilon_{\text{int}}(E) \quad (\text{iii})$$

avec :

$E$  : énergie du neutron émis en  $MeV$

$\frac{dN}{dE}(E_i, E)$  : nombre de neutrons mesuré entre  $E$  et  $E+dE$  pour des neutrons incidents d'énergie  $E_i$  en  $neutrons.MeV^{-1}$

$\tau_f(E_i)$  : taux de fission à l'énergie  $E_i$  calculé précédemment en  $fissions.s^{-1}$

$P(E)$  : probabilité d'émission d'un neutron à l'énergie  $E$  (donnée par la maxwellienne)

$\bar{\nu}(E_i)$  : nombre moyen de neutrons émis par fission induite par des neutrons d'énergie  $E_i$ , tel qu'évalué par la méthode de Fréhaut et Bois [86]

$\varepsilon_{\text{int}}(E)$  : valeur de l'efficacité intrinsèque du détecteur à l'énergie  $E$

$\frac{\Omega}{4\pi}$  : fraction d'angle solide de détection du neutron (efficacité géométrique)

$T_{\text{comptage}}$  : durée de la mesure en  $s$

## B Estimation de taux de comptage auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF

Dans cette partie, nous présentons une estimation de mesure de spectre pour la fission de  $^{238}\text{U}$  induite par des neutrons de 4 MeV produits par l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA à Bruyères-le-Châtel.

### B.1 Rappel sur le dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est rappelé en figure (i). La production des neutrons incidents de 4 MeV est réalisée en accélérant des deutons à environ 800 keV avant interaction sur une cible de titane deutérée (TiD). La chambre à fission, comportant 360 mg d' $^{238}\text{U}$ , est placée à environ 10 cm de la cible de production. La détection des neutrons émis lors de la fission est effectuée au moyen de 5 scintillateurs organiques liquides de type NE213 ( $\varnothing 12,5 \times 5$  cm) situés à 2,35 m de la chambre à fission. Ces derniers sont placés dans des bombardes constituées de plomb et de paraffine afin de limiter les contributions de l'environnement (neutrons et  $\gamma$  diffusés, neutrons de la cible de production).

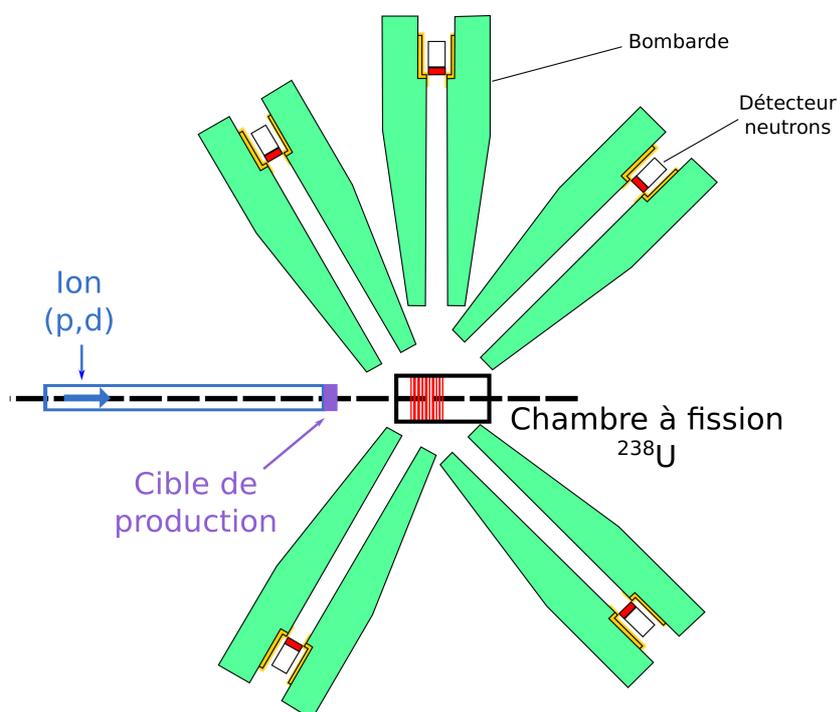


FIGURE (i) – Dispositif expérimental utilisé pour les mesures de spectres en énergie des neutrons prompts de fission auprès de l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF.

## B.2 Spectres expérimentaux attendus

Deux semaines de faisceau allouées permettent environ 112 h de comptage effectif. Actuellement, à cette énergie (800 keV<sub>d</sub> sur une cible TiD), les contrôles radiologiques imposent une limite d'intensité faisceau à  $I \simeq 2,5 \mu\text{A}$ . A ce niveau d'intensité, le taux de fission  $\tau_f$  est d'environ 36 fissions par seconde (cf. équation (i)).

La figure (ii) présente une estimation de mesure de spectre (calculée à partir de l'équation (iii)) dans des conditions normales de fonctionnement ainsi que l'erreur relative associée.

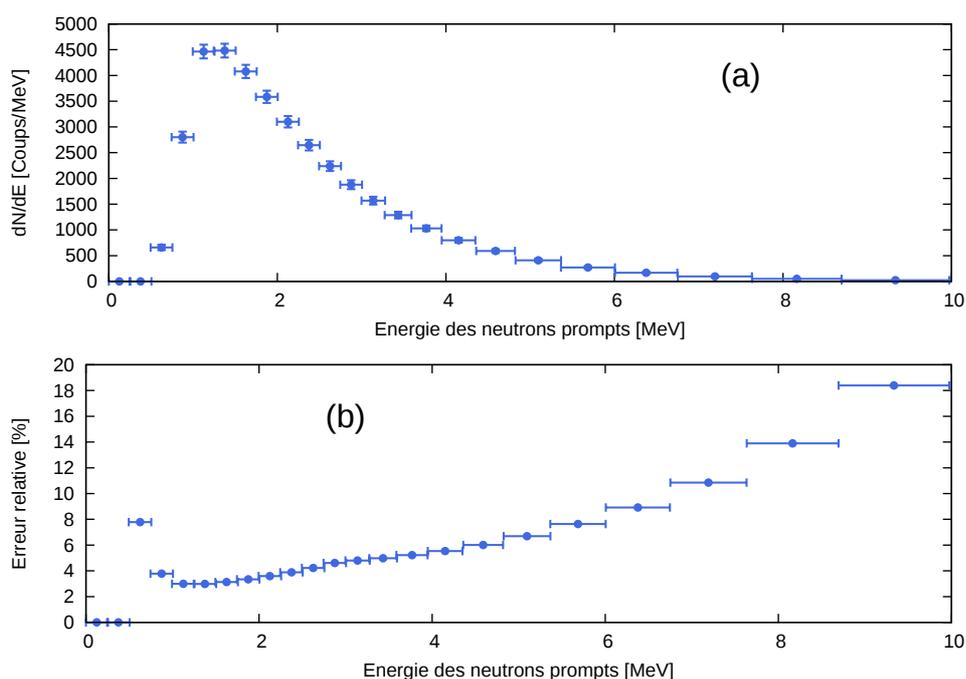


FIGURE (ii) – Estimation du spectre en énergie des neutrons prompts (a) et de l'erreur relative associée (b) pour une mesure de environ 112 h (2 semaines) sur la fission induite par des neutrons de 4 MeV de l' $^{238}\text{U}$ .

En ne prenant en compte que l'erreur statistique pour l'estimation des incertitudes, l'erreur relative est estimée variant de 3 à 19% en combinant les 5 détecteurs. Pour un seul détecteur, l'erreur relative attendue varie de 8 à 31%.

## C Estimation des taux de comptage auprès de l'installation NFS

Le LINAG de SPIRAL-2 permet d'accélérer protons et deutons de manière à produire des neutrons entre 1 et 40 MeV, soit par réaction  $(p,{}^7\text{Li})$ , soit par réaction  $(d,\text{Be})$ . L'installation NFS (Neutron For Science) permettra de délivrer, à partir de ce flux de neutrons, un flux collimaté avec une fréquence de pulsation adaptée pour des mesures par temps de vol.

### C.1 Dispositif expérimental

Pour les mesures de spectres, nous nous proposons d'utiliser la réaction  $(d,\text{Be})$  afin de produire un spectre blanc de neutrons incidents entre 1 et 40 MeV. L'énergie des neutrons induisant la fission sera alors déterminée en mesurant leur temps de vol entre la cible de béryllium et la chambre à fission. Cette dernière, située après le collimateur, servira également à démarrer la mesure temps de vol pour les neutrons prompts. Les détecteurs NE213 utilisés n'auront pas besoin d'être blindés, en raison du faible retour de salle. Ils peuvent donc être placés à environ 1,5 m de la chambre à fission. Un schéma du dispositif prévu est présenté en figure (iii).

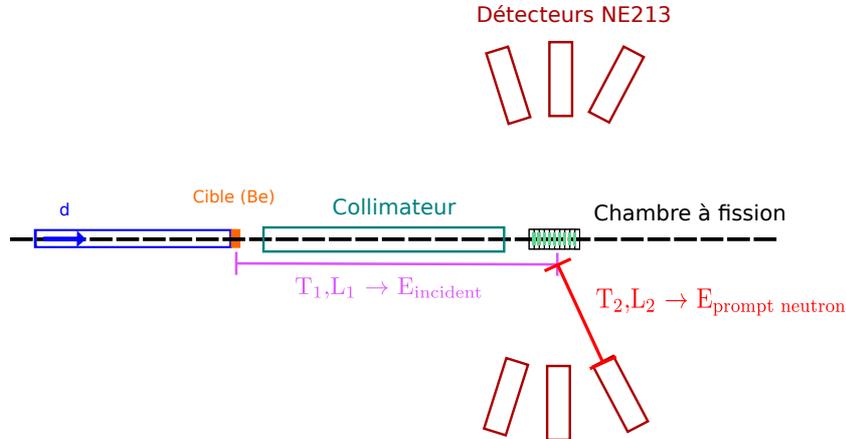


FIGURE (iii) – Dispositif expérimental prévu pour des mesures de spectres en énergie des neutrons prompts auprès de l'installation NFS.

### C.2 Flux de neutrons incidents

L'accélérateur est supposé fonctionner à une intensité nominale de  $I = 50 \mu\text{A}$  avec une période de pulsation à  $1,1 \mu\text{s}$ . En considérant des dépôts de  $8,55 \text{ cm}^2$  placés à 5 m de la cible de production, le flux obtenu pour des deutons de 40 MeV est présenté en figure (iv).

