

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

A.30

**DETERMINATION DES RENDEMENTS
DE FISSIONS INDUITES PAR UN SPECTRE
DE NEUTRONS DE FISSION ET DES NEUTRONS
DE 14,7 MEV DANS ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu**

*par**Jean LAUREC, Albert ADAM, Thierry DE BRUYNE*

Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel

Rapport CEA-R-5147**1981**

Ga

SERVICE DE DOCUMENTATION

C.E.N.-SACLAY 91191 GIF-sur-YVETTE Cedex FRANCE

PLAN DE CLASSIFICATION DES RAPPORTS ET BIBLIOGRAPHIES CEA

(Classification du système international de documentation nucléaire SIDON/INIS)

A 11	Physique théorique	C 30	Utilisation des traceurs dans les sciences de la vie
A 12	Physique atomique et moléculaire	C 40	Sciences de la vie : autres études
A 13	Physique de l'état condensé	C 50	Radioprotection et environnement
A 14	Physique des plasmas et réactions thermonucléaires	L 10	Isotopes et sources de rayonnements
A 15	Astrophysique, cosmologie et rayonnements cosmiques	D 20	Applications des isotopes et des rayonnements
A 16	Conversion directe d'énergie	E 11	Thermodynamique et mécanique des fluides
A 17	Physique des basses températures	E 12	Cryogénie
A 20	Physique des hautes énergies	E 13	Installations pilotes et laboratoires
A 30	Physique neutronique et physique nucléaire	E 14	Explosions nucléaires
B 11	Analyse chimique et isotopique	E 15	Installations pour manipulation de matériaux radioactifs
B 12	Chimie minérale, chimie organique et physico-chimie	E 16	Accélérateurs
B 13	Radiochimie et chimie nucléaire	E 17	Essais des matériaux
B 14	Chimie sous rayonnement	E 20	Réacteurs nucléaires (en général)
B 15	Corrosion	E 30	Réacteurs nucléaires (types)
B 16	Traitement du combustible	E 40	Instrumentation
B 21	Métaux et alliages (production et fabrication)	E 50	Effluents et déchets radioactifs
B 22	Métaux et alliages (structure et propriétés physiques)	F 10	Economie
B 23	Céramiques et cermets	F 20	Législation nucléaire
B 24	Matières plastiques et autres matériaux	F 30	Documentation nucléaire
B 25	Effets des rayonnements sur les propriétés physiques des matériaux	F 40	Sauvegarde et contrôle
B 30	Sciences de la terre	F 50	Méthodes mathématiques et codes de calcul
C 10	Action de l'irradiation externe en biologie	F 60	Divers
C 20	Action des radioisotopes et leur cinétique		

Rapport CEA-R-5147

Cote-matière de ce rapport : A.30

DESCRIPTION-MATIERE (mots clefs extraits du thesaurus SIDON/INIS)

en français

CIBLE URANIUM 233
 CIBLE URANIUM 235
 CIBLE URANIUM 238
 CIBLE PLUTONIUM 239
 FISSION
 NEUTRONS DE FISSION
 CHAMBRES D'IONISATION A FISSION
 SPECTROSCOPIE ALPHA
 DETECTEURS AU GE COMPENSES AU LI
 SPECTROSCOPIE DE MASSE
 RENDEMENT DE FISSION
 DETECTION DES FRAGMENTS DE FISSION
 DONNEES EXPERIMENTALES

en anglais

URANIUM 233 TARGET
 URANIUM 235 TARGET
 URANIUM 238 TARGET
 PLUTONIUM 239 TARGET
 FISSION
 FISSION NEUTRONS
 FISSION CHAMBERS
 ALPHA SPECTROSCOPY
 LI DRIFTED GE DETECTORS
 MASS SPECTROSCOPY
 FISSION YIELD
 FISSION FRAGMENT DETECTION
 EXPERIMENTAL DATA

- Rapport CEA-R-5147 -

Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel -

**DETERMINATION DES RENDEMENTS DE FISSIONS
INDUITES PAR UN SPECTRE DE NEUTRONS DE FISSION
ET DES NEUTRONS DE 14,7 MEV DANS ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu**

par

Jean LAUREC, Albert ADAM, Thierry DE BRUYNE

- Décembre 1981 -

CEA-R-5147 - Jean LAUREC, Albert ADAM, Thierry de BRUYNE

DETERMINATION DES RENDEMENTS DE FISSIONS INDUITES PAR UN SPECTRE DE NEUTRONS DE FISSION ET DES NEUTRONS DE 14,7 MEV DANS ^{235}U , ^{238}U , ^{239}U , ^{241}Pu

Sommaire. - Les rendements de fission de ^{235}U , ^{238}U , ^{239}U et du ^{241}Pu ont été déterminés par une méthode radiochimique. Une chambre à fission et une cible du même matériau fissile sont irradiées ensemble. Le nombre total de fissions est mesuré par la chambre à fission. L'activité des produits de fission est directement mesurée sur la cible à l'aide de détecteurs Ge-Li. Les masses des dépôts fissiles sont déterminées par spectrométrie alpha et spectrométrie de masse. Les irradiations ont été effectuées auprès des assemblages critiques PROSPERO et CALIBAN et du générateur de neutrons de 14 MeV LANCELOT du C.E. VALDUC. Les erreurs sur les rendements de fission obtenus sont comprises entre 3 à et 5 % pour la plupart des nucléides mesurés : ^{92}Zr , ^{94}Zr , ^{98}Mo , ^{102}Ru , ^{106}I , ^{132}Ce , ^{134}Ba , ^{136}Ce , ^{138}Ce , ^{140}Ce , ^{142}Nd .

1982

Commissariat à l'Energie Atomique - France

82 p.

CEA-R-5147 - Jean LAUREC, Albert ADAM, Thierry de BRUYNE

Summary. - The ^{235}U , ^{238}U , ^{239}U , ^{241}Pu fission yields have been determined by a radiochemical method. A target and a fission chamber made of same fissile material are irradiated together. The total fission number is measured from the fission chamber. The fission product activities are directly measured on the target using calibrated Ge-Li detectors. The fissile material masses are determined by alpha and mass spectrometries. The irradiations were made on the critical assemblies and on 14 MeV neutron generator of C.E. VALDUC. 3 to 5 % fission yield errors are got for the most measured nuclides : ^{92}Zr , ^{94}Zr , ^{98}Mo , ^{102}Ru , ^{106}I , ^{132}Ce , ^{134}Ba , ^{136}Ce , ^{138}Ce , ^{140}Ce , ^{142}Nd .

1982

Commissariat à l'Energie Atomique - France

82 p.

PLAN

- I - INTRODUCTION -

- II - GENERALITES -
 - II.1. - Principe de la méthode utilisée -
 - II.2. - Calcul du rendement de fission ρ_1 d'un produit de fission i -
 - II.2.1. - Cas d'un flux constant -
 - II.2.2. - Cas d'une irradiation séquentielle à flux constant -
 - II.2.3. - Cas d'une irradiation séquentielle à flux variable -
 - II.2.4. - Cas d'une filiation -

- III - DETERMINATION DU NOMBRE DE FISSION -
 - III.1. - Description des chambres à fission -
 - III.2. - Efficacité des chambres à fission -
 - III.3. - Dispositif expérimental -
 - III.4. - Spectre d'impulsions -
 - III.5. - Erreurs sur le nombre de fissions -

- IV - FABRICATION DES CIBLES ET DES DEPOTS MINCES - MESURE DES MASSES -
 - IV.1. - Matériaux fissiles -
 - IV.2. - Fabrication -
 - IV.2.1. - Dépôts minces -
 - IV.2.2. - Cibles épaisses -
 - IV.3. - Mesures des masses -
 - IV.3.1. - Dépôts des chambres à fission -
 - IV.3.2. - Cibles épaisses -
 - IV.3.3. - Erreurs sur le rapport des masses -

V - MESURE DU NOMBRE D'ATOMES -

V.1. - Formulation de Nm -

V.2. - Chaîne de spectrométrie -

V.2.1. - Détecteurs -

V.2.2. - Electronique associée -

V.3. - Efficacité des détecteurs -

V.3.1. - Etalons -

V.3.2. - Géométrie de détection -

V.3.3. - Erreurs -

V.4. - Exploitation des spectres -

V.4.1. - Méthode de mesure -

V.4.2. - Surface des pics -

V.4.2.1. - Traitement des surfaces -

V.4.2.2. - Erreurs sur les surfaces -

VI - IRRADIATIONS : GENERATEURS DE NEUTRONS ET CONDITIONS EXPERIMENTALES -

VI.1. - Neutrons thermiques -

VI.2. - Spectre de neutrons de fission -

VI.2.1. - Générateur de neutrons -

VI.2.2. - Conditions expérimentales -

VI.3. - Spectre de neutrons de 14,7 MeV -

VI.3.1. - Générateur de neutrons -

VI.3.2. - Conditions expérimentales -

VII - RENDEMENTS DE FISSION : RESULTATS -

VII.1. - Rendements de fission : erreur -

VII.1.1. - Détermination de la valeur finale -

VII.1.2. - Erreur sur ρ_j -

VII.2. - Résultats -

VII.2.1. - Neutrons de fission -

VII.2.1.1. - ^{233}U -

VII.2.1.2. - ^{235}U -

VII.2.1.3. - ^{239}Pu -

VII.2.2. - Neutrons de 14 MeV -

VII.2.2.1. - ^{233}U -

VII.2.2.2. - ^{235}U -

VII.2.2.3. - ^{238}U -

VII.2.2.4. - ^{239}Pu -

VIII - CONCLUSION -

I - INTRODUCTION -

Les données sur les rendements de fission des différents matériaux fissiles constituent un ensemble d'informations de base nécessaires à la recherche et à l'industrie nucléaire : calcul d'énergies de fission, de taux de combustion, de flux de neutrons, de sûreté, etc... Il existe un grand nombre de publications concernant ces données dont quelques compilations très complètes (1 à 9). Si pour les neutrons thermiques les études ont été nombreuses et les résultats des divers expérimentateurs sont en bon accord, pour les neutrons de fission et les neutrons de 14 Mev les études sont plus rares et les erreurs sur les valeurs publiées sont généralement plus élevées.

Les méthodes les plus fréquemment utilisées pour la détermination des rendements de fission sont :

- le dosage par spectrométrie de masse des éléments stables issus des filiations successives des produits de fission, méthode très précise utilisant la technique de la dilution isotopique (10 à 13).

- la méthode des "énergies coïncidentes" qui est une mesure corrélée de l'énergie cinétique des deux fragments de fission. Cette méthode, peu précise, permet d'obtenir en une seule expérience la distribution en masse de tous les produits de fission (14 à 19).

- la méthode radiochimique qui consiste à mesurer, d'une part le nombre total des fissions produites au cours d'une irradiation et, d'autre part le nombre d'atomes d'un radionucléide de chaque chaîne de fission (20 à 26).

Cette dernière méthode a été retenue pour ce travail. Le nombre de fissions est mesuré au moyen d'une chambre à fission. La détermination des masses des différentes cibles de matériau fissile a été effectuée par spectrométrie de masse et par spectrométrie alpha. L'activité des produits de fission est obtenue par spectrométrie gamma.

Les études ont porté sur les isotopes fissiles ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu irradiés par des neutrons de fission et par des neutrons d'énergie égale à 14,7 Mev. Les produits de fission mesurés sont ceux pour lesquels le rendement de fission est supérieur à $2 \cdot 10^{-2}$ et qui sont mesurables en spectrométrie gamma directement sur la cible ; toutefois, dans le cas des nucléides ^{144}Ce , ^{155}Eu et ^{156}Eu des isoléments chimiques ont été nécessaires.

Ce document présente la synthèse de précédents rapports internes cités en référence (27 - 28 - 29).

II - GENERALITES -

II.1. - Principe de la méthode utilisée -

Le rendement de fission ρ_i d'un nucléide i produit de fission, est donné par le rapport du nombre d'atomes N_i formés du nucléide i au nombre total de fissions produites au cours d'une irradiation :

$$\rho_i = \frac{N_i}{\phi \sigma_F}$$

Une chambre à fission, dans laquelle un dépôt de matière fissile (environ $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) recouvre une des électrodes, permet de mesurer le nombre total de fissions induites dans le dépôt fissile au cours de l'irradiation. Le nombre d'atomes N_i du nucléide i est obtenu par une mesure d'activité gamma du dépôt de matière fissile. Cette dernière mesure, pour être précise, nécessite une activité correspondant à environ 10^{11} fissions, activité très supérieure à celle qu'il est possible d'obtenir avec le dépôt de la chambre à fission. En effet, la masse de matière fissile nécessaire pour obtenir une telle activité, compte tenu des sections efficaces de réaction et des débits de fluence de neutrons disponibles, conduirait à une épaisseur de dépôt supérieure au parcours des fragments de fission. De plus le taux de comptage de la chambre doit être limité à quelques milliers d'impulsions. Pour pallier cet inconvénient nous associons à la chambre à fission une cible du même matériau fissile mais de masse beaucoup plus grande (supérieure à $1 \text{mg}/\text{cm}^2$) sur laquelle sont effectuées les mesures d'activités.