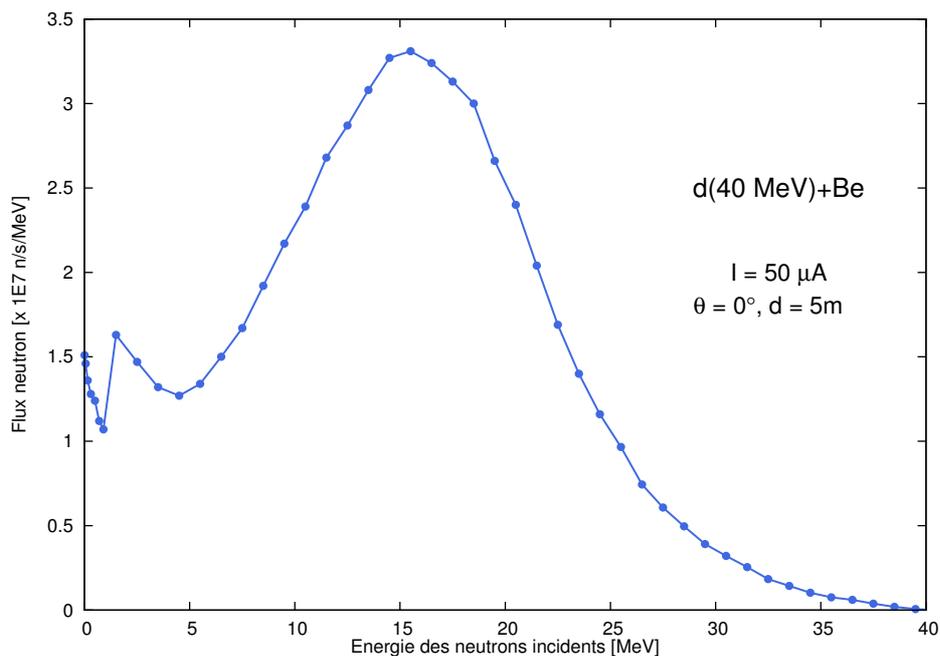


FIGURE (iv) – Flux de neutrons incidents attendus pour une mesure avec de deutons incidents de 40 MeV et une intensité de 50  $\mu\text{A}$  auprès de l'installation NFS.

### C.3 Taux d'émission des neutrons prompts et spectres expérimentaux attendus

Le nombre moyen de neutrons prompts émis est estimé à partir de l'équation (i) et de  $\bar{\nu}$ . Le résultat est présenté en figure (v).

En considérant un nombre moyen de neutrons émis de 5 000 neutrons par seconde, un temps de comptage de 5 jours et une distance chambre à fission - détecteur de neutrons de 1,5 m, le spectre attendu (calculé à partir de l'équation (iii)) et l'erreur relative associée sont présentés en figure (vi).

Une mesure auprès de l'installation NFS permettrait donc d'atteindre, en utilisant un grand nombre de détecteurs NE213, de très faibles erreurs relatives (entre 1 et 2%) en un temps très court.

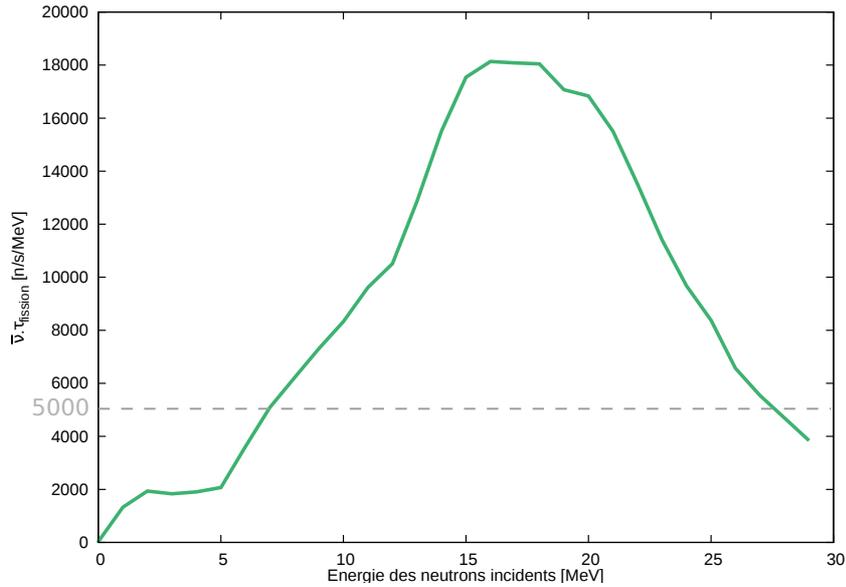


FIGURE (v) – Nombre moyen de neutrons prompts émis pour une mesure avec de deutons incidents de 40 MeV et une intensité de  $50 \mu\text{A}$  avec 300 mg d' $^{238}\text{U}$  auprès de l'installation NFS.

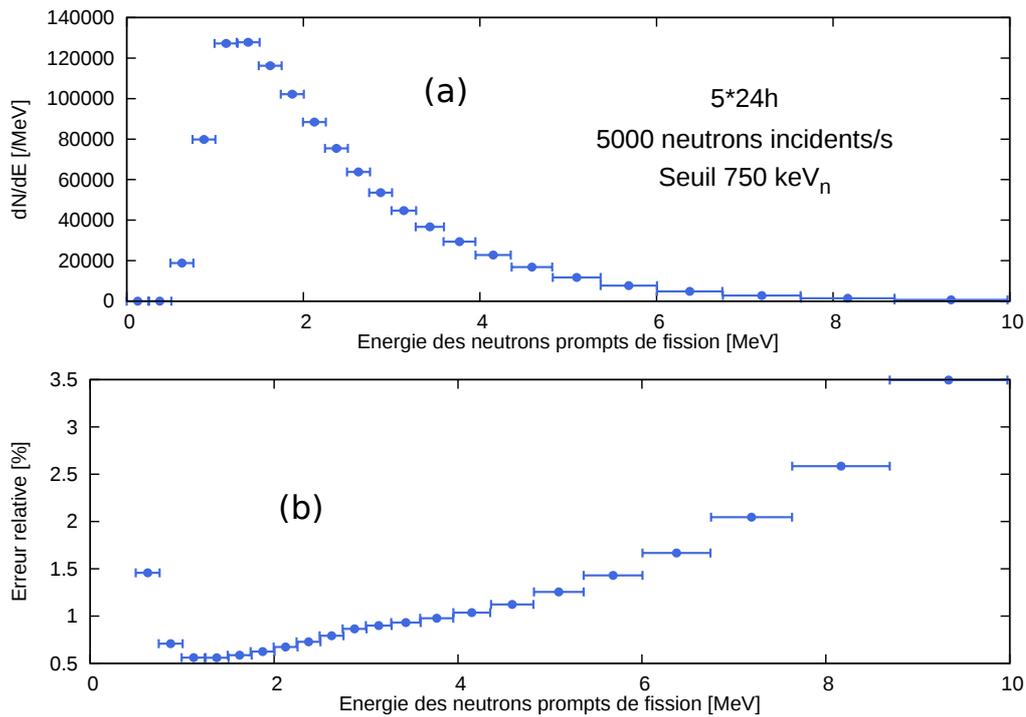


FIGURE (vi) – Spectre en énergie des neutrons prompts détectés attendu (a) et erreur relative associée (b) pour une mesure avec des deutons incidents de 40 MeV et une intensité de  $50 \mu\text{A}$  avec 300 mg d' $^{238}\text{U}$  auprès de l'installation NFS, pendant 5 jours. Le résultat est présenté pour un détecteur placé à 1,5 m de la chambre à fission.

## D Estimation de taux de comptage sur la ligne EAR2 de nTOF

### D.1 Flux disponibles sur l'installation nTOF

Les neutrons sont produits par une réaction de spallation induite par des protons sur une cible de plomb. Une bouffée comporte  $7 \times 10^{12}$  protons et dure entre 7 et 10 ns. L'espacement minimal entre deux paquets de protons est de 1,2 s.

#### D.1.1 Flux en EAR1

La répartition en énergie de la fluence a été mesurée sur la zone expérimentale EAR1 (base de vol de 185 m) avec un collimateur de 8 cm de diamètre situé 3 m en amont de l'aire expérimentale (cf. figure (vii)). Cette mesure a été réalisée avec un modérateur à eau légère [87].

Le modérateur à eau borée, qui est celui essentiellement utilisé au moment de ce travail de thèse, donne lieu à un écroulement du flux en dessous de 100 eV.

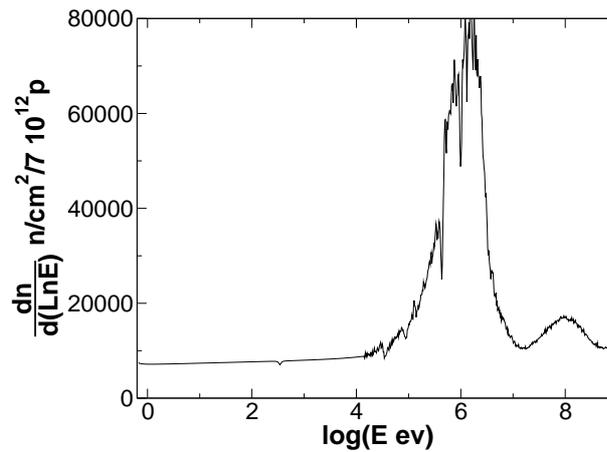


FIGURE (vii) – Fluence sur l'aire expérimentale EAR1 mesurée avec un collimateur de 8 cm de diamètre situé à 3 m en amont. Le modérateur utilisé était de l'eau légère [87].

### D.1.2 Flux en EAR2

A partir de la distribution en flux de EAR1, il est possible d'estimer le flux en EAR2 (base de vol de 19,7 m). Celui-ci sera 20 à 30 fois plus élevé que celui disponible en EAR1 (cf. figure (viii)), soit un facteur variant entre 4 et 8 pour le taux de fission, pour un collimateur prévu de 5 cm de diamètre.

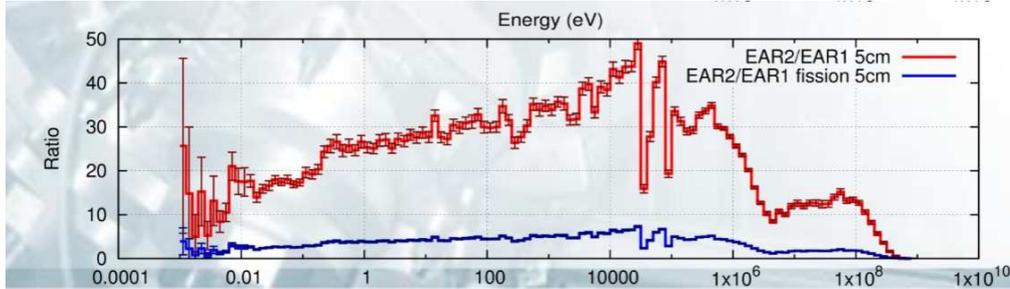


FIGURE (viii) – Rapport des flux entre EAR1 et EAR2 (simulations) pour un collimateur de 5 cm de diamètre [87].

## D.2 Estimation du taux de comptage dans la chambre à fission

Les estimations de taux de comptage présentées par la suite ont été réalisées dans l'optique de mesures de spectres des neutrons de fission de  $^{238}\text{U}$  au moyen des nouvelles chambres à fission présentées en Partie B, chapitre II.

### D.2.1 Temps moyen entre deux interactions - masse critique

Le taux de comptage instantané dans la chambre ne dépend pas de la distribution temporelle du paquet de protons (celle-ci étant extrêmement courte). Il est uniquement fonction de la distribution du temps d'arrivée des neutrons sur la chambre.

Connaissant la distance de vol entre la cible de production de neutrons et la chambre à fission (19,7 m), on peut alors estimer cette distribution à partir de la répartition en énergie présentée en figure (vii).

Dans une première approximation, le flux léthargique  $\Phi(E)$  présenté est multiplié par un facteur moyen de 25 (cf. figure (viii)).

Le temps moyen entre deux interactions  $\Delta_T$  est alors donné par :

$$\Delta_T = \frac{1}{\tau_f^i} = \frac{1}{n_t \sigma(E) \Phi} \quad (\text{iv})$$

avec  $\tau_f^i$  le taux de fission instantané par paquet de protons,  $\sigma(E)$  la section efficace de fission à l'énergie  $E$ ,  $n_t$  le nombre d'atomes cibles dans le faisceau et  $\Phi$  le flux instantané de neutrons à l'énergie  $E$  par bouffée.

Ce flux instantané  $\Phi$  ( $\text{n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ ) peut se calculer à partir du flux léthargique  $\Phi(E)$  suivant :

$$\Phi = \frac{dN}{dt} = \frac{dN}{d\log(E)} \frac{d\log(E)}{dt} \quad (\text{v})$$

$$= \log(e^1) \frac{c}{L} \Phi(E) \sqrt{\frac{E}{m_n c^2} \left(2 + \frac{E}{m_n c^2}\right)^3} \quad (\text{vi})$$

avec L la distance de vol entre le source de production et la chambre à fission.

En réinjectant l'équation (v) dans l'équation (iv), on obtient :

$$\Delta_T = \frac{1}{\frac{m N_A}{A} \sigma(E) \log(e^1) \frac{c}{L} \Phi(E) \sqrt{\frac{E}{m_n c^2} \left(2 + \frac{E}{m_n c^2}\right)^3}} \quad (\text{vii})$$

Le temps de réponse du préamplificateur étant d'environ 100 ns, on peut alors estimer la **masse critique** telle qu'en moyenne le temps entre deux interactions induites par des neutrons de 1 MeV à 16 MeV soit supérieur à 100 ns. Celle-ci est d'environ **4 mg** (cf. figure (ix)) pour une voie électronique.

Les chambres à fission comportant neuf voies de sortie, la quantité maximale d' $^{238}\text{U}$  qui peut être utilisée est de  $9 \times 4 = 36$  mg d'actinide.

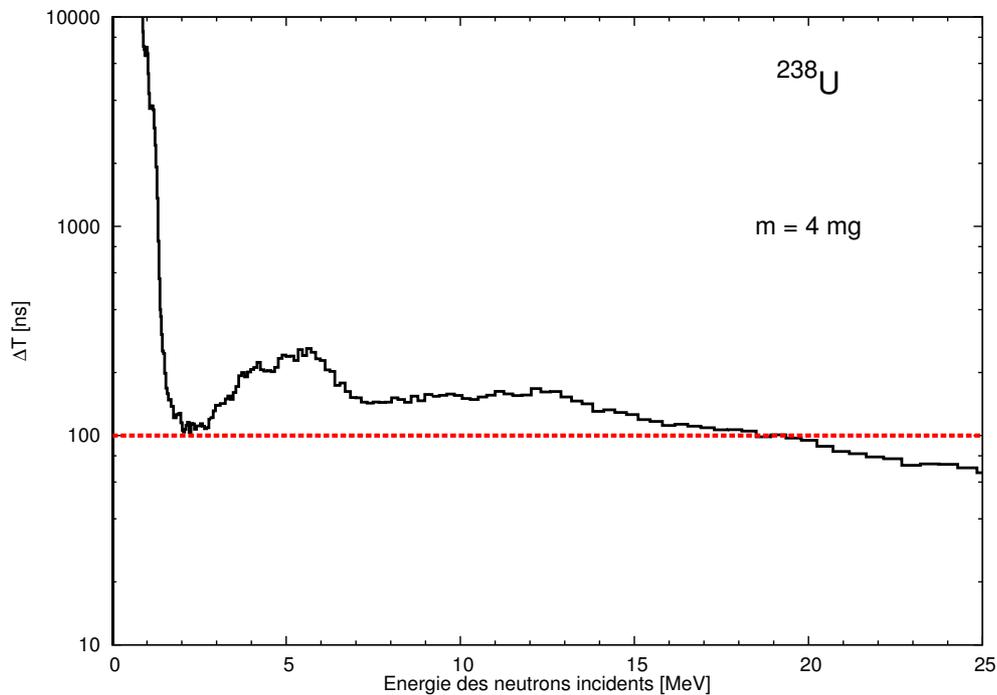


FIGURE (ix) –  $\Delta T$  entre deux réactions de fission pour une masse de 4 mg d' $^{238}\text{U}$ . La ligne rouge représente le  $\Delta T$  minimum de 100 ns nécessaire au traitement des signaux par le préamplificateur.

### D.2.2 Taux de fission réel

Ainsi qu'indiqué par l'équation (vii), le taux de fission instantané par paquet de protons  $\tau_f^i$  s'exprime sous la forme :

$$\tau_f^i = \frac{mN_A}{A} \sigma(E) \log(e^1) \frac{c}{L} \Phi(E) \sqrt{\frac{E}{m_n c^2} \left(2 + \frac{E}{m_n c^2}\right)^3} \quad (\text{viii})$$

Or, la durée d'un paquet de protons varie entre 7 et 10 ns. En supposant une répétition avec un espacement minimale de 1,2 s entre deux bouffées, on obtient un taux de fission moyen  $\tau_f$  :

$$\tau_f \simeq 10^{-8} \tau_f^i \quad (\text{ix})$$

Pour un découpage des énergies incidentes par tranche de 1 MeV, le taux moyen de fission est présenté en figure (x). Il est d'environ **4,5 fissions/s** et atteint *au maximum* **15,3 fissions/s**.

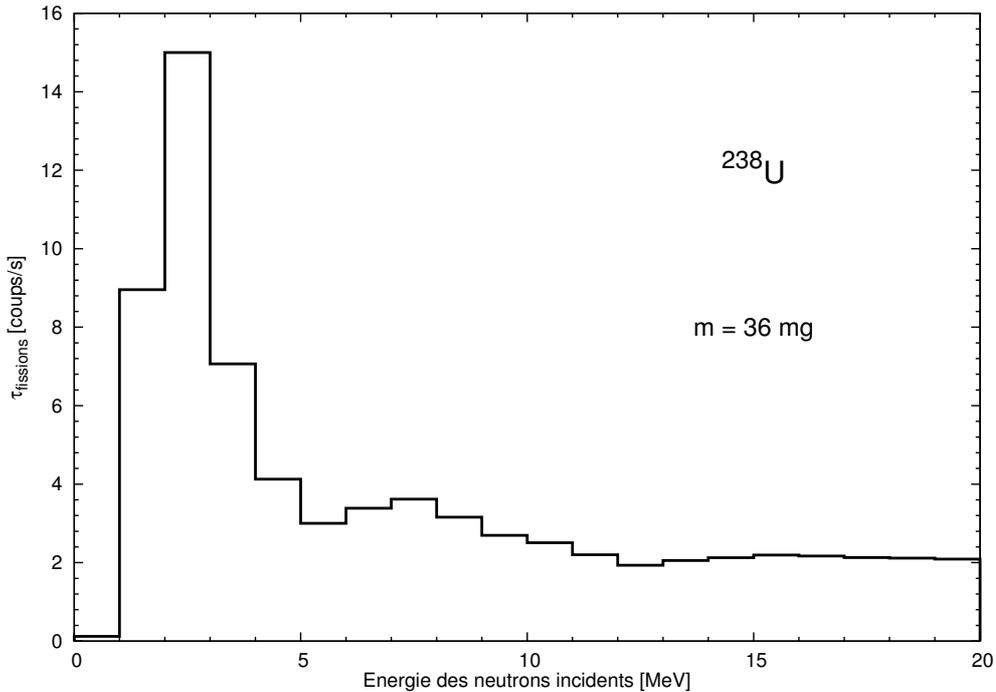


FIGURE (x) – Taux de fissions en fonction de l'énergie neutron incidente pour une masse de 36 mg d' $^{238}\text{U}$ .

### D.2.3 Probabilité de deux événements fission - Taux de fission effectif

En raison des forts flux instantanés disponibles sur l'installation, il est possible, sur une fenêtre en temps  $\Delta T_c$  d'avoir deux événements de type fission. Lorsqu'un tel phénomène se produit, les données correspondantes doivent être rejetées lors de l'analyse. Le taux de fission effectif  $\tau_f^{\text{effectif}}$  sera alors donné par la différence entre le taux de fission

réel (calculé au paragraphe D.2.2) et le taux d'événements fission rejetés.

D'après la loi de Poisson, la probabilité d'avoir deux événements fission dans une fenêtre en temps  $\Delta T_c$  est égale à :

$$P_2(t) = \frac{\mu(t)^2 e^{-\mu(t)}}{2} \quad (\text{x})$$

avec

$$\mu(t) = \int_{t-\frac{\Delta T_c}{2}}^{t+\frac{\Delta T_c}{2}} \tau_f(t) dt \quad (\text{xi})$$

D'après l'équation (x) et la figure (x), on peut donc estimer une probabilité de double fission telle que celle présentée en figure (xi) pour un  $\frac{\Delta T_c}{2} = 150$  ns (temps nécessaire à des neutrons de 200 keV pour parcourir 75 cm).