Cette cible a la même géométrie que le dépôt intérieur de la chambre. Elle est accolée à celle-ci et irradiée en même temps. Le flux de neutrons reçu est donc aussi voisin que possible pour le dépôt et la cible. Un recalage des fluences neutroniques vues par la chambre et par le dépôt est cependant nécessaire. Il est réalisé à l'aide de cibles métalliques activables telles que Au, Fe, Ti judicieusement placées.

L'utilisation de deux dépôts de masses différentes entraîne une difficulté supplémentaire : la mesure du nombre de fission dans la cible épaisse n'est plus directe. Pour la réaliser il est nécessaire de connaître avec précision le rapport des deux masses fissiles de la cible et de la chambre à fission. Le nombre de fissions N_f induites par unité de temps dans la cible est alors obtenu par la relation suivante :

$$N_f = n_f \frac{M}{m} r$$

où n_f est le nombre de fissions compté par seconde dans la chambre.

m la masse du dépôt intérieur

M la masse de la cible extérieure

et r le coefficient de recalage entre les fluences neutroniques reçues respectivement par les deux dépôts.

II.2. - Calcul du rendement de fission ρ_i d'un produit de fission i -

Le but de ce paragraphe est de montrer de façon simple la démarche qui permet de remonter à partir du cas trivial d'un flux constant au cas plus compliqué d'un flux variable et d'un produit de fission mesuré en filiation, la variation du flux étant enregistrée d'une façon discrète (paragraphe III.3). Le calcul général d'un flux variable continu est exposé dans la référence (30).

II.2.1. - Cas d'un flux constant -

Pendant un intervalle de temps d'irradiation $d\theta$, la variation du nombre d'atomes N_i du nucléide i s'écrit :

$$\frac{dN_i}{d\theta} = \rho_i N_f - \lambda_i N_i$$

où N_f est le nombre de fissions par unité de temps et λ_i est la constante de décroissance du nucléide i.

L'intégration de cette équation pour une irradiation de durée θ et pour un débit de fluence constant pendant cet intervalle de temps θ donne :

$$N_i = \rho_i N_f \frac{1 - e^{-\lambda_i \theta}}{\lambda_i}$$

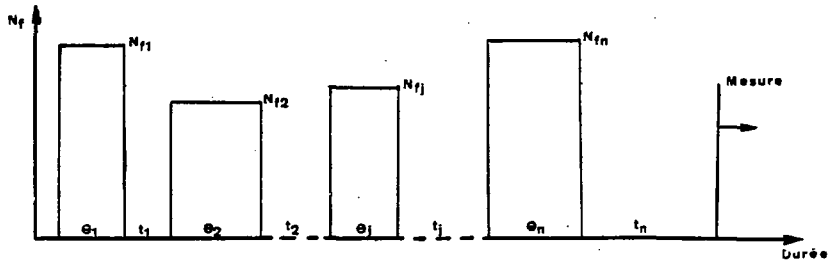
où N_i est le nombre d'atomes restant à la fin de l'irradiation.

Dans le cas où une chambre à fission est utilisée pour le comptage des fissions on a :

$$\rho_i = N_i \frac{\lambda_i}{1 - e^{-\lambda_i \theta}} \frac{m}{M} \frac{1}{n_f} \frac{1}{r}$$

II.2.2. - Cas d'une irradiation séquentielle à flux constant pour chaque séquence -

Dans ce cas l'intervalle de temps θ correspond à la durée d'une séquence et l'irradiation peut être schématisée par la graphique ci-dessous.

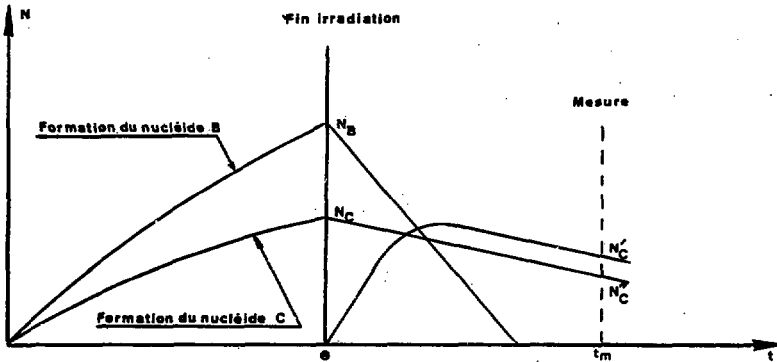


Le nombre d'atomes N_{mi} présents au moment de la mesure s'écrit

alors :

$$N_{mi} = \rho_i \sum_{j=1}^n N_{fj} \frac{1 - e^{-\lambda_i \theta_j}}{\lambda_i} e^{-\lambda_i \left\{ \sum_{k=j+1}^n \theta_k + \sum_{k=j}^n t_k \right\}}$$

N_{fj} étant le nombre de fissions produites par unité de temps pendant la séquence j .



N_B et N_C sont respectivement les nombres d'atomes des nucléides B et C à la fin d'un temps d'irradiation θ .

Après la fin de l'irradiation, le nombre d'atomes présents à l'instant t_m , début de la mesure de l'activité, est :

$$N_m = N'_C + N''_C$$

où N'_C et N''_C représentent respectivement les contributions de B et C à l'instant de la mesure.

$$N''_C = N_C e^{-\lambda_C t}$$

$$\text{et } N'_C = N_B \frac{\lambda_B}{\lambda_C - \lambda_B} (e^{-\lambda_B t} - e^{-\lambda_C t})$$

La variation du nombre d'atomes dN_C pendant un intervalle de temps $d\theta$ en cours d'irradiation s'écrit :

$$\frac{dN_C}{d\theta} = \lambda_B N_B - \lambda_C N_C$$

$$\text{or } N_B = \frac{N_f}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B \theta})$$

$$d'où \frac{dN_C}{dt} = \rho N_f (1 - e^{-\lambda_B \theta}) - \lambda_C N_C$$

$$\text{et } N_C = \frac{\rho N_f}{\lambda_C} \left[(1 - e^{-\lambda_C \theta}) + \frac{\lambda_C}{\lambda_B - \lambda_C} (e^{-\lambda_B \theta} - e^{-\lambda_C \theta}) \right]$$

Dans le cas d'une irradiation séquentielle à flux variable l'expression ci-dessus devient pour chaque chaîne i :

$$N_{mCi} = \sum_{j=1}^n N_{Bij} \frac{\lambda_{Bj}}{\lambda_{Ci} - \lambda_{Bj}} (e^{-\lambda_{Bj} \Theta} - e^{-\lambda_{Ci} \Theta}) + N_{Cij} e^{-\lambda_{Ci} \Theta}$$

$$\text{avec } \Theta = \sum_{k=j+1}^n \theta_k + \sum_{k=j}^n t_k$$

et

$$N_{mCi} = \rho_i \sum_{j=1}^n N_{fj} \left[(1 - e^{-\lambda_{Bj} \theta_j}) + \frac{e^{-\lambda_{Bj} \Theta} - e^{-\lambda_{Ci} \Theta}}{\lambda_{Ci} - \lambda_{Bj}} + \left(\frac{1 - e^{-\lambda_{Ci} \theta_j}}{\lambda_{Ci}} + \frac{e^{-\lambda_{Bj} \theta_j} - e^{-\lambda_{Ci} \theta_j}}{\lambda_{Bj} - \lambda_{Ci}} \right) e^{-\lambda_{Ci} \Theta} \right]$$

III - DETERMINATION DU NOMBRE DE FISSIONS -

III.1. - Description des chambres à fission -

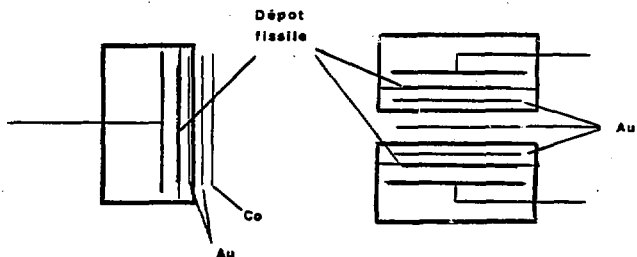
Les chambres à fission ont été réalisées pour la majeure partie au Département de Physique des Réacteurs du C.E.N. SACLAY et pour le reste au D.R.E./SEN du C.E.N. de CADARACHE (31). Les parties métalliques sont en titane ou en zircaloy, métaux choisis pour leur faible absorption des neutrons. Les isolants sont des céramiques : stéatite, alumine frittée. Les chambres sont remplies d'argon à une pression de 12 bars. Le diamètre extérieur est égal à 12 ou 20 mm. La matière fissile, dont la masse par unité de surface est égale à quelques $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, est déposée sur des feuilles minces de titane ou de zircaloy, ces dernières étant appliquées au fond de la chambre. Le diamètre des dépôts est égal à 8 ou 14 mm selon le type de chambre. L'anode plane est à 0,5 mm du dépôt. La tension de polarisation est comprise entre + 200 et + 300 volts. Deux modèles de chambre (figure 1) ont été fabriqués, l'un avec sortie coaxiale, l'autre avec sortie radiale ; le premier type a été le plus utilisé.

III.2. - Efficacité des chambres à fission -

L'épaisseur du dépôt fissile étant inférieure à $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, l'absorption des fragments de fission dans ce dépôt est négligeable. En effet, x étant l'épaisseur du dépôt et R le parcours moyen des fragments de fission dans le matériau considéré, l'absorption est donnée par la relation $x/2R$. Le parcours étant de $7,5 \text{ mg}/\text{cm}^2$ dans l'oxyde d'Uranium U_3O_8 (forme chimique des dépôts) la correction d'absorption obtenue est de 0,07 % pour $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Dans le cas de l'oxyde de plutonium cette correction est de 0,066 % pour $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. L'efficacité des chambres à fission utilisées a donc été prise égale à 1. Cette valeur de rendement est confirmée par une étude faite par GRUNGL sur la mesure absolue des taux de fission au moyen de chambres à fission (32). Nous l'avons vérifié par deux méthodes différentes :

- Si le dépôt fissile est mince et homogène les particules alpha émises peuvent être discriminées du bruit de fond de la chambre et comptées. Une comparaison des activités mesurées de cette façon et par spectrométrie alpha avant montage des dépôts dans les chambres permet de qualifier son bon fonctionnement.

- Trois chambres à fission ont été montées suivant les schémas ci-dessous avec une feuille d'or très mince de masse connue intercalée entre le fond de la chambre et le support du matériau fissile.



Ces dispositifs ont été irradiés dans un flux de neutrons thermiques. La fluence reçue par les feuilles d'or et de cobalt a été déterminée en mesurant leur activité et en utilisant les sections efficaces de capture pour ces deux nucléides. La valeur ainsi obtenue est comparée à celle déterminée par un calcul identique fait à partir des mesures du nombre de fissions compté durant l'irradiation par la chambre à fission.

Les formules utilisées sont :

- pour la chambre à fission :

$$\Phi = N_f \frac{1}{\sigma} \frac{A}{m \cdot 6,023 \cdot 10^{23}}$$

où m est la masse du dépôt fissile
 σ la section efficace de fission
 A la masse atomique.

- pour les cibles métalliques :

$$\phi = S \frac{1}{\sigma} \frac{A}{p \cdot 6,023 \cdot 10^{23} \cdot x} \cdot \frac{e^{-\lambda t}}{1 - e^{-\lambda \theta}}$$

- où S est l'activité mesurée
 σ la section efficace de capture
 p la masse de la cible
 x le pourcentage isotopique
 θ la durée de l'irradiation
 t le temps écoulé entre la fin de l'irradiation et la mesure
 λ la constante de décroissance du nucléide formé.

Dans le tableau ci-dessous nous présentons des résultats obtenus pour le plutonium 239 et l'uranium 235. Les débits de fluence obtenus à partir de l'or, du cobalt et de la chambre à fission sont en très bon accord.

	²³⁹ Pu			²³⁵ U				
	Chambre à fission	Au ₁	Au ₂	Au ₃	Chambre à fission	Au ₁	Au ₂	Co
σ barns	742	98,8	98,8	98,8	582	98,8	98,8	37
$\phi \times 10^8$	8,54 ± 0,20	8,42 ± 0,30	8,57 ± 0,30	8,30 ± 0,3	11,3 ± 0,4	11,2 ± 0,4	11,2 ± 0,4	11,3 ± 0,6

Il faut noter que cette méthode de détermination de fluence fait intervenir plusieurs constantes nucléaires dont la valeur est bien connue pour les neutrons thermiques.

Nous avons également effectué des mesures relatives de nombre de fission sur plusieurs chambres de ²³⁹Pu et ²³⁵U qui ont été soumises à la même fluence intégrée de neutrons thermiques. Les nombres de fissions par

seconde et par unité de masse de matière fissile étaient en très bon accord. Les résultats obtenus pour l'uranium 235 sont présentés dans le tableau ci-dessous :

Numéro de chambre	1 421	1 422	1 423	1 426
$N_p/\mu\text{g.s}$	163	164	162	162

III.3. - Dispositif expérimental -

Le schéma de montage électronique de l'ensemble de comptage est présenté sur la figure 2.

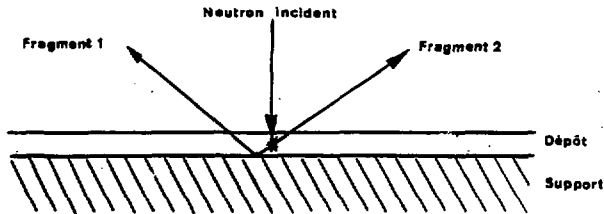
Les impulsions provenant de la chambre à fission sont, d'une part analysées et mises en mémoire dans un analyseur multicanaux, et d'autre part accumulées pendant un temps Δt dans deux échelles fonctionnant en alterné, imprimées et enregistrées sur une bande perforée à l'aide d'un télécype. L'intégrale du nombre de fissions et la variation en fonction du temps du débit de fluence durant l'irradiation sont ainsi obtenues. Un discriminateur permet d'éliminer les impulsions dues au bruit de fond et aux particules alpha.

III.4. - Spectre d'impulsions -

Sur la figure 3 sont présentés deux spectres d'impulsions fournies d'une part par une chambre de plutonium 239 soumise à un flux de neutrons de fission, et d'autre part par une chambre d'uranium 235 soumise à un flux de neutrons d'énergie voisine de 14,7 Mev. Dans ce dernier cas la discrimination des impulsions autres que celles dues aux fragments de fission est plus délicate, le bruit de fond étant plus important avec le générateur de neutrons de 14 Mev.

Une correction du nombre de fissions due au seuil est nécessaire car les impulsions des fragments de fission d'énergies inférieures à ce seuil ne sont pas prises en compte. Cette correction est obtenue en extrapolant jusqu'à l'origine du spectre la vallée située entre les fragments de fission et le bruit de fond (figure 3). Elle a toujours été inférieure à 1 %.

Sur le spectre d'impulsions apparaît le phénomène de la rétrodiffusion des fragments de fission. Quand un fragment est rétrodiffusé sur le support en aluminium il traverse à nouveau le dépôt mince de matière fissile et est détecté en même temps que le fragment complémentaire.



L'amplitude de l'impulsion recueillie est la somme de celles dues aux deux fragments de fission, une seule impulsion est alors enregistrée. Ceci n'est vrai que dans le cas de dépôts minces tels que ceux que nous utilisons (33-34-35).

III.5. - Erreurs sur le nombre de fissions -

Afin de déterminer l'influence du nombre d'impulsions parasites (particules alpha, rayons gamma) sur le spectre des fragments de fission, nous avons créé et fait varier un bruit de fond artificiel à l'aide d'un générateur d'impulsions aléatoires tout en restant dans les limites des conditions expérimentales. Le spectre n'a pas subi de perturbations et le taux de comptage est resté identique. Ce dernier étant peu élevé (10^3 à $2 \cdot 10^3$ fissions/s) la correction due au temps mort de la chaîne électronique est faible et inférieure à 1 %.

Les contributions à l'erreur sur le nombre de fissions dues à la correction de temps mort et à celle apportées par le seuil sont très faibles. Dans ces conditions, l'erreur totale sur le nombre de fissions est évaluée à 0,5 %.

IV - FABRICATION DES CIBLES ET DES DÉPÔTS MINCES - MESURE DES MASSES -

IV.1. - Matériaux fissiles -

La forme chimique des dépôts est de l'oxyde d'uranium U_3O_8 et de l'oxyde de plutonium PuO_2 . Pour chaque élément une analyse isotopique a été effectuée par spectrométrie de masse. L'uranium 235, très pur, avait un enrichissement supérieur à 99,9 %. Dans le cas du plutonium, une séparation préalable de l'américium 241 a été effectuée. L'analyse isotopique de l'uranium 233 a révélé une faible teneur en uranium 232 suffisante pour apporter dans le spectre gamma de nombreuses raies dues aux descendants de périodes très courtes du ^{232}Th (^{212}Bi , ^{212}Pb , ^{208}Tl ...). Le thorium est séparé de l'uranium avant la fabrication des dépôts.

La composition isotopique des différents matériaux fissiles utilisés est donnée dans le tableau ci-dessous :

^{239}Pu	$^{240}Pu / ^{239}Pu$	$^{241}Pu / ^{239}Pu$	
	$1,71 \cdot 10^{-2}$	$3,7 \cdot 10^{-4}$	
^{233}U	$^{234}U / ^{233}U$	$^{236}U / ^{233}U$	$^{232}U / ^{233}U$
	$4,2 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{-6}$
^{235}U	$^{234}U / ^{235}U$	$^{236}U / ^{235}U$	
	$7 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-6}$	
^{238}U	$^{234}U / ^{238}U$	$^{235}U / ^{238}U$	$^{236}U / ^{238}U$
	$9 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$	$5,4 \cdot 10^{-6}$

.. / ..

IV.2. - Fabrication -

IV.2.1. - Dépôts minces -

Les dépôts minces montés dans les chambres à fission ont été fabriqués par électro-déposition ; cette technique permet d'obtenir une bonne adhérence sur le support (titane ou zircaloy).

IV.2.2. - Cibles épaisses -

La technique d'électro-déposition s'étant révélée inapplicable (masses déposées trop faibles), les cibles servant à la mesure des activités des produits de fission ont été réalisées par la méthode d'électrophorèse qui donne des dépôts très homogènes (36). Le support du matériau fissile est un disque d'aluminium de 0,1 mm d'épaisseur. Le conditionnement est tel que les mesures de spectrométrie gamma puissent se faire dans de bonnes conditions. Les dépôts sont recouverts par une feuille d'aluminium de même épaisseur et l'ensemble est tenu par deux rondelles en plexiglass collées. Afin de réduire les corrections à effectuer, leur diamètre est identique à celui des dépôts des chambres à fission et leur masse est telle que l'activité gamma des produits de fission créés durant une irradiation soit suffisante, tout en évitant que l'épaisseur du dépôt n'entraîne une trop grande auto-absorption des raies gamma. Deux types d'assemblage sont montrés sur la figure 4.

L'aluminium a été choisi comme support pour deux raisons :

- Il peut être mis facilement en solution pour effectuer la mesure de la masse du matériau fissile et les isollements chimiques de certains éléments.

- La principale réaction neutronique induite sur cet élément est la réaction $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$. Le produit d'activation obtenu, ^{24}Na , a une période radioactive relativement courte par rapport à celle de la plupart des produits de fission mesurés et ainsi ne perturbe que les premières mesures. Il faut

également noter qu'avec un spectre de neutrons de fission l'activation résultante est très faible, le seuil de la réaction se situant vers 6 Mev.

Afin d'éviter des corrections supplémentaires le même matériau fissile est utilisé pour la fabrication des dépôts des chambres et des cibles.

IV.3. - Mesures des masses -

IV.3.1. - Dépôts des chambres à fission -

La masse des dépôts est déduite d'une mesure alpha faite avant leur montage dans la chambre. Les fortes activités (^{239}Pu et ^{233}U) sont mesurées à l'aide d'un détecteur Si ; une chambre à grille est utilisée pour la mesure des faibles activités (^{235}U , ^{238}U).

Lors de chaque fabrication de chambres, un dépôt supplémentaire a été réalisé. Après les mesures alpha, il est mis en solution et sa mesure par spectrométrie de masse a permis de confirmer la masse des dépôts montés dans les chambres à fission.

Après plusieurs irradiations, certaines chambres ont été démontées et leur dépôt a été récupéré. Les nouvelles mesures faites par spectrométrie alpha ou de masse ont confirmé et précisé les premières valeurs. Dans le tableau ci-dessous sont présentés les résultats relatifs à des chambres à fission d'uranium 235, d'uranium 238 et de plutonium 239.

Elément	n° chambre	Mesure α avant montage	Mesure α après montage	Mesure spectro de masse
^{235}U	1 577	$2,23 \pm 0,06 \mu\text{g}$	$2,24 \pm 0,06 \mu\text{g}$	$2,26 \pm 0,02 \mu\text{g}$
^{238}U	1 837	$37,4 \pm 1,0 \mu\text{g}$	-	$37,6 \pm 0,5 \mu\text{g}$
^{239}Pu	1 418	$5,38 \pm 0,10 \mu\text{g}$	$5,47 \pm 0,10 \mu\text{g}$	$5,49 \pm 0,03 \mu\text{g}$

IV.3.2. - Cibles épaisses -

L'épaisseur des cibles est de l'ordre de quelques mg/cm^2 ; la mesure absolue de l'activité par comptage alpha n'est pas possible. Le dosage par spectrométrie de masse reste alors la seule méthode précise pour la détermination de la masse de celle-ci.

Lorsque les matériaux fissiles sont émetteurs gamma (^{233}U , ^{235}U , ^{238}Pu), des mesures relatives gamma sont effectuées sur les cibles. L'une d'elles est ensuite mise en solution et sa masse est déterminée par spectrométrie de masse. Une première valeur de la masse des autres cibles est déduite de cette dernière mesure et des valeurs relatives gamma. Lorsque les mesures des activités des produits de fission sont terminées, les cibles sont mises en solution et une nouvelle valeur de masse est déterminée par spectrométrie de masse. La valeur prise en compte est la moyenne pondérée des deux valeurs mesurées. Dans le tableau ci-dessous nous présentons les résultats obtenus pour une série de trois cibles de plutonium 239.

n° cible	(a)	(b)	(c)
1	1,00		1 732 \pm 12 μg
2	0,968 \pm 0,005	1 676 \pm 22 μg	1 674 \pm 15 μg
3	2,50 \pm 0,01	4 330 \pm 47 μg	4 280 \pm 25 μg

- avec
- a - Mesures relatives gamma des cibles.
 - b - Masses des cibles n° 2 et 3 obtenues à partir de la cible n° 1 par l'intermédiaire des mesures relatives.
 - c - Masses des cibles obtenues par spectrométrie de masse; les cibles 2 et 3 ont été mesurées après irradiation.

L'émission gamma de l'uranium 238 étant très faible, les mesures relatives ont été effectuées par comptage alpha avant conditionnement. Cette dernière mesure n'est applicable qu'à des dépôts ayant des épaisseurs équivalentes (auto-absorption identique). Un exemple pour deux cibles est donné dans le tableau ci-dessous :

Elément	n° cible	Mesures alpha relatives	M spectro de masse
238 _U	5	1,00	3 800 ± 40 µg
	1	1,055	4 038 ± 40 µg

Remarque : Lors des premières expériences avec l'uranium 235, la masse a été mesurée par coulométrie. Les résultats obtenus sont comparés dans le tableau ci-dessous à ceux donnés par la spectrométrie de masse.

Elément	n° cible	Spectro de masse	Coulométrie
235 _U	1	505 ± 3 µg	506 ± 5 µg
	2	3 312 ± 30 µg	3 312 ± 40 µg

IV.3.3. - Erreurs sur le rapport des masses -

L'erreur sur le rapport des masses M/m varie selon le matériau fissile, la chambre à fission et les cibles utilisées pour une irradiation. En tenant compte des différentes mesures et de toutes les irradiations réalisées nous avons obtenu des erreurs comprises entre 1,8 et 2,5 % pour le ²³⁹Pu, entre 2 et 4 % pour l' ²³⁵U et entre 1,9 et 2,5 % pour l' ²³³U. En ce qui concerne l'uranium 238, la mesure en spectrométrie de masse est plus délicate du fait d'un risque de pollution par l'uranium naturel. Pour les deux expériences qui ont été réalisées, l'erreur sur le rapport des masses a été respectivement de 2,3 et 2,5 %.