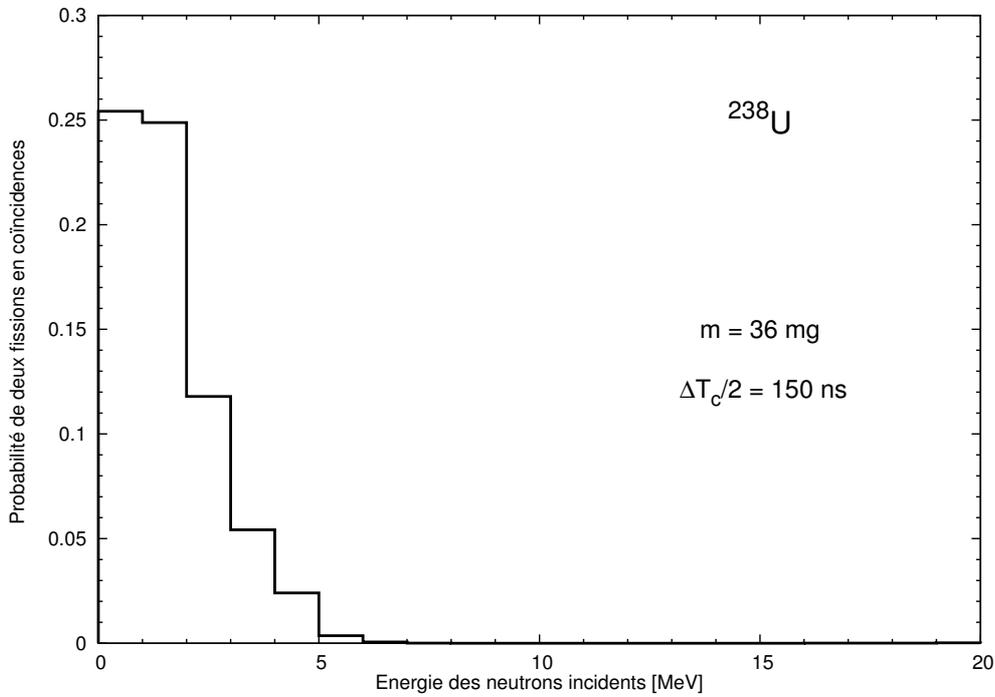


FIGURE (xi) – Probabilité de deux événements fission dans une fenêtre de  $\frac{\Delta T_c}{2} = 150$  ns en fonction de l'énergie neutron incidente pour une masse de 36 mg d' $^{238}\text{U}$ .

La probabilité au sein d'une fenêtre de coïncidence de  $\pm 150$  ns d'avoir deux événements fission est relativement faible, sauf pour des énergies inférieures à 5 MeV, et après réjection de ces événements, on obtient un taux de fission effectif par seconde quasi-identique à celui calculé au paragraphe D.2.2 (cf. figure (xii)).

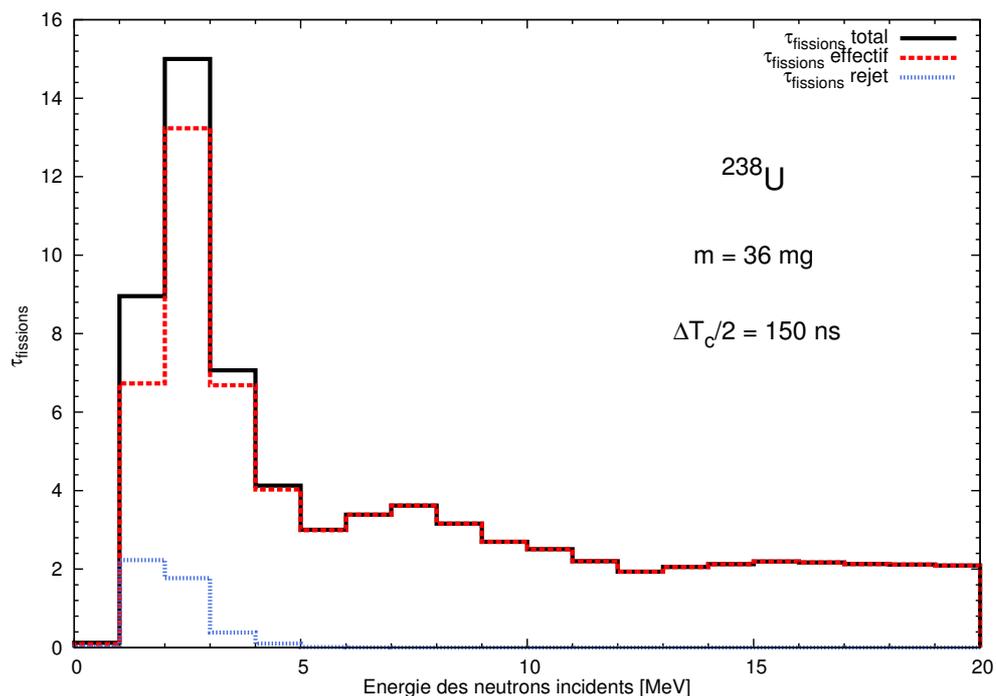


FIGURE (xii) – Taux de fissions effectif en fonction de l'énergie neutron incidente pour une masse de 36 mg d' $^{238}\text{U}$  et une fenêtre de coïncidence de  $\frac{\Delta T_c}{2} = 150 \text{ ns}$ . La courbe noire représente le taux de fission tel que calculé au paragraphe D.2.2, la courbe bleue le taux de fissions rejetées en raison de la présence de deux événements fissions sur l'intervalle  $\Delta T_c$  et la courbe rouge, le taux de fission effectif.

### D.3 Estimation de mesures de spectres neutrons

La détection des neutrons émis lors de la fission s'effectue avec des scintillateurs liquides de type NE213 ( $\Phi 12,5 \times 5$  cm) placés à environ 75 cm de la chambre à fission. La fenêtre de recherche de coïncidences est de 150 ns. Le spectre d'émission neutrons est estimé à l'aide de la méthode décrite dans la partie A de cette annexe.

Le résultat est présenté en figure (xiii) (avec l'erreur relative associée en figure (xiv)) pour des énergies neutrons incidentes de 1 à 16 MeV par pas de 1 MeV pour un comptage de 5 jours ( $5 \times 24$ h) avec 6 détecteurs NE213. Bien que le flux moyen de l'air expérimentale EAR2 de nTOF soit compétitif avec celui disponible sur NFS, le flux instantané, très élevé, limite de manière critique la masse d'actinide utilisable (36 mg seulement pour l' $^{238}\text{U}$ ). Malgré l'utilisation de 6 détecteurs neutrons, un comptage de plus d'une semaine serait nécessaire afin d'obtenir une statistique suffisante.

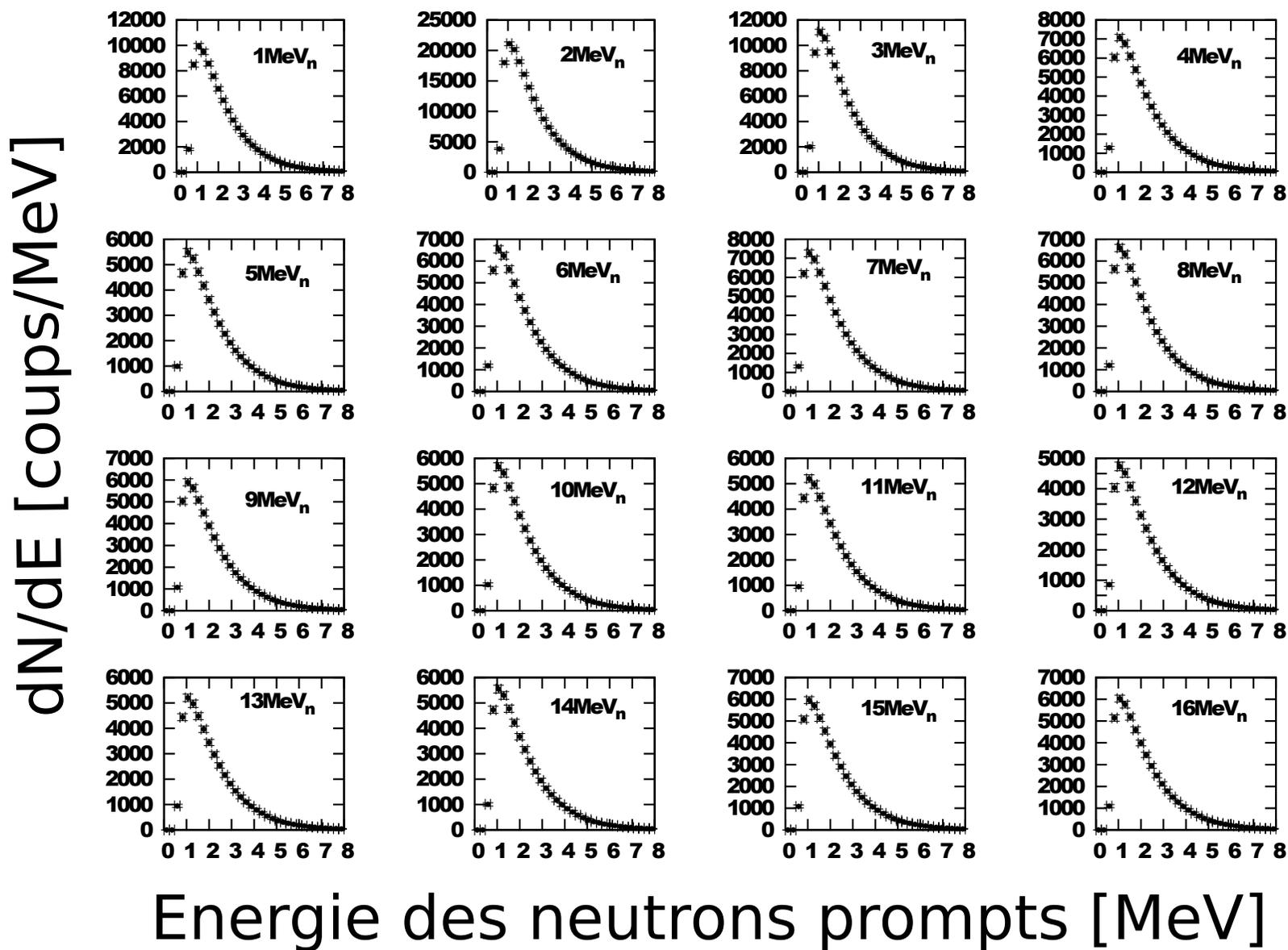


FIGURE (xiii) – Spectres neutrons estimés pour une mesure de 5 jours complets avec 36 mg d' $^{238}\text{U}$ . Les énergies neutrons incidentes vont de 1 à 16 MeV par pas de 1 MeV. La base de vol entre la chambre à fission et les 6 détecteurs neutrons est de 75 cm et la fenêtre de coïncidence de  $\pm 150$  ns.