V - MESURE DU NOMBRE D'ATOMES -

La mesure du nombre d'atomes de chaque produit de fission est faite directement sur la cible par spectrométrie gamma à l'aide de détecteurs Ge-Li, l'activité du radionucléide mesuré étant déduite de la surface du pic photoélectrique. L'isolement chimique est utilisé pour les produits de fission qui ont une faible activité (^{144}Ce , ^{155}Eu , ^{156}Eu) et pour lesquels la mesure sur la cible n'est pas suffisamment précise.

V.1. - Formulation de N_m -

N_m est le nombre d'atomes présents au début de la mesure. A la fin de la mesure de durée δ le nombre d'atomes restant sera $N_m e^{-\lambda\delta}$.

Le nombre d'atomes qui se sont désintégrés pendant le temps δ sera alors égal à :

$$N = N_m (1 - e^{-\lambda\delta})$$

Ce nombre d'atomes mesuré pendant le temps δ est proportionnel au nombre d'impulsions S correspondant au pic photoélectrique et dépend du rapport d'embranchement I de la raie gamma et de l'efficacité ϵ du détecteur.

$$N = \frac{S}{\epsilon I} \cdot C$$

C représente les diverses corrections dues aux effets suivants :

- temps mort de la chaîne de détection
- pics somes éventuels dus à la coïncidence de certaines raies
- corrections de géométrie
- autoabsorption des raies gamma dans la cible
- absorption de ces raies dans la gaine recouvrant le matériau fissile.

Le nombre d'atomes N_{m_1} présents au début de mesure est donné par la relation :

$$N_{m_1} = \frac{S}{\epsilon I} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda \delta}} \cdot C$$

V.2. - Chaîne de spectrométrie -

Les chaînes de mesure utilisées comprennent un détecteur Ge-Li, un tiroir d'amplification et de mise en forme des impulsions, un codeur analogique digital et un système d'acquisition et de traitement.

V.2.1. - Détecteurs -

Les différents détecteurs Ge-Li utilisés au cours de cette étude ont des résolutions en énergie comprises entre 0,6 et 0,9 KeV à 122 KeV et de 1,9 KeV à 1,33 MeV, leur volume est de l'ordre de 1 cm^3 ou de 40 cm^3 . L'étage d'entrée des préamplificateurs est monté dans le cryostat et est refroidi afin de diminuer le bruit électronique.

Pour réduire le bruit de fond ambiant, les détecteurs sont placés dans des enceintes en plomb dont les parois ont une épaisseur de 10 cm.

V.2.2. - Electronique associée -

Les amplificateurs utilisés sont, soit des tiroirs 472 Ortec, soit des tiroirs 7 129 Eneotec. Les constantes de temps de mise en forme des impulsions sont choisies pour obtenir la meilleure résolution en énergie, les taux de comptage étant toujours faibles. Elles varient de 2 à 4 μs selon les détecteurs.

Les codeurs sont des CT 103 fabriqués par la Société Inter-technique et sont reliés à un système Plurimat N 20.

V.3. - Efficacités des détecteurs -

La précision des rendements de fission mesurés dépend directement de la précision des courbes d'efficacité des détecteurs Ge-Li (figure 5). Le plus grand soin a été apporté à la détermination de ces courbes d'efficacité, elles ont été qualifiées au moyen de tests d'intercomparaison avec d'autres laboratoires.

V.3.1. - Étalons -

Les étalons utilisés proviennent du LMRI (C.E.N. SACLAY) et du centre nucléaire d'Amersham (Angleterre), afin d'avoir une meilleure précision et une plus grande sécurité (37). Ces étalons, ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{109}Cd , ^{113}Sn , ^{137}Cs , ^{139}Ce , ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{203}Hg , ^{241}Am , couvrent une gamme d'énergie de 60 KeV à 1 836 KeV. En plus de ces nucléides nous utilisons un étalon multigamme (^{152}Eu) dans la plage d'énergie de 122 KeV à 1 400 KeV (38).

Ces étalons primaires permettent d'obtenir une courbe d'efficacité précise dans la zone pseudo-linéaire au-delà de 150 KeV. Pour mieux définir la partie incurvée en dessous de 150 KeV, nous utilisons également des nucléides multigamme dont les raies ont des énergies comprises entre 60 et 400 KeV et dont les intensités relatives sont bien connues. Les raies situées dans la partie linéaire sont normalisées sur la courbe tracée à partir des étalons primaires, les points de la zone en dessous de 150 KeV sont obtenus à l'aide de cette normalisation et des intensités relatives. Les nucléides utilisés sont $^{188\text{m}}\text{Ho}$, ^{169}Yb , ^{182}Ta , et les valeurs des intensités relatives sont celles déterminées par GERKHE (39).

Les constantes nucléaires des étalons sont présentées dans le tableau I et sont celles préconisées par le LMRI (40).

V.3.2. - Géométrie de détection -

Pour éviter les erreurs de géométrie (distance détecteur-échantillon) nous avons adopté un système de porte échantillons rigide de dimensions fixes adaptable à tous les détecteurs et aux différents supports de sources. Les distances détecteur-échantillon sont égales à 10, 20 ou 50 cm, elles sont choisies pour obtenir des taux de comptage faibles (< 100 coups/s) et pour éviter la création de pics sommes au niveau de la détection dans le cas de radionucléides dont la désintégration conduit à des raies en cascade.

V.3.3. - Erreurs -

La courbe d'efficacité est obtenue par lissage des points expérimentaux au moyen d'un polynôme de la forme $\log \epsilon = \sum_i a_i (\log E_i)^i$ (figure 5). La visualisation de la courbe et des points expérimentaux sur un écran permet de trouver rapidement le degré du polynôme le mieux adapté.

Compte tenu du nombre d'étalons utilisés et de leur précision relative (1 à 4 %), ainsi que de l'adjonction des points en valeurs relatives, l'erreur sur la courbe d'efficacité est évaluée à 1,5 % pour des énergies au-dessus de 150 KeV et à 2 % pour les énergies inférieures.

V.4. - Exploitation des spectres -

V.4.1. - Méthode de mesure -

Grâce à la bonne résolution en énergie des détecteurs la mesure des principaux produits de fission peut être faite directement sur la cible, ce qui évite les erreurs dues à la mise en solution et aux isollements chimiques des produits de fission. Les nucléides mesurés de cette façon sont : ⁹⁵Zr, ⁹⁷Zr, ⁹⁹Mo, ¹⁰³Ru, ¹⁰⁵Rh, ¹²⁷Sb, ¹³¹I, ¹³²Te, ¹³³I, ¹³⁵Xe, ¹³⁶Cs, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴¹Cs, ¹⁴³Cs, ¹⁴⁷Nd.

.. / ..

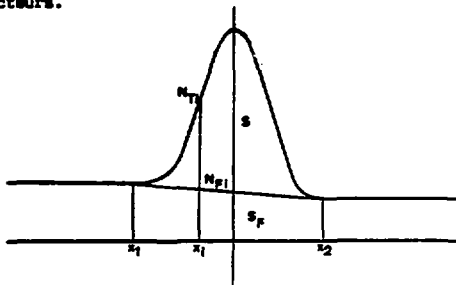
Le nucléide ^{144}Ce a été mesuré après isolement chimique du cérium car son activité n'a pas été suffisante pour une mesure directe : ce nucléide a un rapport d'embranchement relativement faible (11,1 %) et une période de longue (284,5 jours). La valeur du rendement chimique n'intervient pas dans cette mesure où un recalage peut être fait par rapport au ^{141}Ce , les deux isotopes étant mesurés sur le même échantillon.

Les constantes nucléaires adoptées et leur erreur respective sont présentées dans le tableau II. Des spectres de produits de fission sont montrés sur les figures 6 et 7.

V.4.2. - Surface des pics -

V.4.2.1. - Traitements des surfaces -

Les raies les plus intenses sont exploitées pour chaque produit de fission; elles se trouvent pour la plupart d'entre elles isolées dans le spectre des produits de fission. La première mesure est effectuée 24 heures après le fin de l'irradiation pour s'affranchir des nucléides à vie courte. Un programme de traitement simplifié a été utilisé pour la détermination des surfaces : la contribution du fond situé sous le pic est obtenue par la surface d'un trapèze dont les hauteurs sont définies par la moyenne des contenus de plusieurs canaux situés dans une zone stationnaire de part et d'autre des bornes du pic. Le nombre de ces canaux varie en fonction de la configuration du pic analysé. Pour réduire l'erreur d'exploitation la même méthode de détermination de la surface des pics photoélectriques est utilisée pour le traitement des spectres de produits de fission et la détermination des courbes d'efficacité des détecteurs.



L'aire du pic est donné par la relation suivante :

$$S = \frac{x_2}{x_1} (N_{T1} - N_{F1})$$

où N_{T1} est le contenu du canal X_1

et N_{F1} est la valeur du fond au canal X_1 .

Ce programme de traitement permet également la résolution des doublets lorsqu'ils sont bien définis.

Les nucléides fissiles ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu sont émetteurs gamma et viennent de ce fait perturber le spectre des produits de fission. Dans le cas du ^{239}Pu (figure 8), ses raies à 144 KeV et 148 KeV interfèrent avec celle d'énergie 145 KeV du ^{141}Ce et sa raie intense à 129 KeV rend difficile la mesure de la raie à 133 KeV du ^{144}Ce . Les cibles sont mesurées avant irradiation dans les mêmes conditions géométriques que les produits de fission. La contribution du matériau fissile est soustraite des spectres de produits de fission. Cette correction est plus délicate dans le cas de ^{233}U lorsque ^{232}U présent dans la cible n'est pas en équilibre radioactif avec ses descendants.

V.4.2.2. - Erreurs sur les surfaces -

L'erreur statistique déduite de la relation donnant la surface du pic se traduit par :

$$\frac{\Delta S}{S} = 2 \sqrt{\frac{S_F + S_T}{S}}$$

où S_F est la surface du trapèze représentant le fond et S_T est l'intégrale des contenus de la zone x_1 x_2 .

A cette erreur statistique s'ajoute une erreur d'exploitation du pic qui dépend de la configuration du spectre à l'endroit de la raie exploitée. Cette erreur est évaluée par l'opérateur, sa valeur maximale est égale à 2 %.

VI - IRRADIATIONS : GENERATEURS DE NEUTRONS ET CONDITIONS EXPERIMENTALES -

VI.1. - Neutrons thermiques -

Le but de la mesure des rendements de fission avec les neutrons thermiques a été d'étudier les divers problèmes posés et de mettre au point le montage expérimental. Les valeurs des rendements de fission de l'uranium 235 étant bien connues pour les neutrons thermiques, nous avons pu comparer nos résultats avec les nombreuses valeurs publiées.

Les irradiations ont été effectuées dans la colonne thermique de la pile EL3 du C.E.N. de SACLAY, en un point où le débit de fluence était de 10^9 neutrons/cm².s. Etant donnée la section efficace importante de l'uranium 235 pour les neutrons thermiques (582 barns), la masse de matière fissile nécessaire pour obtenir une activité de produits de fission suffisante était inférieure à 100 µg/cm², valeur faible par rapport à celles utilisées pour les neutrons rapides.

Ces cibles ont été fabriquées par électro-déposition et leur masse a pu être déterminée par spectrométrie alpha dans les mêmes conditions géométriques que les dépôts des chambres à fission. Les valeurs du rapport $\frac{M}{m}$ des masses de la cible et du dépôt de la chambre sont obtenues à partir de mesures relatives pour lesquelles seules interviennent les erreurs statistiques. L'erreur sur le rapport M/m est égale à 1,5 % pour l'uranium 235.

Dans cette expérience le taux de comptage de la chambre à fission était de l'ordre de 10^4 fissions/s. La correction sur n_f due au temps mort est de l'ordre de 2 %. Dans ces conditions l'erreur sur n_f a été prise égale à 1 %.

Dans le tableau suivant nous présentons les résultats obtenus ainsi que ceux d'autres auteurs. On remarquera l'excellent accord entre les résultats de nos mesures et les valeurs publiées dans la littérature. Cette concordance des résultats a permis de qualifier notre démarche expérimentale.

$\rho \cdot 10^{-2}$ Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta \rho}{\rho} \%$	RIDER	CROUCH	WALKER	LAMMER and EDER	NETHAWAY
⁹⁵ Zr	6,48	3,6	6,51	6,50	6,53	6,54	6,50
⁹⁷ Zr	5,90	3,9	5,91	6,00	6,07	6,00	5,86
⁹⁹ Mo	6,14	3,5	6,09	6,13	6,14	6,11	6,15
¹⁰³ Ru	3,03	3,7	3,04	3,09	3,05	2,95	3,00
¹⁰⁵ Rh	0,93	5,0	0,97	0,98	0,95	0,90	0,947
¹³¹ I	2,84	3,8	2,90	2,78	2,80	2,82	2,87
¹³² Te	4,23	3,5	4,30	4,28	4,17	4,20	4,29
¹⁴⁰ Ba	6,27	3,7	6,21	6,30	6,36	6,37	6,31
¹⁴¹ Ce	5,90	3,5	5,76	5,78	5,87	5,85	5,70
¹⁴³ Ce	5,92	3,7	5,96	5,93	5,95	5,92	5,85
¹⁴⁷ Nd	2,26	3,7	2,24	2,30	2,26	2,22	2,23

* Les erreurs dues aux constantes nucléaires ne sont pas incluses dans l'erreur finale.

VI.2. - Spectre de neutrons de fission -

VI.2.1. - Générateur de neutrons -

Les irradiations du plutonium 239 et de l'uranium 235 ont été effectuées auprès des assemblages critiques PROSPERO et CALIBAN de la Section d'Etudes Critiques du C.E. de VALDUC (41). Les spectres dits "appropriés" de neutrons de ces générateurs sont donnés dans la figure 8.

Les montages cible-chambre à fission ont été placés à différents endroits, soit dans la cavité, soit à l'extérieur, afin d'étudier une éventuelle influence des différents spectres de neutrons sur les rendements de

fission. Les débits de fluence des neutrons étaient de 10^{11} neutrons/cm².s dans la cavité et de 10^{10} neutrons/cm².s à l'extérieur des blocs fissiles des réacteurs.

Au cours de cette étude, le réacteur Prospéro a été modifié. Le nouveau cœur est constitué par de l'uranium 235 associé à un réflecteur en uranium appauvri. Les échantillons à irradier sont disposés sur un panier grillagé reposant sur le réflecteur. A la puissance nominale et dans la zone d'irradiation, c'est-à-dire près du panier contre le réflecteur, le débit de fluence est de l'ordre de $7 \cdot 10^{10}$ neutrons/cm².s. Le spectre des neutrons de ce nouvel assemblage est légèrement plus mou que celui du précédent (figure 8). De nouvelles irradiations de ²³⁹Pu et ²³⁵U ont été effectuées à l'aide de ce réacteur, ainsi que toutes les irradiations de ²³³U.

VI.2.2. - Conditions expérimentales -

Pour toutes les irradiations le même montage a été employé pour le couplage de la cible et de la chambre à fission (figure 4). Des cibles métalliques activables telles que Au, Fe ou In sont placées dans le montage pour effectuer le recalage du flux. Celui-ci était nul dans la cavité et était de l'ordre de quelques pourcents à l'extérieur de l'assemblage.

Afin d'éliminer la contribution des neutrons thermiques lors des irradiations à l'extérieur du réacteur, l'ensemble cible-chambre à fission a été entouré par une gaine de cadmium d'épaisseur égale à 0,8 mm. L'efficacité de cette protection, la transmission pour les neutrons thermiques étant égale à $5 \cdot 10^{-4}$, a été vérifiée expérimentalement.

Les durées d'irradiation ont été de l'ordre de vingt heures réparties en trois jours. Le débit de fluence était constant pendant toute la durée de l'irradiation. Le nombre de fissions obtenu sur les cibles variait de 10^{10} à 10^{11} fissions selon les masses de dépôts, la durée de l'irradiation et le flux à l'endroit de la mesure. Le taux de comptage des chambres se situait autour de 1 000 coups/s. Dans ces conditions à la fin de l'irradiation l'activité du ⁹⁹Tc était d'environ 10^4 Bq et celle du ⁹⁵Zr de $4 \cdot 10^2$ Bq.

VI.3. - Spectre de neutrons de 14,7 MeV -

VI.3.1. - Générateur de neutrons -

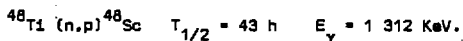
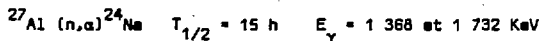
Les irradiations ont été effectuées à l'aide de l'accélérateur électrostatique LANCELOT de la Section d'Etudes Critiques du C.E. de VALDUC (42). Les neutrons sont produits par l'intermédiaire de la réaction $T(d,n)^4He$ en bombardant une cible tritiée à l'aide d'un faisceau de deutérons accélérés par une tension de 160 KV. Une cible tournante refroidie par de l'eau dissipe l'énergie du faisceau. Un schéma simplifié du générateur LANCELOT est montré sur la figure 10.

A 2 cm dans l'axe de la cible le débit de fluence est de l'ordre de $5 \cdot 10^{10}$ neutrons/cm².s. La détermination des caractéristiques de l'émission neutronique et du spectre de neutrons émis est exposée dans la référence (43). L'usure des cibles de tritium est relativement rapide, le débit de fluence diminue d'un facteur 2 toutes les 4 heures, sa décroissance est pratiquement exponentielle.

VI.3.2. - Conditions expérimentales -

Les montages cible-chambre à fission étaient placés à environ 2 cm du capot de la cible de tritium dans l'axe du faisceau. La distribution en énergie des neutrons émis est presque symétrique autour de sa valeur moyenne égale à 14,65 MeV, sa largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 300 KeV (figure 10). Cette distribution en énergie des neutrons émis a été déterminée expérimentalement (42) et par le calcul (40). Afin d'obtenir un nombre de fissions suffisant pour la mesure des activités, trois cibles de tritium ont été utilisées. Les irrégularités dans la courbe donnant la variation du débit de fluence des neutrons sont dues aux arrêts du générateur provoqués par des claquages (figure 11).

A l'endroit où étaient placés les ensembles cible-chambre à fission, la variation du débit de fluence des neutrons en fonction de la distance montage-générateur est importante : à un déplacement de 1 mm correspond une variation d'environ 10 %. Le recalage du flux entre la cible de matière fissile et le dépôt de la chambre à fission a été effectué à l'aide de cibles métalliques activables judicieusement positionnées dans le montage. Les réactions (n, α) et (n,p) sur l'aluminium et le titane ont été utilisées :



Le schéma d'un montage caractéristique est montré dans la figure 4. Les valeurs de corrections de flux obtenues pour les différentes irradiations sont comprises entre 1,11 et 1,15. L'erreur attribuée à cette correction a été de 0,5 % à 1,5 %. La variation lors d'une expérience du débit de fluence en fonction de la distance au niveau de l'ensemble cible-chambre à fission est présentée sur la figure 12.

VII - RENDEMENTS DE FISSION : RESULTATS -

VII.1. - Rendements de fission : erreur -

VII.1.1. - Détermination de la valeur finale -

Les rendements de fission relatifs à un matériau fissile et à un spectre de neutrons sont déterminés à partir de plusieurs expériences. Leur valeur ρ_i pour un produit de fission i est la moyenne pondérée des différents résultats ρ_{ij} obtenus au cours de chaque expérience j ; elle est donnée par la relation suivante :

$$\rho_i = \frac{\sum_j \rho_{ij} p_{ij}}{\sum_j p_{ij}}$$

Le facteur de pondération p_{ij} est relié à la valeur A_{ij} de la partie non systématique de l'erreur sur le rendement ρ_{ij} (paragraphe VII.1.2.) par la relation :

$$p_{ij} = \frac{1}{A_{ij}^2}$$

VII.1.2. - Erreur sur ρ_i -

Pour chaque expérience le rendement de fission ρ_{ij} est affecté d'une erreur dont les différents constituants sont détaillés dans le tableau ci-dessous :

.. / ..

		Erreurs non systématiques	Erreurs systématiques communes à toutes les expériences
- Erreur sur la surface du pic photoélectrique	a_{ij}	0,3 à 6 %	
- Erreur sur les courbes d'efficacité des détecteurs	b		1,5 %
- Erreur sur le rapport des masses N/m	$c_j + d$	1 à 2 %	0,8 %
- Erreur sur la mesure du nombre de fissions nf	e_j	0,5 %	
- Erreur sur le recalage de flux	f_j	0 à 1,5 %	

- L'indice i représente un produit de fission et l'indice j une expérience.

* Les a_{ij} sont le résultat de la moyenne pondérée de plusieurs mesures d'activité faites sur un produit de fission pour une même expérience.

Pour une expérience donnée j, l'erreur sur le rendement de fission ρ_i d'un produit de fission i est :

$$\frac{\Delta \rho_{ij}}{\rho_{ij}} = A_{ij} + B$$

avec $A_{ij} = \sqrt{a_{ij}^2 + c_j^2 + e_j^2 + f_j^2}$

et $B = b + d$

.. / ..

L'erreur finale sur le rendement de fission ρ_i est définie par la relation :

$$\frac{\Delta \rho_i}{\rho_i} = C_i + B$$

où C_i représente la plus grande des deux erreurs interne et externe C'_i et C''_i

$$C'_i = \sqrt{\frac{1}{\sum_j p_{1j}}}$$

et

$$C''_i = \sqrt{\frac{\sum_j p_{1j} (\rho_{1j} - \rho_i)^2}{(n-1) \sum_j p_{1j}}}$$

Remarque : Les incertitudes données sur les rendements de fission ne tiennent pas compte des erreurs sur les schémas de désintégration.

VII.2. - Résultats -

VII.2.1. - Neutrons de fission -

VII.2.1.1. - ²³³U -

Trois expériences ont été réalisées auprès du nouvel assemblage critique PROSPERO. Deux chambres à fission ont été utilisées dont la masse de dépôt fissile était respectivement égale à $5,10 \pm 0,05 \mu\text{g}$ et $6,40 \pm 0,06 \mu\text{g}$. Les montages chambre à fission - cibles étaient placés à 166 cm de

l'axe du réacteur et la fluence intégrée reçue par les cibles au cours des différentes irradiations a été de l'ordre de $1,6 \cdot 10^{15}$ neutrons. Dans ces conditions expérimentales, le gradient de flux de neutrons induit un facteur de recalage entre le dépôt de la chambre et la cible égal à 4 %.

Les résultats de trois expériences sont cohérents entre eux et les valeurs finales déduites sont présentées dans le tableau III avec celles obtenues par d'autres auteurs expérimentalement ou par compilation.

VII.2.1.2. - ^{235}U -

La mise au point des expériences et des études de fabrication des dépôts fissiles et des cibles a été réalisée sur l' ^{235}U , ce qui nous a amené à effectuer de nombreuses irradiations. Nous avons également étudié les effets sur les rendements de fission des modifications du spectre des neutrons (figure 8) en utilisant les deux assemblages critiques PROSPERO et CALIBAN et en disposant les échantillons à l'intérieur et à l'extérieur de la cavité. Les écarts obtenus sur les résultats ne sont pas significatifs des variations des rendements de fission en fonction des différents spectres de neutrons, compte tenu des erreurs expérimentales. Une illustration en est donnée dans le tableau ci-dessous :

	^{235}U - $\rho_{\text{fission}} \times 10^{-2}$ - Neutrons de fission				
	^{95}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{152}Te	^{140}Ba
Cavité CALIBAN	$6,54 \pm 0,40$	$6,26 \pm 0,30$	$3,28 \pm 0,16$	$4,80 \pm 0,20$	$5,70 \pm 0,32$
Extérieur CALIBAN	$6,60 \pm 0,46$	$6,20 \pm 0,32$	$3,29 \pm 0,17$	$4,72 \pm 0,23$	$5,73 \pm 0,34$
Extérieur PROSPERO	$6,78 \pm 0,50$	$6,28 \pm 0,32$	$3,40 \pm 0,20$	$4,81 \pm 0,24$	$6,02 \pm 0,40$

Cinq chambres à fission ont été utilisées pour ces irradiations. Les dépôts de deux d'entre elles ont été récupérés puis mesurés par spectrométrie alpha et par spectrométrie de masse afin de vérifier la masse du matériau fissile déposé (chapitre IV.3.1.).

Les valeurs des rendements de fission obtenus et leur erreur sont présentées dans le tableau IV. Ces résultats concordent avec les valeurs figurant dans de récentes publications, excepté dans le cas de ^{133}I .

- Etude particulière des nucléides ^{155}Eu et ^{156}Eu -

Une étude particulière a été effectuée sur ^{235}U pour la détermination des rendements de fission des nucléides ^{155}Eu et ^{156}Eu . La faible valeur du rendement de fission de ces nucléides (de l'ordre de 10^{-4}) a exigé des masses plus importantes de matière fissile et des temps d'irradiation plus longs. Une mesure directe de l'activité sur les cibles n'étant pas possible, celles-ci ont été mises en solution et les terres rares cérium, néodyme et europium ont été séparées chimiquement. Le nombre de fissions induites sur la cible a été déduit des mesures de l'activité des ^{141}Ce , ^{143}Ce , ^{144}Ce , ^{147}Nd à l'aide des rendements de fission préalablement déterminés sur ces nucléides.