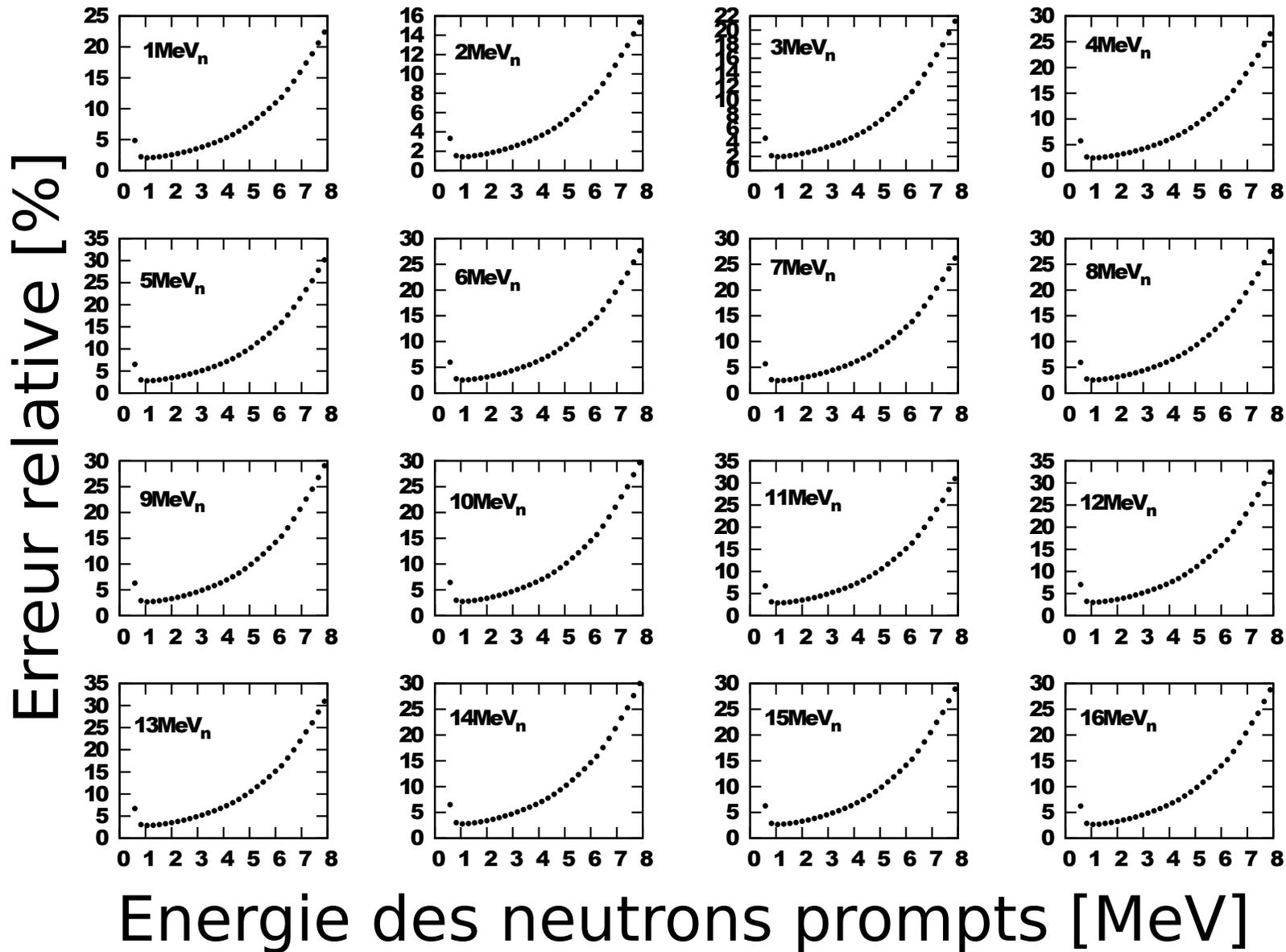


FIGURE (xiv) – Erreur relative sur les spectres neutrons estimés pour une mesure de 5 jours complets avec 36 mg d'<sup>238</sup>U. Les énergies neutrons incidentes vont de 1 à 16 MeV par pas de 1 MeV. La base de vol entre la chambre à fission et les 6 détecteurs neutrons est de 75 cm et la fenêtre de coïncidence de  $\pm 150$  ns.

*« Ce n'est pas la fin, ni même le commencement de la fin; mais c'est la fin du commencement. »*  
*Winston Churchill*





# Table des figures

1	PFNS pour la fission de l' $^{238}\text{U}$ induite par des neutrons de 7 MeV . . . .	16
A.1	Sections efficaces en fonction de l'énergie du neutron incident de l' $^{235}\text{U}$ et de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	23
A.2	Chronologie du phénomène de fission induite par neutron . . . . .	24
A.3	Principe des multi-chances de fission . . . . .	25
A.4	Distributions angulaire et de vitesse des neutrons prompts de fission. . .	27
A.5	Spectre en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission spontanée du $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	38
B.1	Schéma de principe de la technique du temps de vol. . . . .	46
B.2	Évolution de la résolution en énergie en fonction de la base de vol et de la résolution en temps du dispositif expérimental . . . . .	47
B.3	Technique de mesure des PFNS avec une cible passive . . . . .	48
B.4	Technique de mesure des PFNS avec une cible active . . . . .	50
B.5	Principe de fonctionnement d'une chambre à fission. . . . .	54
B.6	Distribution de la charge induite $Q$ dans les chambres à fission . . . . .	58
B.7	Vitesse de dérive des électrons en fonction du champ réduit pour différents gaz. . . . .	60
B.8	Forme du signal d'une chambre d'ionisation en sortie d'un préamplificateur de charge. . . . .	61
B.9	Influence de l'angle d'émission des particules $\alpha$ ou des fragments de fission sur le signal . . . . .	63
B.10	Principe de traitement du signal en sortie d'une chambre à fission . . . .	64
B.11	Photographie et schéma de l'ancienne chambre $^{238}\text{U}$ . . . . .	66
B.12	Dessin technique des nouvelles chambres à fission . . . . .	67
B.13	Pertes d'énergie par ionisation dans 2 cm de $\text{CF}_4$ à pression atmosphérique	69
B.14	Attachement dans le $\text{CF}_4$ pour une pollution de 1% de dioxygène . . . .	70

B.15 Photographie des nouveaux préamplificateurs . . . . .	71
B.16 Photographies de l'intérieure de la nouvelle chambre $^{238}\text{U}$ . . . . .	72
B.17 Exemple de signaux recueillis en sortie du préamplificateur sur la chambre $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	73
B.18 Spectres temps de vol utilisés pour mesurer la résolution temporelle des nouvelles chambres à fission . . . . .	74
B.19 Discrimination $\alpha$ -fission des nouvelles chambres . . . . .	75
B.20 Discrimination $\alpha$ -fission de la nouvelle chambre $^{238}\text{U}$ dans le cas de dépôts sur les cathodes et de dépôts sur anodes et cathodes. . . . .	77
B.21 Proportion de neutrons incidents diffusant sur le corps de la chambre à fission . . . . .	79
B.22 Distorsion calculée du spectre en énergie des neutrons prompts selon l'angle auquel est placé le détecteur. . . . .	81
B.23 Schéma ( <i>à gauche</i> ) et photographie ( <i>à droite</i> ) d'un tube photomultiplicateur. . . . .	87
B.24 Mécanisme d'émission lumineuse dans les verres au lithium . . . . .	89
B.25 Sections efficaces d'interaction des principales réactions induites par neutrons dans des verres au $^6\text{Li}$ . . . . .	91
B.26 Photographie du dispositif expérimental utilisé pour étudier la réponse de verres au lithium . . . . .	93
B.27 Spectres en temps de vol brut mesurés sur les verres $^6\text{Li}$ et $^7\text{Li}$ . . . . .	93
B.28 Corrélations entre l'énergie déposée et un temps réduit sur les verres $^6\text{Li}$ et le verre $^7\text{Li}$ . . . . .	94
B.29 Composante neutron du spectre en temps de vol mesuré sur l'un des verres $^6\text{Li}$ . . . . .	95
B.30 Efficacité intrinsèque différentielle des verres $^6\text{Li}$ . . . . .	96
B.31 Sections efficaces différentielles d'interaction des neutrons sur l'hydrogène et le carbone. . . . .	99
B.32 Composantes de la réponse lumineuse d'un scintillateur . . . . .	100
B.33 Évolution de l'intensité lumineuse en fonction du temps pour différents types de particules déposant leur énergie dans un scintillateur organique. . . . .	101
B.34 Photographies des détecteurs BC501A et p-terphenyle . . . . .	102
B.35 Effet d'un écran de plomb sur le spectre en énergie des neutrons mesuré par temps de vol. . . . .	103
B.36 Effet d'un écran de plomb de 2,5 mm sur le rapport $Q_{lente}/Q_{tot}$ . . . . .	104
B.37 Signaux moyens sur un cristal de p-terphenyle et sur un BC501A. . . . .	105

B.38 Spectre expérimental de $^{137}\text{Cs}$ comparé à une simulation GRESP . . . . .	110
B.39 Résolution en énergie déposée de B1 . . . . .	111
B.40 Résolution en énergie déposée de P1 . . . . .	111
B.41 Étalonnage en énergie de l'un des BC501A et de l'un des p-terphenyle. . . . .	112
B.42 Discrimination neutron- $\gamma$ sur le détecteur P1 . . . . .	114
B.43 Composante neutron du spectre temps de vol après discrimination neutron- $\gamma$ sur P1. . . . .	114
B.44 Évolution de la distribution en énergie $E_{ee}$ en fonction de l'énergie neutron incidente pour le détecteur P1. . . . .	116
B.45 Ajustement avec un polynôme de degré quatre des courbes de réponse en lumière expérimentales de B1 et P1 . . . . .	116
B.46 Distribution en énergie équivalent-électron sur P1 pour $E_n = 0,30 \pm 0,05$ MeV : comparaison du spectre expérimental et des distributions simulées avec NRESP7. . . . .	118
B.47 Courbes de réponse en lumière d'un BC501A et d'un p-terphenyle pour des énergies neutrons entre 0 et 1 MeV. . . . .	119
B.48 Comparaison des distributions en énergie équivalent-électron simulées avec NRESP7 et mesurées expérimentalement sur B1 . . . . .	120
B.49 Comparaison des distributions en énergie équivalent-électron simulées avec NRESP7 et mesurées expérimentalement sur P1 . . . . .	121
B.50 Efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons sur B1 et P1	122
B.51 Efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons mesurée sur P1 : comparaison entre la mesure $^{252}\text{Cf}$ , la simulation NEFF7 et la mesure avec accélérateur . . . . .	124
B.52 Efficacité intrinsèque différentielle de détection des neutrons de deux dé- tecteurs p-terphenyle et d'un BC501A. . . . .	125
B.53 Interfaces graphiques du système d'acquisition FASTER. . . . .	132
B.54 Principe de fonctionnement d'un accélérateur électrostatique de type Van de Graaff. . . . .	138
B.55 Principe de fonctionnement d'un accélérateur électrostatique de type tan- dem. . . . .	139
B.56 Plan du hall expérimental du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF.	140
B.57 Sections efficaces de production de neutrons monocinétiques sur l'accélé- rateur Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF. . . . .	141
B.58 Production de neutrons en cinématique directe. . . . .	143
B.59 Production de neutrons en cinématique inverse . . . . .	144