Afin de mettre en évidence l'éventuelle influence du spectre de neutrons sur les rendements de fission, trois échantillons ont été irradiés auprès du réacteur PROSPERO :

- Un premier conteneur cylindrique en aluminium a été placé dans la cavité du réacteur. Il contenait 400 mg d'oxyde d'uranium.

- Un autre conteneur, entouré d'un gainage de cadmium de 0,8 mm d'épaisseur a été placé à l'extérieur du réacteur. Il contenait 2 grammes d'oxyde d'uranium.

- Le troisième conteneur, identique au second, avait un deuxième gainage en carbure de bore de 1 cm d'épaisseur. Cette protection, équivalente à 0,7 cm de bore, donne une atténuation supplémentaire des neutrons d'un facteur égal à 27 à 10 eV et égal à 2,2 à 100 eV.

Afin de récupérer tous les fragments de fission, une feuille d'aluminium enveloppait l'oxyde d'uranium. Cette feuille est mise en solution avec l'oxyde d'uranium.

La durée d'irradiation a été de $2 \cdot 10^5$ secondes.

Les résultats des trois expériences sont présentés dans le tableau ci-dessous :

Expérience	$\rho \text{ } ^{155}\text{Eu}$	$\frac{\Delta\rho\%}{\rho}$	$\rho \text{ } ^{156}\text{Eu}$	$\frac{\Delta\rho\%}{\rho}$	$\frac{\rho \text{ } ^{155}\text{Eu}}{\rho \text{ } ^{156}\text{Eu}}$
U + Cd (extérieur)	$4,08 \cdot 10^{-4}$	8	$1,56 \cdot 10^{-4}$	8	2,61
U + bore + Cd (extérieur)	$3,81 \cdot 10^{-4}$	8	$1,47 \cdot 10^{-4}$	8	2,59
U (cavité)	$4,09 \cdot 10^{-4}$	7	$1,64 \cdot 10^{-4}$	7	2,49

L'examen de ces résultats appelle deux remarques :

- Les rendements de fission de faibles valeurs sont très sensibles aux variations des formes et des énergies moyennes des spectres de neutrons. G.P. FORD et A.E. NORRIS (7) dans un travail de compilation des rendements de fission mesurés à LOS ALAMOS pour différentes formes et différentes énergies moyennes de spectres de neutrons de fission donnent, pour $1 \text{ } ^{156}\text{Eu}$, des valeurs comprises entre $1,45 \cdot 10^{-4}$ et $2,63 \cdot 10^{-4}$. Les rendements de fission présentés dans le tableau ci-dessus se situent dans les valeurs les plus faibles données par FORD et NORRIS qui correspondent à des spectres de neutrons assez mous comparables à celui de PROSPERO.

- La variation de la composante basse énergie du spectre de neutrons n'apporte pas d'écarts significatifs sur les résultats, la valeur obtenue pour $1 \text{ } ^{156}\text{Eu}$ étant toutefois plus forte dans la cavité.

.. / ..

VII.2.1.3. - ^{239}Pu -

Les expériences sur le ^{239}Pu ont été menées simultanément avec celles sur le ^{235}U . Les conditions expérimentales sont donc identiques avec toutefois quelques difficultés supplémentaires pour le conditionnement des cibles. Les résultats sont présentés dans le tableau V, ainsi que les valeurs provenant d'autres publications. Le grand nombre d'expériences a permis d'obtenir une erreur inférieure à 5 % (erreur sur les rapports d'embranchement non comprises).

- Etude particulière du ^{144}Ce -

L'activité propre du ^{144}Ce formé étant trop faible par rapport à l'activité due au ^{239}Pu et aux autres produits de fission, son rendement n'a pu être déterminé au cours des expériences décrites plus haut. Une étude particulière a donc été effectuée avec des masses de ^{239}Pu plus grandes et des temps d'irradiations plus longs (29).

Deux cibles de 18 et 27 mg d'oxyde de plutonium ont été irradiées auprès du réacteur PROSPERO pendant 10^5 secondes. Le nombre de fissions a été déduit des activités de plusieurs produits de fission facilement mesurables en spectrométrie gamma et dont les rendements de fission avaient été préalablement déterminés. Après les mesures de spectrométrie gamma sur quelques jours, une des cibles a été mise en solution et un isolement chimique du cérium a été effectué (V.4.1.). La seconde cible a été mesurée à intervalles réguliers pendant quelques mois. La valeur de rendement de fission présentée dans le tableau V est la moyenne pondérée de celles obtenues à partir des deux méthodes précitées.

Remarque : Le rendement de fission du ^{106}Ru a également été déterminé au cours de cette étude. Le résultat est présenté dans le tableau V.

VII.2.2. - Neutrons de 14 MeV -

VII.2.2.1. - ²³³U -

Deux expériences ont été réalisées sur le générateur de neutrons LANCELOT. Les chambres à fission sont celles utilisées pour les expériences faites avec les neutrons de fission. Les conditions expérimentales sont définies dans le chapitre VI.3.2. Le traitement des spectres gamma a été plus difficile du fait de la faible activité de la plupart des produits de fission mesurés et de celle importante des descendants du ²³²U présent dans le matériau fissile.

Toutefois les résultats des deux expériences sont en bon accord entre eux. Les valeurs de rendements de fission déduites sont présentées dans le tableau VI avec celles d'autres auteurs. On notera que sur certains isotopes il existe des écarts assez importants entre toutes les valeurs, écarts pouvant s'expliquer par le fait qu'il y a eu peu d'études sur cet élément.

VII.2.2.2. - ²³⁵U -

Quatre irradiations ont été effectuées avec des paramètres différents : cibles, chambres à fission, distance échantillon - cible de tritium.

Les résultats des diverses expériences sont cohérents entre eux. Les valeurs finales sont présentées dans le tableau VII.

VII.2.2.3. - ²³⁸U -

Pour les deux expériences effectuées sur cet élément, deux chambres à fission ont été utilisées.

Les valeurs des rendements de fission obtenues sont présentées dans le tableau VIII et comparées avec celles d'autres auteurs. L'accord est excellent pour la plupart des nucléides mesurés.

VII.2.2.4. - ^{239}Pu -

Les trois expériences effectuées ont donné des résultats concordants. La variation du flux de neutrons au niveau de la chambre à fission mesurée lors d'une des expériences est illustrée par la figure 12.

Les valeurs des rendements de fission sont présentées dans le tableau IX avec les résultats d'autres auteurs. Nos valeurs sont en accord avec celles de NETHAWAY (5) mais par contre diffèrent beaucoup de celles des deux autres, en particulier de celles de CROUCH (8).

VIII - CONCLUSION -

Le but recherché était d'obtenir une précision meilleure que 5 % sur les valeurs des rendements de fission mesurés, l'erreur sur les intensités de transition n'étant pas prise en compte. Cet objectif a été réalisé sur la quasi totalité des chaînes de fission étudiées. Cette étude a permis de confirmer certaines valeurs des rendements de fission telles que celles de ^{235}U et de ^{238}U , elle a surtout permis de préciser les rendements de fission de ^{239}Pu et ^{233}U pour les neutrons de fission et les neutrons de 14 MeV.

La méthode utilisée présente l'avantage de rendre la détermination des taux de fission par des mesures radiochimiques classiques indépendantes des intensités de transition lorsque les mêmes constantes sont utilisées pour ces mesures. Dans le cas d'une utilisation différente de ces rendements il est nécessaire de majorer les erreurs données par les incertitudes sur les intensités des transitions gamma.

Lorsque de nouvelles valeurs d'intensités gamma sont utilisées il est possible de corriger des rendements de fission en se référant aux valeurs de constantes prises en compte dans ce rapport.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier les différents ingénieurs et techniciens du Service Contrôle Qualité du centre de BRUYERES-LE-CHATEL qui ont apporté leur contribution et leur savoir-faire pour la fabrication des cibles (M. BERGEY), pour les mises en solution (Mme GUSHINI) et pour les isolements chimiques (M. METZGER).

Une contribution importante a été apportée par les équipes de spectrométrie alpha (M. AMOUDRY - M. GENDRE) et de spectrométrie de masse (M. CESARIO - Mme POUPARD) grâce auxquelles nous avons pu obtenir d'excellents résultats pour la détermination des masses des dépôts. Nous les en remercions.

Cette étude a pu être menée à bien grâce à l'amabilité et la compétence des équipes des générateurs de neutrons de la S.E.C.R. du C.E. de VALDUC. Qu'ils en soient remerciés, tout particulièrement Messieurs RATEL et HOURST, responsables de ces générateurs.

Nous remercions également les équipes du C.E.N. de SACLAY et du C.E.N. de CADARACHE qui ont fabriqué les chambres à fission, et particulièrement M. JARRIGE dont les conseils nous ont été précieux.

Nos remerciements vont enfin aux techniciens de l'équipe, en particulier Mme MARTIN, MM. DESCHAMPS et MORO, pour leur participation à la réalisation des expériences et l'analyse des mesures de spectrométrie gamma. Nous leur associons M. LAURIOU pour la part active qu'il a prise dans la mise au point des premières expériences.

REFERENCES

- 1 - K.F. FLYNN, L.E. GLENDENIN
ANL 7749 - Déc. 1970
- 2 - M. LAMMER, O.J. EDER
Nuclear data in science and technology - Vol. 1 p. 505
- 3 - D.R. MATHEWS, G.B. Mc GEHEE
Gulf General Atomic B. 12071 (1971)
- 4 - W.H. WALKER
AECL - 4704 (1973)
- 5 - D.R. NETHAWAY, G.W. BARTON
URCL 51458 octobre 1973
- 6 - J.G. CUNINGHAME
AERE R. 5587
- 7 - G.P. FORD, A.E. NORRIS
LA. 8129 (1976)
- 8 - E.A.C. CROUCH
Atomic Data and Nuclear Data Tables - Vol. 19 - Nbre 5 (1977) 417-532
- 9 - B.F. RIDER
NEDO 12154 - 3 A (1979)
- 10 - M.G. THODE, R.L. GRAHAM
Canadian J. Research A, 25 (1947) 1
- 11 - H. FERRAR, R.M. THOMLINSON
Nuclear Physics 34 (1962) 367-381

- 12 - C.K. MATHEWS
Physical Review Vol 15 Nb 1 (1977) 344-350
- 13 - W.J. MAECK, F.A. DUCE, R.L. EGGLESTON, R.L. TROMP, J.W. NETEER, W.A. EMEL.
ENICO - 1001 (1979)
EXXON NUCLEAR IDAHO COMPANY
- 14 - H.R. BOWMAN, J.C. MILTON, S.G. THOMPSON, W.J. SWIATECKI
Phys. Review 129 (1963) 2133
- 15 - H.W. SCHMITT, J.H. NEILER, F.J. WALTER
Phys. Review 141 (1966) 1146
- 16 - J.P. UNIK, J.E. GINDLER, L.E. GLENDENIN, K.F. FLYNN, A. GORSKI, R.K. SJOBLO
IAEA - SM - 174-209
- 17 - B. LANDEAU
Thèse CNAM (1976)
- 18 - H.C. BRITT, H.E. WEGNER, S.L. WHESTSTONE
Nuclear Inst. and Methods 24 (1963) 13-21
- 19 - R.A. LERCHE, B.W. WEHRING, M.E. WYMAN
Nuclear Inst. and Methods 101 (1972) 287-293
- 20 - H.R. VON GUNTEN, M. HERMANN
Radiochimica Acta Vol 8 (1967) 112-114
- 21 - J. BLACHOT, L.C. CARRAZ, P. CAVALLINI, C. CHAUVIN, A. FERRIEU et A. MOUSSA
J. Inorg. nucl. Chem. Vol 35 - (1974) 1-7
- 22 - J.G. CUNINGHAME, J.A.B. GOODALL, H.H. WILLIS
AERE R. 6862 (1972)