B.60	Cinématique de l'émission neutronique sur la source de neutrons LICORNE145	
C.1	Dispositif expérimental utilisé pour la mesure du spectre en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission induite par des neutrons de 500 keV de $^{235}\text{U}$	153
C.2	Schéma logique de l'acquisition utilisée lors de la mesure de PFNS de $^{235}\text{U}$ auprès du 7 MV du JRC-IRMM	154
C.3	Distorsion générée par une petite bombarde faite de plomb et de polyéthylène boré sur le spectre en énergie des neutrons prompts de fission	155
C.4	Simulations des distorsions générées par une grande bombarde faite de polyéthylène boré sur le spectre en énergie des neutrons prompts de fission	156
C.5	Dispositif expérimental pour la mesure du spectre en énergie des neutrons prompts de fission de $^{238}\text{U}$ induite par des neutrons de 15 MeV auprès du 4 MV du CEA, DAM, DIF	156
C.6	Photographie du dispositif expérimental utilisé lors des mesures auprès de la source de neutrons LICORNE de l'IPN Orsay.	157
C.7	Caractérisation de l'énergie des neutrons incidents lors des mesures de PFNS sur $^{238}\text{U}$ avec LICORNE.	158
C.8	Mesures de PFNS sur $^{238}\text{U}$ : correspondance entre les énergies des neutrons incidents et la courbe de section efficace de fission.	161
C.9	Discrimination $\alpha$ -fission et seuil de coupure lors des mesures de PFNS	164
C.10	Spectre temps de vol reconstruit après discrimination $\alpha$ -fission (en noir) puis après discrimination neutron- $\gamma$ (en pointillés verts) lors d'une mesure sur le Van de Graaff 4 MV du CEA. Ces deux spectres présentent trois composantes : un pic $\gamma$ , une distribution neutron et une composante de bruit de fond.	165
C.11	Discrimination neutron- $\gamma$ sur un détecteur NE213 lors d'une campagne de mesure sur le Van de Graaff 4 MV du CEA.	166
C.12	Composante neutron d'un spectre temps de vol mesuré auprès du Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF.	168
C.13	Composante neutron d'un spectre temps de vol mesuré auprès de la source de neutrons LICORNE	169
C.14	Rapports des spectres simulés avec et sans bombarde pour une source de $^{252}\text{Cf}$ et pour une source de $^{238}\text{U}$	171
C.15	Spectres temps de vol du $^{252}\text{Cf}$ mesurés dans la salle LICORNE et au-dessus d'une fosse	173
C.16	Spectre temps de vol du $^{252}\text{Cf}$ mesuré dans la salle LICORNE comparé aux simulations avec et sans environnement	174

C.17 Spectres en énergie des neutrons prompts émis par le $^{252}\text{Cf}$ : comparaison des mesures sur fosse et dans la salle LICORNE avant et après correction du bruit de fond corrélé pour un seuil en énergie neutron de 300 keV . . .	175
C.18 Spectre temps de vol de l' $^{238}\text{U}$ mesuré dans la salle LICORNE comparé aux simulations avec et sans environnement . . . . .	176
C.19 Comparaison d'un spectre temps de vol mesuré aux spectres temps de vol simulés avec et sans environnement . . . . .	177
C.20 Spectres en énergies simulés et rapport . . . . .	178
C.21 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 1,6 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	183
C.22 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 2 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	184
C.23 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 2,6 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	185
C.24 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 5,1 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	186
C.25 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 15,3 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	187
C.26 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 2,4 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	188
C.27 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 3,3 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	190
C.28 Énergies moyennes déterminées par ajustement fonctionnel pour la fission de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	192
C.29 Énergies moyennes entre 600 keV et 5,5 MeV déterminées en calculant la moyenne du spectre mesuré pour la fission de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	195
C.30 Spectres en énergie des neutrons prompts pour la fission induite par des neutrons de 560 keV de l' $^{235}\text{U}$ . . . . .	197
(i) Dispositif expérimental utilisé pour les mesures de spectres en énergie des neutrons prompts de fission auprès de l'accélérateur Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF. . . . .	214
(ii) Estimation du spectre en énergie des neutrons prompts et de l'erreur relative associée pour la fission induite par des neutrons de 4 MeV de l' $^{238}\text{U}$ . . . . .	215
(iii) Dispositif expérimental prévu pour des mesures de spectres en énergie des neutrons prompts auprès de l'installation NFS. . . . .	216
(iv) Flux de neutrons incidents attendus pour une mesure avec de deutons incidents de 40 MeV et une intensité de 50 $\mu\text{A}$ auprès de l'installation NFS. . . . .	217

(v)	Nombre moyens de neutrons prompts émis pour une mesure avec de deutons incidents de 40 MeV et une intensité de 50 $\mu\text{A}$ avec 300 mg d' $^{238}\text{U}$ auprès de l'installation NFS. . . . .	218
(vi)	Spectre en énergie des neutrons prompts détectés attendu et erreur relative associée pour une mesure avec des deutons incidents de 40 MeV et une intensité de 50 $\mu\text{A}$ avec 300 mg d' $^{238}\text{U}$ auprès de l'installation NFS, pendant 5 jours. . . . .	218
(vii)	Fluence sur l'aire expérimentale EAR1 mesurée avec un collimateur de 8 cm de diamètre situé à 3 m en amont. . . . .	219
(viii)	Rapport des flux entre EAR1 et EAR2 (simulations) pour un collimateur de 5 cm de diamètre [87]. . . . .	220
(ix)	$\Delta T$ entre deux réactions de fission pour une masse de 4 mg d' $^{238}\text{U}$ . . . . .	221
(x)	Taux de fissions en fonction de l'énergie neutron incidente pour une masse de 36 mg d' $^{238}\text{U}$ . . . . .	222
(xi)	Probabilité de deux événements fission dans une fenêtre de $\frac{\Delta T_c}{2} = 150$ ns en fonction de l'énergie neutron incidente pour une masse de 36 mg d' $^{238}\text{U}$ . . . . .	223
(xii)	Taux de fissions effectif en fonction de l'énergie neutron incidente pour une masse de 36 mg d' $^{238}\text{U}$ et une fenêtre de coïncidence de $\frac{\Delta T_c}{2} = 150$ ns. . . . .	224
(xiii)	Spectres neutrons estimés pour une mesure de 5 jours complets avec 36 mg d' $^{238}\text{U}$ . . . . .	226
(xiv)	Erreur relative sur les spectres neutrons estimés pour une mesure de 5 jours complets avec 36 mg d' $^{238}\text{U}$ . . . . .	227

# Liste des tableaux

B.1	Techniques de mesures de PFNS : avantages et inconvénients des mesures avec une cible passive et une cible active. . . . .	51
B.2	Ordres de grandeur du nombre de paires électron/ion créées et des charges induites résultantes en fonction de l'énergie déposée dans un détecteur gazeux. . . . .	55
B.3	Ordres de grandeur des amplitudes des signaux en sortie d'une chambre à fission. . . . .	61
B.4	Résolution en temps des chambres à fission. . . . .	74
B.5	Estimation de la proportion de neutrons diffusés en coïncidence avec une fission lors des mesures de PFNS . . . . .	80
B.6	Tableau résumant les avantages et inconvénients des différents types de scintillateurs organiques. . . . .	98
B.7	Portes d'intégrations qui optimisent la discrimination neutron- $\gamma$ sur les détecteurs p-terphenyle et BC501A étudiés. . . . .	106
B.8	Résolution en temps d'un détecteur p-terphenyle et de deux scintillateurs BC501A . . . . .	108
B.9	Tableau des sources $\gamma$ utilisées pour déterminer la résolution en énergie de B1 . . . . .	109
B.10	Tableau des sources $\gamma$ utilisées pour déterminer la résolution en énergie de P1 . . . . .	109
B.11	Paramètre des résolutions en énergie mesurées sur B1 et P1 . . . . .	111
B.12	Paramètre des courbes de réponse en lumière modélisées par un polynôme de degré quatre sur B1 et P1 . . . . .	117
B.13	Paramètre d'ajustement du polynôme de degré 4 sur B1 et P1 pour obtenir les courbes de réponse en lumière . . . . .	118
B.14	Tableau des efficacités intrinsèques de détection des neutrons mesurées sur P1 auprès de l'accélérateur Van de Graaff 4 MV de Bruyères-le-Châtel.123	
B.15	Tableau des réactions de production de neutrons monoénergétiques. . . .	136

---

B.16	Énergies neutrons monocinétiques et ordres de grandeur des flux accessibles sur le Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM, DIF . . . . .	141
C.1	Tableau résumant les caractéristiques des dispositifs expérimentaux utilisés	160
C.2	Taux de comptage et rapport signal sur bruit lors de mesures auprès du 4 MV et avec la source de neutrons LICORNE. . . . .	162
C.3	Énergies moyennes totales des neutrons prompts de fission de $^{238}\text{U}$ déterminées par ajustement fonctionnel . . . . .	192
C.4	Énergies moyennes des neutrons prompts de fission de $^{238}\text{U}$ entre 600 keV et 5,5 MeV, déterminées par calcul de la moyenne du spectre mesuré . . .	194
C.5	Énergie moyenne des neutrons prompts émis lors de la fission induite par des neutrons de 560 keV de $^{235}\text{U}$ . . . . .	197

# Bibliographie

- [1] N. KOCHEROV et P.K. MCLAUGHLIN : World requested list for nuclear data. Rapport technique, Décembre 1993. INDC(SEC)-104, <https://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-sec-0104.pdf>.
- [2] R. CAPOTE, V. MASLOV, E. BAUGE, T. OHSAWA, A. VOROBYEV, M.B. CHADWICK et S. OBERSTEDT : Consultants' Meeting on Prompt Fission Neutron Spectra of Major Actinides. Summary Report, IAEA-INDC International Nuclear Data Committee, Janvier 2009. INDC(NDS)-0541.
- [3] N. BOHR : Neutron capture and nuclear constitution. *Nature*, 137:344, 1936.
- [4] C. WAGEMANS : *The nuclear fission process*. CRC Press, 1991.
- [5] Harry R. BOWMAN, Stanley G. THOMPSON, J.C.D. MILTON et Wladyslaw J. SWITATECKI : Velocity and angular distributions of prompt neutrons from spontaneous fission of  $\text{Cf}^{252}$ . *Phys. Rev.*, 126:2120–2136, 1962.
- [6] James TERREL : Fission neutron spectra and nuclear temperatures. *Phys. Rev.*, 113:527–541, 1958.
- [7] B.E. WATT : Energy spectrum of neutrons from thermal fission of  $\text{U}^{235}$ . *Phys. Rev.*, 87:1037–1041, 1952.
- [8] A.S. VOROBYEV, O.A. SHCHERBAKOV, A.M. GAGARSKI, G.V. VA'SHI et G.A. PETROV : Investigation of the prompt neutron emission mechanism in low energy fission of  $^{235,233}\text{U}(\text{n},\text{f})$  and  $^{252}\text{Cf}(\text{sf})$ . In EPJ WEB OF CONFERENCES, éditeur : *EFNUDAT workshop : « Measurements and models of nuclear reactions »*, 2010. Paris.
- [9] D.G. MADLAND et J.R. NIX : New calculation of prompt fission neutron spectra and average prompt neutron multiplicities. *Nuclear Science and engineering*, 81:213–271, 1982.
- [10] V. WEISSKOPF : Statistics and nuclear reactions. *Phys. Rev.*, 52:295–303, 1937.
- [11] D.G. MADLAND, R.J. LABAUVE et J.R. NIX : Recent improvements in the calculation of prompt fission neutron spectra : preliminary results. Rapport technique, IAEA-INDC International Nuclear Data Committee, 1989. IAEA-INDC(NDS)-220.
- [12] A. TUDORA, B. MORILLON, F.-J. HAMBSCH, G. VALDUCA et S. OBERSTEDT : A refined model for  $^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$  prompt fission neutron multiplicity and spectrum calculation with validation in integral benchmarks. *Nuclear Physics A*, 756:176–191, 2005.