- 23 - D.R. NETHAWAY, A.L. PRINDLE
Phys. Review c Vol 16, Nb 5 (1977) 1907-1917
- 24 - L.E. GLENDENIN, J.E. GINDLER, I.AHMAD, D.J. HENDERSON, J.W. MEADOWS
Phys. Review c Vol 22 Nb 1 (1980) 152-159
- 25 - A.L. PRINDLE, D.H. SISSON, D.R. NETHAWAY, M.V. KANTELO, R.A. SIGG
Phys. Review c Vol 20, Nb 5 (1979) 1824-1830
- 26 - J.K. DICKENS, J.W. Mc CONNELL, K.J. NORTHCUTT
Nuclear Sc. and Eng. 77 (1981) 146-152
- 27 - J. LAUREC
Rapport interne CEA (1978)
- 28 - J. LAUREC
Rapport interne CEA (1978)
- 29 - J. LAUREC
Note interne CEA (1981)
- 30 - A. ROUYER
Rapport interne CEA (1978)
- 31 - M. GUERY et A. JARRIGE
Revue de Physique Appliquée - Tome 6 (1971) 121-127
- 32 - J.A. GRUNDL, D.M. GILLIAM, N.D. DUNDEY, R.J. POPEK
Nuclear Technology Vol 25 Nbre 2 (1975) 237-257
- 33 - G. CODDENS, C. WAGEMANS, A.J. DERUYTTER
Nuclear Sc. Eng. 74 n°2 (1980) 223-225

- 34 - D. ENGELKEMEIR
Physical Review Vol 146 n°1 (1966) 304-309
- 35 - GARY W. CARLSON
Nuclear Inst. and Methods 119 (1974) 97-100
- 36 - C. BERGEY
Rapport interne CEA (1976)
- 37 - Y. LEGALLIC, M. THENARD
Rapport CEA R - 3975 (1970)
- 38 - J. MOREL
Rapport CEA R - 4656 (1975)
- 39 - R.J. GEHRKE, R.G. HELMER, R.C. GREENWJOD
Nuclear Inst. and Methods 147 (1977) 405-423
- 40 - J. LEGRAND, J.P. PEROLAT, F. LAGOUTINE, Y. LEGALLIC
Table des radionucléides LMRI/BNM/CEA
- 41 - C. BUTAYE, G. SIMONET, J. MORIN
Rapport interne CEA (1975)
- 42 - J.B. HOURST, M. ROCHE
Nuclear Inst. and Methods 92 (1971) 589
- 43 - C. BUTAYE, C. DELPENIE, A. ROUYER, P. SIMONET
Rapport interne CEA (1976)
- 44 - P. CAVALLINI
Thèse - Univ. Scient. et médicale de GRENOBLE (1975)
- 45 - D. ADAMS
Thèse - Univ. of Arkansas (1975)

LISTE DES TABLEAUX

- I - ETALONS GAMMA : ENERGIES ET INTENSITES DES RAIES UTILISEES.
- II - NUCLEIDES MESURES : PERIODES, RAIES GAMMA ET INTENSITES UTILISEES.
- III - RENDEMENTS DE FISSION - ^{233}U - NEUTRONS DE FISSION.
- IV - RENDEMENTS DE FISSION - ^{235}U - NEUTRONS DE FISSION.
- V - RENDEMENTS DE FISSION - ^{239}Pu - NEUTRONS DE FISSION.
- VI - RENDEMENTS DE FISSION - ^{233}U - NEUTRONS DE 14,7 MEV.
- VII - RENDEMENTS DE FISSION - ^{235}U - NEUTRONS DE 14,7 MEV.
- VIII - RENDEMENTS DE FISSION - ^{238}U - NEUTRONS DE 14,7 MEV.
- IX - RENDEMENTS DE FISSION - ^{239}Pu - NEUTRONS DE 14,7 MEV.

TABLEAU I

ETALONS GAMMA : Energies et Intensités des raies utilisées

Nucléide	Energies (KeV)	Intensités %
²² Na	1 274,5	98,95
⁵¹ Cr	320,1	9,83
⁵⁴ Mn	834,8	99,98
⁵⁷ Co	122,0 136,4	85,6 10,61
⁶⁰ Co	1 173,2 1 332,5	99,87 99,98
⁶⁵ Zn	1 115,5	x
⁸⁵ Sr	514,0	x
⁸⁸ Y	898,0 1 836,1	93,4 99,35
¹⁰³ Ru	497,0	89,35
¹⁰⁹ Cd	88,0	x
¹¹³ Sn	391,7	x
¹³⁷ Cs	661,6	85,05
¹³⁹ Ce	165,8	x
¹⁴¹ Ce	145,4	48,44
²⁰³ Hg	72,8 (Xk) 82,5 (Xk) 279,2	10,05 2,79 81,50
²⁴¹ Am	59,5	35,9
¹⁵² Eu	121,8 - 244,7 344,3 - 411,1 443,9 - 778,8 867,4 - 964,0 1 085,8 - 1 112,1 1 408,1	x

x Activité en fluence représentant l'émission photonique de la raie mesurée.

TABLEAU II

Nucléides mesurés : périodes, raies gamma et intensités utilisées

Nucléides	E (KeV)	I_{γ} %	$\Delta I/I$ %	$T_{1/2}$ J	$\Delta T/T$ %
^{95}Zr	724,2	43,5	1	64,05	0,2
	756,7	54,3	1		
^{97}Zr	658,1	99,0	1	0,703	0,3
	743,4	92,0	2		
$^{99}\text{Mo} - ^{99}\text{Tc}$	140,1	89,7	2	2,75	0,3
^{103}Ru	497,1	89,35	0,6	39,35	0,2
^{105}Rh	319,2	19,1	5	1,49	0,2
^{106}Ru	621,9	9,94	2	369	1
^{127}Sb	473,0	24,8	5	3,85	0,7
	635,7	36,8	5		
^{131}I	364,5	82,4	3	8,06	0,4
^{132}Te	228,2	88,63	2	3,23	0,8
^{135}Xe	249,8	90,13	0,1	0,3787	0,11
^{136}Cs	818,5	99,7	0,5	13,16	0,2
	1 048,0	79,7	1,2		
^{137}Cs	661,6	85,05	0,75	11 023	0,16
^{140}Ba	162,7	6,2	5	12,83	0,30
	537,2	23,8	5		
^{141}Ce	145,4	48,44	0,85	32,5	0,03
^{143}Ce	293,3	42,1	4	1,38	0,5
^{144}Ce	133,5	11,1	5	284,5	0,4
^{147}Nd	91,0	27,0	4	11,08	0,4
	531,4	12,3	4,1		
^{155}Eu	86,5	31,0	10	1 788	1
	105,3	21,0	10		
^{156}Eu	88,9	9,55	5	15,20	0,3
	646,2	7,14	5		

TABLEAU III

RENDEMENTS DE FISSION

233 U		$\rho \times 10^{-2}$	Neutrons de fission		
Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta\rho}{\rho} \%$	RIDER (9)	E.A.C. CROUCH (8)	NETHAWAY (5)
^{95}Zr	6,40	4,6	6,27	6,29	6,59
^{97}Zr	5,51	3,6	5,40	5,44	5,93
^{99}Mo	4,91	3,5	4,68	4,75	4,89
^{103}Ru	1,68	4,9	1,79	0,413	0,425
^{131}I	3,81	3,6	3,73	3,73	3,54
^{132}Te	4,62	3,5	4,60	4,96	4,26
^{133}I	5,54	3,7	5,96	6,01	5,47
^{135}Xe	5,40	8,0	6,33	6,37	6,33
^{136}Cs	0,116	7,3	0,161	-	0,165
^{137}Cs	6,20	12	6,62	6,70	6,52
^{140}Ba	6,08	3,7	6,18	6,27	6,55
^{141}Ce	6,29	3,6	6,39	6,56	6,09
^{143}Ce	5,38	3,7	5,53	5,46	5,21
^{144}Ce	4,52	4,8	4,47	4,35	4,38
^{147}Nd	1,76	4,8	1,68	1,68	1,67

TABLEAU IV

RENDEMENTS DE FISSION

^{235}U		$p \times 10^{-2}$	Neutrons de fission			
Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta p}{p} \%$	RIDER (9)	CROUCH (8)	NETHAWAY (5)	FORO ^x NORRIS (7)
^{95}Zr	6,29	4,0	6,36	6,41	6,38	6,25
^{97}Zr	5,88	3,3	5,92	5,87	5,87	5,92
^{99}Mo	6,23	2,9	5,78	5,70	6,12	6,14
^{103}Ru	3,25	3,6	3,29	3,28	3,22	
^{106}Ru	0,552	10	0,582	0,435	0,973	
^{131}I	3,32	3,1	3,19	3,23	3,50	
^{132}Te	4,76	3,0	4,58	4,61	4,80	
^{133}I	5,90	5,4	6,74	6,63	6,76	
^{137}Cs	6,14	8,5	6,15	6,12	6,09	6,20
^{140}Ba	5,96	3,9	6,06	5,94	6,05	6,00
^{141}Ce	5,83	3,8	5,94	5,91	5,67	5,64
^{143}Ce	5,41	3,2	5,68	5,73	5,56	5,89
^{144}Ce	5,07	4,5	5,26	5,31	4,91	5,00
^{147}Nd	2,27	4,5	2,11	2,22	2,18	2,20

x Moyennes arithmétiques des valeurs publiées par (7)

TABLEAU V

RENDEMENTS DE FISSION

239 Pu		Neutrons de fission				
	$\rho \times 10^{-2}$					
Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta\rho}{\rho} \%$	RIDER (8)	CROUCH (6)	NETHAWAY (5)	FORD * et NORRIS (7)
95Zr	4.48	3.5	4.71	4.73	4.52	4.48
97Zr	5.02	3.7	5.25	5.23	4.82	4.99
99Mo	5.94	3.0	6.00	5.79	5.94	
103Ru	6.58	3.2	6.86	6.73	6.53	
105Rh	5.22	4.9	5.49	5.60	5.12	
106Ru	3.96	6.5	4.35	4.79	4.52	
131I	3.63	4.7	3.88	4.11	4.30	
132Te	4.87	3.3	5.10	5.33	4.80	
133I	5.92	6.0	6.83	6.94	6.29	
136Cs	0.111	6.5	0.134	-	0.148	
140Ba	4.98	4.5	5.30	5.22	4.94	5.13
141Ce	4.84	4.3	5.26	5.59	4.70	4.82
143Ce	4.08	3.6	4.30	4.37	4.09	4.23
144Ce	3.58	4.0	3.62	3.73	3.34	3.45
147Nd	2.00	4.0	1.99	1.96	1.97	2.00

* Moyenne arithmétique des valeurs publiées dans (7)

TABLEAU VI

RENDEMENTS DE FISSION

^{233}U		Neutrons de 14.7 MeV				
Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta\rho}{\rho} \%$	RIDER	CROUCH	NETHAWAY	CAVALLINI
			(9)	(8)	(5)	(44)
^{95}Zr	5,13	5,5	5,05	5,13	5,19	4,58
^{97}Zr	4,85	5,7	4,70	4,81	4,80	4,45
^{99}Mo	4,40	5,0	3,62	3,68		3,75
^{103}Ru	2,81	5,3	2,35	2,51	2,42	2,53
^{131}I	4,63	5,3	3,47	3,40		
^{132}Te	3,14	5,3	3,22	3,77	3,22	3,32
^{135}Xe	3,46	7,0	4,97	4,96	5,11	
^{136}Cs	0,837	6,0	0,487			
^{140}Ba	4,39	5,7	4,45	4,37	4,01	4,01
^{141}Ce	4,24	6,1	4,69	4,63	4,19	4,32
^{143}Ce	3,17	5,5	3,28	3,20	3,28	2,88
^{144}Ce	2,43	8,0	2,53	2,49	2,49	
^{147}La	1,32	6,5	1,20	1,18	1,19	1,04

RENDEMENTS DE FISSION

^{235}U $\rho \times 10^{-2}$			Neutrons de 14,7 MeV				
Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta\rho}{\rho}$ %	RIDER (9)	CROUCH (8)	NETHAWAY (5)	FORD et ^x NORRIS (7)	FLYNN et GLENDEININ (1)
^{95}Zr	5,33	3,8	5,03	4,83	5,10		4,80
^{97}Zr	5,03	5,0	5,21	5,74	5,02	5,48	5,29
^{99}Mo	5,05	3,8	5,10	5,17	5,10		5,25
^{103}Ru	3,08	4,1	3,23	3,47	3,02	3,80	3,35
^{127}Sb	1,76	7,5	2,18	1,84	1,83	2,35	2,09
^{131}I	4,32	4,0	4,06	4,08	4,70	4,03	4,23
^{132}Te	4,14	3,9	4,07	4,27	4,00	4,20	4,70
^{133}I	5,43	4,9	5,34	4,71	5,42		5,60
^{135}Xe	4,97	6,4	5,74		4,42		5,70
^{136}Cs	0,216	9,0	0,230			0,214	
^{140}Ba	4,61	4,2	4,46	4,41	4,56	4,81	4,61
^{141}Ce	4,50	4,0	4,48	3,80	4,45		3,80
^{143}Ce	3,75	4,1	3,86	3,90	3,69	4,07	3,81
^{144}Ce	3,15	1,0	3,17	3,07	3,21	3,31	3,20
^{147}Nd	1,62	4,8	1,64	1,66	1,69	1,74	1,64

x Moyennes arithmétiques des valeurs publiées dans (7).