- [13] S. LEMAIRE, P. TALOU, T. KAWANO, M.B. CHADWICK et D.G. MADLAND : Monte Carlo approach to sequential neutron emission from fission fragments. *Phys. Rev. C*, 72:024601, 2005.
- [14] O. LITAIZE et O. SÉROT : Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and  $\gamma$  emission. *Phys. Rev. C*, 82:054616, 2010.
- [15] R. VOGT, J. RANDRUP, D.A. BROWN, M.A. DESCALLE et W.E. ORMAND : Event-by-event evaluation of the prompt fission neutron spectrum from  $^{239}\text{Pu}(n,f)$ . *Phys. Rev. C*, 85, 2012.
- [16] K.-H. SCHMIDT et B. JURADO : <http://www.khs-erzhausen.de/GEF.html>, 2015. GEF : A General Description of Fission Observables.
- [17] A.V. IGNATYUK, G.N. SMIRENKIN et A.S. TISHIN : *Sov. J. Nucl. Phys.*, 21:255, 1975.
- [18] I. DOSTROVSKY, Z. FRAENKEL et G. FRIDLANDER : Monte Carlo Calculations of Nuclear Evaporation Processes. III. Applications to Low-Energy Reactions. *Phys. Rev.*, 116:683, 1959.
- [19] T. von EGIDY et D. BUCURESCU : Experimental energy-dependent nuclear spin distributions. *Phys. Rev. C*, 80:054310, 2009.
- [20] W. MANNHART : Status of the Cf-252 fission neutron spectrum evaluation with regard to recent experiments. In H.D. LEMMEL, éditeur : *Physics of neutron emission in fission*, pages 305–336. IAEA, June 1989. INDC(NDS)-220.
- [21] Y. EL MASRI, Th. KEUTGEN et I. TILQUIN : Comment détecter les neutrons, 1994. Cours de l'école Joliot-Curie.
- [22] P. STAPLES, J.J. EGAN, G.H.R. KEGEL, A. MITTLER et M.L. WOODRING : Prompt fission neutron energy spectra induced by fast neutrons. *Nuclear Physics A*, pages 41–60, 1995.
- [23] G.N. LOVCHIKOVA, A.M. TRUFANOV, M.I. SVIRIN, V.A. VINOGRADOV et A.V. POLYAKOV : Spectra and mean energies of prompt neutrons from  $^{238}\text{U}$  fission induced by primary neutrons of energy in the region  $E_n < 20$  MeV. *Physics of Atomic Nuclei*, 67(7):1246–1263, 2004.
- [24] N.V. KORNILOV, F.-J. HAMBSCH, I. FABRY, S. OBERSTEDT et S.P. SIMAKOV : An experimental study of prompt neutrons from  $^{235}\text{U}$  fission. Rapport technique, JRC-IRMM, 2007. GE/NPL01/2007/02/14.
- [25] S. NODA, R.C. HAIGHT, R.O. NELSON, M. DEVLIN, J.M. O'DONNELL, A. CHATILLON, T. GRANIER, G. BÉLIER, J. TAIEB, T. KAWANO et P. TALOU : Prompt fission spectra from fission induced by 1 to 8 Mev neutrons on  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  using the double time-of-flight technique. *Phys. Rev. C*, 83:034604, 2011.
- [26] A. CHATILLON, G. BÉLIER, T. GRANIER, B. LAURENT, B. MORILLON, J. TAIEB, R.C. HAIGHT, M. DEVLIN, R.O. NELSON, S. NODA et J.M. O'DONNELL : Measurement of prompt neutron spectra from the  $^{239}\text{Pu}(n,f)$  fission reaction for incident neutron energies from 1 to 200 Mev. *Phys. Rev. C*, 89:014611, 2014.

- [27] N. KORNILOV, F.-J. HAMBSCH, I. FABRY, S. OBERSTEDT, T. BELGYA, Z. KIS, L. SZENTMIKLOSI et S. SIMAKOV : The  $^{235}\text{U}(n,f)$  prompt fission neutron spectrum at 100 k input neutron energy. *Nuclear Science and Engineering*, 165:117–127, 2010.
- [28] M. BABA, H. WAKABAYASHI, M. ISHIKAWA, N. NAKASHIMA, N. ITO, N. HIRAKAWA et K. MAEDA : Fission spectrum measurement of  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  for 2 MeV neutrons. Rapport technique, INDC(NDS)-220, 1989. EXFOR:<https://www-nds.iaea.org/exfor/servlet/X4sGetSubent?reqx=2212&subID=22112002&plus=1>.
- [29] Glenn F. KNOLL : *Radiation Detection and Measurement*. Wiley, 2000. Third Edition.
- [30] Nucléide LARA : <http://laraweb.free.fr/>, 2015. Bibliothèque d'émissions gamma et alpha.
- [31] R. VEENHOF : GARFIELD - simulation of gaseous detectors, 2010. <http://garfield.web.cern.ch/garfield/>.
- [32] C. Budtz-JØRGENSEN, H.-H. KNITTER, C. STRAEDE, F.-J. HAMBSCH et R. VOGT : A twin ionization chamber for fission fragment detection. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 258:209–220, 1987.
- [33] A. BERTIN, R. BOIS et J. FRÉHAUT : Mesure du spectre en énergie des neutrons prompts de fission. Rapport technique, CEA, 1978. CEA-R-4913.
- [34] J. TAIEB, C. VARIGNON, A. SARDET, G. BÉLIER et B. LAURENT : A new fission chamber dedicated to prompt fission neutron spectra measurements. *En préparation*.
- [35] J.F. ZIEGLERA, M.D. ZIEGLERB et J.P. BIRSACKC : SRIM – the stopping and range of ions in matter (2010). *Nucl. Instr. and Meth. B*, 268:1818–1823, 2010. <http://www.srim.org/SRIM/SRIMLEGL.htm>.
- [36] Brilliance <sup>TM</sup> scintillators performance summary. Rapport technique, Saint-Gobain crystals, Janvier 2009.
- [37] LANL : Monte Carlo N-Particle eXtended, 2008. <https://mcnpx.lanl.gov/>.
- [38] A.R. SPOWART : Neutron scintillating glasses : part 1. *Nucl. Instr. and Meth.*, 135:441–453, 1976.
- [39] A.W. DALTON : Light conversion efficiency of small lithium scintillators for electrons, protons, deuterons and alpha particles. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 254:361, 1987.
- [40] S. YAMAGUCHI, Y. OYAMA, T. NAKAMURA et H. MAEKAWA : An on-line method for tritium production measurement with a pair of lithium glass scintillators. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 254:413, 1987.
- [41] S. VAYRE : *Développement et caractérisation d'une cible active scintillante pour l'étude de la fission et étude des possibilités de calorimétrie de la fission avec le détecteur CARMEN*. Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, mars 2015.

- [42] Saint GOBAIN : Liquid scintillators. [http://www.crystals.saint-gobain.com/Liquid\\_scintillators.aspx](http://www.crystals.saint-gobain.com/Liquid_scintillators.aspx).
- [43] Cryos-Beta. <http://www.cryos-beta.kharkov.ua/organic.php>.
- [44] K. TSUKADA et S. KIKUCHI : Directional anisotropy in the characteristics of the organic-crystal scintillators. *Nucl. Instr. and Meth.*, 17:286–288, 1962.
- [45] K. TSUKADA, S. KIKUCHI et Y. MIYAGAWA : Directional anisotropy in the characteristics of the organic-crystal scintillators, ii. *Nucl. Instr. and Meth.*, 37:69–76, 1965.
- [46] A. SARDET, C. VARIGNON, B. LAURENT, T. GRANIER et A. OBERSTEDT : P-terphenyl : an alternative to liquid scintillators for neutron detection. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 792:74–80, 2015.
- [47] A. OBERSTEDT, S. OBERSTEDT, R. BILLNERT, W. GEERTS, F.-J. HAMBSCH et J. KARLSSON : Identification of prompt-fission  $\gamma$ -rays with lanthanum-chloride scintillation detectors. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 668:14–20, 2012.
- [48] L. H. LUTHJENS, P. DORENBOS, J. T. M. de HAAS, A. HUMMEL et C. W. E. van EIJK : Determination of the absolute radiation chemical excited state singlet yield in benzene, using a scintillation detection method for excitation energies between 17.5 and 122 keV. *Radiation Phys. Chem.*, 55:255, 1999.
- [49] G. DIETZE et H. KLEIN : Gamma-calibration of NE213 scintillation counters. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 193:549, 1982.
- [50] C. MATEI, F.-J. HAMBSCH et S. OBERSTEDT : Proton light output function and neutron efficiency of a p-terphenyl detector using a  $^{252}\text{Cf}$  source. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 679:135–139, 2012.
- [51] G. DIETZE : Energy calibration of NE-213 scintillation counters by  $\gamma$ -rays. *IEE Transactions on Nuclear Science*, NS-26, February 1979.
- [52] N.V.KORNILOV, I. FABRY, S. OBERSTEDT et F.-J. HAMBSCH : Total characterization of neutron detectors with a  $^{252}\text{Cf}$  source and a new light output determination. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 599:226–233, 2009.
- [53] G. DIETZE et H. KLEIN : NRESP4 and NEFF4 Monte Carlo Codes for the Calculation of Neutron Response Functions and Detection Efficiencies for NE213 Scintillation Detectors. Rapport technique, PTB-Bericht, October 1982. ISSN 0572-7170.
- [54] S.A. POZZI, E. PADOVANI et M. MARSEGUERRA : MCNP-PoliMi : a Monte-Carlo code for correlation measurements. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 513:550–558, 2003.
- [55] A.S. VOROBYEV, V.N. DUSHIN, F.-J. HAMBSCH, V.A. JAKOVLEV, V.A. KALININ, A.B. LAPTEV, B.F. PETROV et O.A. SHCHERBAKOV : Distribution of prompt neutron emission probability for fission fragments in spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$  and  $^{244,248}\text{Cm}$ . In "American Institute of PHYSICS CONFERENCE PROCEEDINGS", éditeur : *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, volume 769, pages 613–616, 2005.

- [56] D. ETASSE et *et al.* : <http://faster.in2p3.fr/>, 2013. FASTER Home Page.
- [57] D. CUSSOL et *et al.* : <http://faster.in2p3.fr/index.php/rhb>, 2013. About RHB!
- [58] DIF Van de Graaff 4 MV du CEA, DAM : [http://www-phynu.cea.fr/experience/dam\\_idf/accélérateur.htm](http://www-phynu.cea.fr/experience/dam_idf/accélérateur.htm).
- [59] S. RÖTTGER, R. BÖTTGER, F.D. BROOKS, A. BUFFLER, , J.-P. MEULDERS, R. NOLTE, F.D. SMIT et F. WISSMANN : The PTB Neutron Reference Fields (PIAF) - Quasi-Monoenergetic Neutron Reference Fields in the Energy Range from Thermal to 200 MeV. <http://www.phy.uct.ac.za/people/buffler/Rottger%20fission2009-piaf.pdf>.
- [60] H.J. BREDE, G. DIETZE, K. KUDO, U.J. SCHREWE, F. TANCU et C. WEN : Neutron yields from thick Be targets bombarded with deuterons or protons. *Nucl. Instr. and Meth. A*, pages 332–344, 1989.
- [61] M.S. MOORE : *WNR, a neutron time-of-flight facility at the Los Alamos scientific laboratory*, pages 327–333. 1974. Nuclear Structure Study with neutrons.
- [62] F. TOVESSON : Nuclear science research at the LANSCE-WNR facility, 2012. <http://gwdac.phys.gwu.edu/~igor/Ashburn2012/talks/Tovesson.pdf>.
- [63] CERN : n\_TOF : The neutron time-of-flight facility at CERN. <https://ntof-exp.web.cern.ch/ntof-exp/>.
- [64] X. LEDOUX, M. AÏCHE, M. AVRIGEANU, V. AVRIGEANU, L. AUDOUIN et *al.* : The Neutrons for Science Facility at SPIRAL2. *In AIP Conference PROCEEDINGS*, éditeur : 1412, volume 55, 2011.
- [65] X. LEDOUX, M. AÏCHE, M. AVRIGEANU, V. AVRIGEANU, L. AUDOUIN et *al.* : The Neutrons for Science Facility at SPIRAL2. *In Nuclear Data sheets*, volume 119, pages 353–356, 2014.
- [66] J.B. MARION et J.L. FOWLER : *Fast neutron physics part 1*. Interscience publisher, Inc. New York, 1960.
- [67] Luc VALENTIN : *Physique subatomique - Noyaux et particules - Volume I : Approche élémentaire*. Enseignements des sciences - Hermann, 1982.
- [68] M. LEBOIS, J.N. WILSON, P. HALIPRÉ, B. LENIAU, I. MATEA, A. OBERSTEDT, S. OBERSTEDT et D. VERNEY : Development of a kinematically focused neutron source with the  $p(^7\text{Li},n)^7\text{Be}$  inverse reaction. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 735:145–151, 2014.
- [69] T. BRYS : Data acquisition system and analysis based on Digital Signal Processing. Rapport technique, JRC-IRMM, 2010.
- [70] R. BRUN et F. RADEMAKERS : Discovering ROOT. <http://root.cern.ch/drupal/content/discovering-root>.

- [71] H.Y. LEE, T.N. TADDEUCCI, R.C. HAIGHT et al. : Li-glass detector response study with a  $^{252}\text{Cf}$  source for low-energy prompt fission neutrons. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 703:213–219, 2013.
- [72] A. M. TRUFANOV, G. N. LOVCHIKOVA, M. I. SVIRIN, A. V. POLYAKOV, V. A. VINOGRADOV, V. D. DMITRIEV et G. S. BOYKOV : Investigation of the neutron spectra in fission of nucleus  $^{238}\text{U}$  induced by fast neutrons with energies of 5.0 and 13.2 Mev. *Physics of Atomic Nuclei*, 64:1, 2001. EXFOR 41450.002.
- [73] G.S.BOIKOV, V.D.DMITRIEV, G.A.KUDYAEV, YU.B.OSTAPENKO, M.I.SVIRIN et G.N.SMIRENKIN : Spectrum of Neutrons Accompanying Fission of  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ , and  $^{238}\text{U}$  by 2.9-MeV and 14.7-MeV Neutrons (Below and Above the Threshold of Emission Fission). *Yadernaya Fizika*, 53:628, 1991. EXFOR 41110.010.
- [74] V.YA.BARYBA, N.V.KORNILOV et O.A.SAL'NIKOV : Prompt neutron fission spectrum of U-238 for 14.3 MeV incident neutrons. Rapport technique, Fiz.-Energ Institut, Obninsk Reports, 1979. EXFOR 40740.002.
- [75] B. BECKER, P. TALOU, T. KAWANO, Y. DANON et I. STETCU : Monte Carlo Hauser-Feshbach predictions of prompt fission gamma rays : Application to  $n(\text{th})+\text{U}-235$ ,  $n(\text{th})+\text{Pu}-239$ , and  $\text{Cf}-252(\text{sf})$ . *Phys. Rev. C*, page 014617, 2013.
- [76] P. TALOU, T. KAWANO et I. STETCU : Prompt Fission Neutrons and gamma Rays. *In Nuclear Data sheets*, volume 118, pages 195–198, 2014.
- [77] D. REGNIER : *Contribution à l'étude des gammas prompts de fission*. Thèse de doctorat, Université de Grenoble, octobre 2013.
- [78] O. LITAIZE, O. SÉROT, D. REGNIER et al. : *In Nuclear Data sheets*, volume 118, pages 216–219, 2014.
- [79] T. ETHVIGNOT, M. DEVLIN, H. DUARTE, T. GRANIER, R.C. HAIGHT, B. MORILLON, R.O. NELSON, J.M. O'DONNELL et D. ROCHMAN : Neutron multiplicity in the fission of  $^{238}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  with neutrons up to 200 Mev. *Phys. Rev. Lett.*, 94:052701, 2005.
- [80] A. TUDORA, G. VLADUCA et B. MORILLON : Prompt fission neutron multiplicity and spectrum model for 30–80 MeV neutrons incident on  $^{238}\text{U}$ . *Nuclear Physics A*, 740:33–58, 2004.
- [81] T. ETHVIGNOT, M. DEVLIN, R. DROSG, T. GRANIER, R.C. HAIGHT, B. MORILLON, R.O. NELSON, J.J. DONNELL et D. ROCHMAN : Prompt-fission-neutron average energy for  $^{238}\text{U}(n,f)$  from threshold to 200 Mev. *Phys. Lett. B*, 575:221, 2003.
- [82] J. TAIEB, T. GRANIER, T. ETHVIGNOT, M. DEVLIN, R. C. HAIGHT, R. O. NELSON, J. M. DONNELL et D. ROCHMAN : Measurement of the average energy and multiplicity of prompt-fission neutrons from  $^{238}\text{U}(n,f)$  and  $^{237}\text{Np}(n,f)$  from 1 to 200 Mev. *In O. BERSILLON, F. GUNSING, E. BAUGE, R. JACQMIN et S. Leray (EDP SCIENCES), éditeurs : Proceeding of the International Conference in Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, pages 429–432, 2007.*

- [83] J.M. ADAMS et P.I. JOHANSSON : Fast neutron fission spectrum measurement of U-235 at 0.52 MeV incident neutron energy. *In Conf.on Nucl.Cross-Sect.and Techn., Washington*, volume 2, page 631, 1975. EXFOR 20996.003.
- [84] P.I. JOHANSSON et B. HOLMQVIST : An Experimental Study of the Prompt Fission Neutron Spectrum Induced by 0.5-MeV Neutrons Incident on Uranium-235. *Nuclear Science and Engineering*, 62:695, 1977. EXFOR 20175.003.
- [85] R.C. HAIGHT, H.Y. LEE, T.N. TADDEUCCI, J. O'DONNELL et *al.* : Progress in the measurement of prompt neutron output in neutron-induced fission of  $^{239}\text{Pu}$  : the Chi-nu project. Rapport technique, LANL, 2012. LA-UR-12-25233.
- [86] T. OHSAWA : Empirical formulas for estimation of prompt fission neutron multiplicity for actinide nuclides. *Journal of Nuclear and Radiochemical sciences*, 9:19–25.
- [87] L. TASSAN-GOT : Communication privée.

SPECTRES EN ÉNERGIE DES NEUTRONS PROMPTS DE FISSION :  
OPTIMISATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET APPLICATION À L' $^{238}\text{U}$

**Résumé**

La fission nucléaire est un phénomène complexe dont tous les mécanismes ne sont pas entièrement compris. Dans le cadre d'une coopération internationale, le CEA, DAM, DIF étudie les spectres en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission induite par des neutrons rapides, et plus particulièrement la zone à basse énergie de ces spectres ( $<1$  MeV). Ce travail de thèse a consisté à optimiser un dispositif expérimental de mesure de neutrons prompts de fission. Dans un premier temps, de nouveaux détecteurs de fission ont été développés. Nous en rapportons ici la conception et étudions leurs performances en termes de discrimination  $\alpha$ -fission, de résolution en temps et de distorsion sur le spectre mesuré. Le second axe de développement abordé au cours de cette thèse est celui de la détection des neutrons. Plusieurs types de détecteurs ont été comparés (discrimination neutron- $\gamma$ , efficacité de détection), en vue d'optimiser la détection des neutrons de basse énergie. Enfin, le dispositif expérimental ainsi optimisé est utilisé pour mesurer le spectre en énergie des neutrons prompts émis lors de la fission induite par neutrons de  $^{238}\text{U}$ . Après avoir présenté la méthode utilisée pour l'analyse des données, les résultats obtenus sont interprétés en termes de modèles et d'évaluations.

**Mots-clefs** : neutrons prompts, spectres en énergie, p-terphenyle, NE213, chambre à fission, temps de vol,  $^{238}\text{U}$ .

---

PROMPT FISSION NEUTRON ENERGY SPECTRA : OPTIMISATION OF THE  
EXPERIMENTAL SETUP AND APPLICATION TO  $^{238}\text{U}$

**Abstract**

Nuclear fission is a complex phenomenon whose mechanisms are not fully understood. Within the framework of an international cooperation, the CEA, DAM, DIF is taking part in the study of prompt fission neutron energy spectra from fast neutron induced fission, focusing on the low energy domain of these spectra ( $<1$  MeV). This PhD thesis was dedicated to the optimization of the experimental setup. New fission detectors were developed. We report on their conception and their performances in terms of  $\alpha$ -fission discrimination, timing resolution and distortion on the measured spectrum. In a second step, several neutron detectors were studied (neutron- $\gamma$  discrimination, detection efficiency), so as to optimize the detection of low energy neutrons. In the present document, we report on the results of this comparative study. Finally, the optimized experimental setup was used to measure prompt fission neutron energy spectra for the fast-neutron induced fission of  $^{238}\text{U}$ . After detailing the data analysis method, the results are interpreted in terms of models and evaluations.

**Keywords** : prompt neutrons, energy spectra, p-terphenyl, NE213, fission chamber, time of flight,  $^{238}\text{U}$ .