TABLEAU VIII
RENDEMENTS DE FISSION

Nucléides	^{235}U $p \times 10^{-2}$		Neutrons de 14,7 MeV				
	Présent travail	$\frac{\Delta p}{p} \%$	RIDER (9)	CROUCH (8)	NETHAWAY (5)	BLACHOT (21)	ADAMS (45)
^{95}Zr	4,97	4,2	4,96	4,82	4,90	4,72	5,21
^{97}Zr	5,23	4,8	5,30	5,06	5,06	5,05	5,55
^{99}Mo	5,75	3,9	5,68	5,60	5,79	4,96	5,60
^{103}Ru	4,74	4,0	4,64	4,78	4,67	4,54	5,04
^{105}Rh	3,40	6,0	3,21	3,24	2,80	3,21	2,90
^{127}Sb	1,38	5,2	1,50	1,49	1,58	1,46	1,53
^{131}I	4,05	4,3	4,03	3,90	3,98	3,85	3,83
^{132}Te	4,72	3,9	4,78	4,70	4,59	4,97	4,11
^{133}I	5,50	6,0	6,14	6,13	6,75	6,00	5,68
^{135}Xe	5,70	5,0	5,90	5,45	5,61		5,39
^{140}Ba	4,65	4,2	4,62	4,63	4,54	4,60	4,54
^{141}Ce	4,44	4,0	4,39	4,40	4,25	4,53	4,58
^{143}Ce	3,94	4,5	3,93	3,81	3,83	3,83	4,25
^{144}Ce	3,72	7,0	3,67	3,73	3,67		3,88
^{147}Nd	2,08	4,7	2,10	2,08	2,08	2,11	1,97

TABLEAU IX

RENDEMENTS DE FISSION

^{239}Pu $\rho \times 10^{-2}$			Neutrons de 14,7 MeV		
Nucléides	Présent travail	$\frac{\Delta\rho}{\rho} \%$	RIDER (9)	CROUCH (8)	NETHAWAY (5)
^{95}Zr	3,96	3,9	3,82	-	3,85
^{97}Zr	4,40	4,5	4,41	3,99	4,31
^{99}Mo	5,04	3,6	4,43	4,16	5,10
^{103}Ru	5,23	3,7	5,23	6,25	5,19
^{105}Rh	4,30	4,6	4,23	-	4,32
^{127}Sb	2,17	4,4	2,27	-	2,06
^{131}I	4,55	4,8	4,38	-	4,70
^{132}Te	3,15	3,7	3,78	4,58	3,04
^{133}I	4,25	9,0	5,13	-	4,76
^{135}Cs	0,797	4,4	0,731	-	0,766
^{140}Ba	3,60	3,8	3,83	3,18	3,64
^{141}Ce	3,86	4,1	3,41	-	3,59
^{143}Ce	2,93	4,0	2,61	-	2,75
^{144}Ce	2,59	7,3	2,71	3,18	2,67
^{147}Nd	1,64	4,2	1,78	1,47	1,67

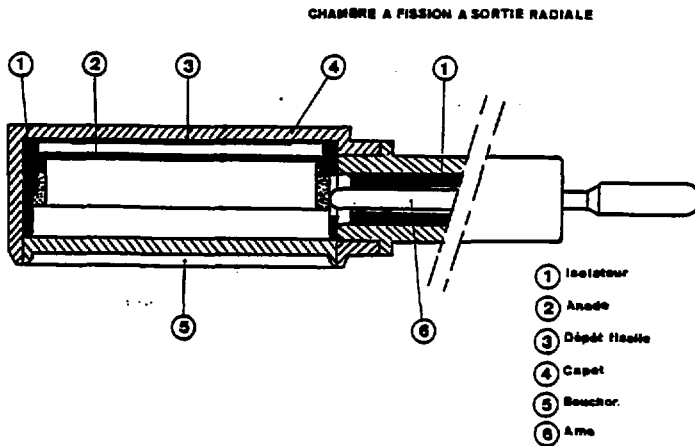
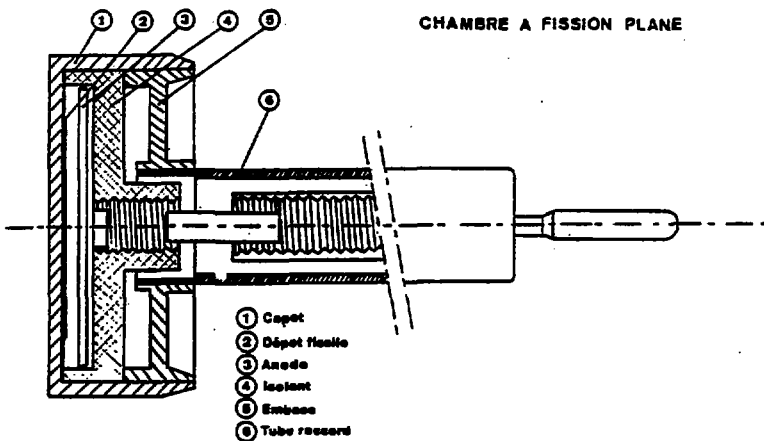


FIGURE 1 - Schéma descriptif des chambres à fission utilisées

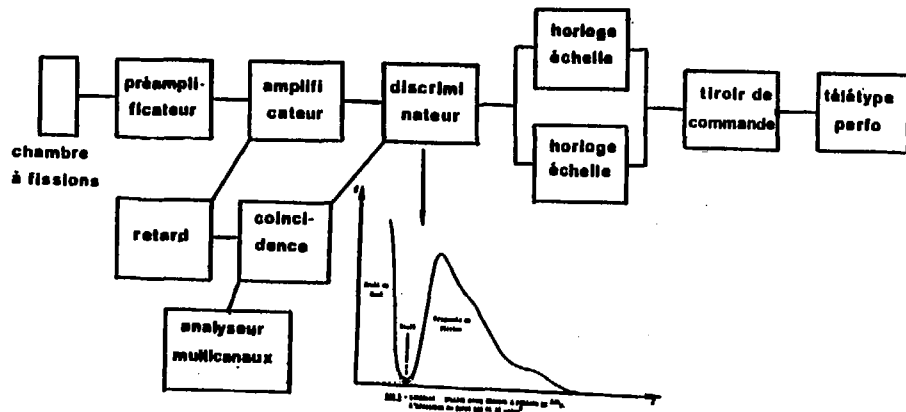


FIGURE 2 - Schéma de principe de l'ensemble de comptage des fissions et du dispositif de réglage du seuil

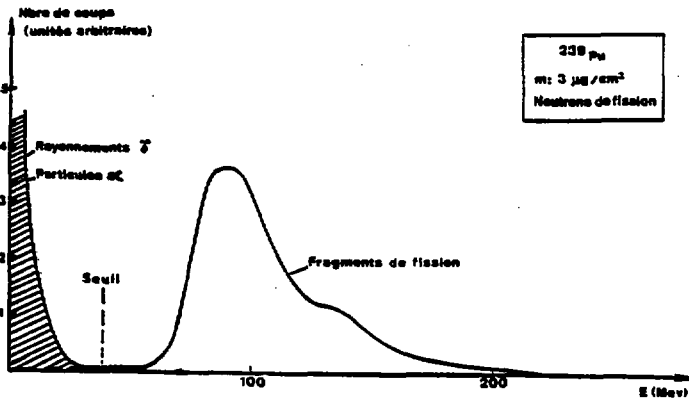
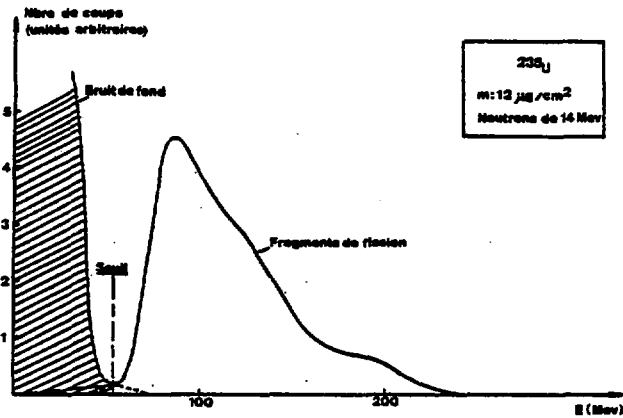


FIGURE 3 - Spectres d'impulsions fournis par des chambres à fission lors de deux expériences, l'une sur le générateur de neutrons de 14 MeV LANCELOT, l'autre sur l'assemblage critique PROSPERO

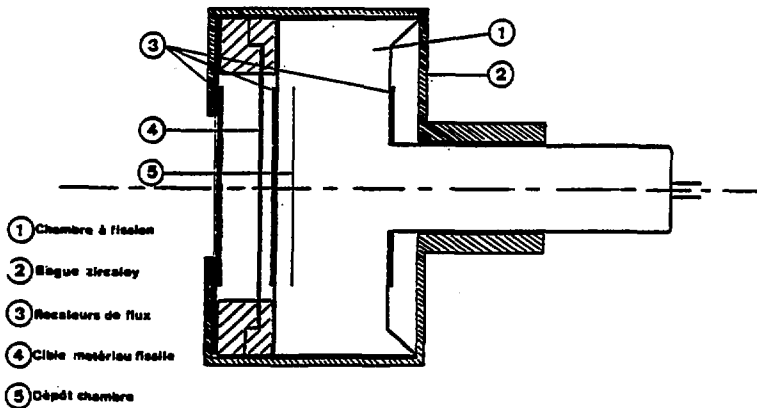
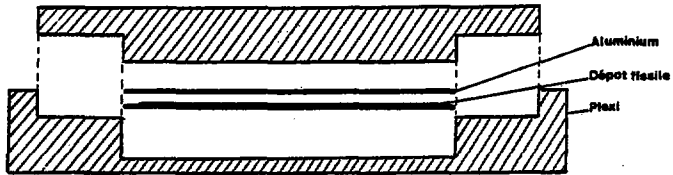
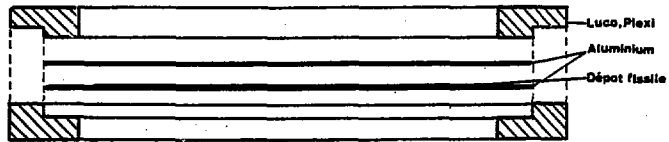


FIGURE 4 - Haut : deux types d'assemblages de cibles réalisés pour nos expériences

Bas : dessin descriptif d'un assemblage chambre à fission-cible fissile - recaleurs de flux

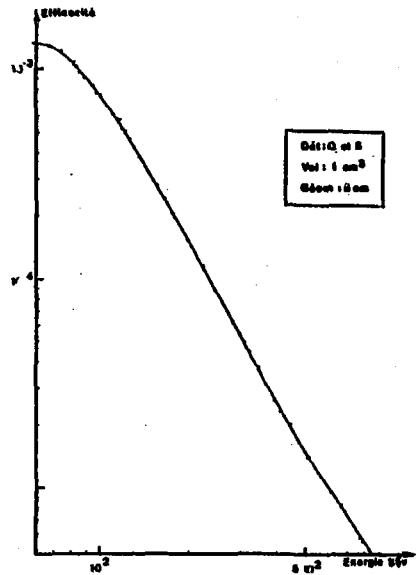
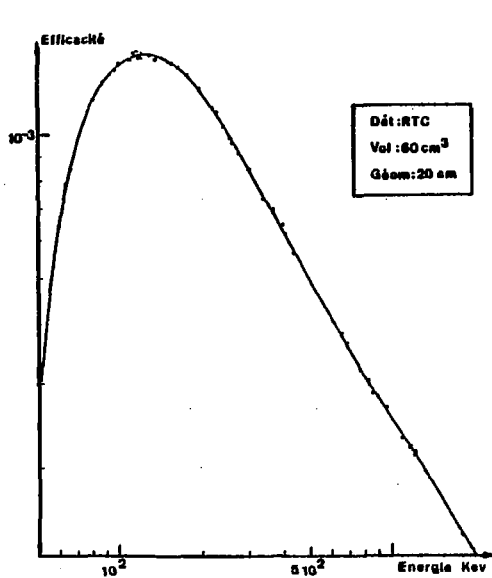


FIGURE 5 - Courbes de rendement photoélectrique de deux des détecteurs Ge-Li utilisés pour les mesures d'activité des cibles

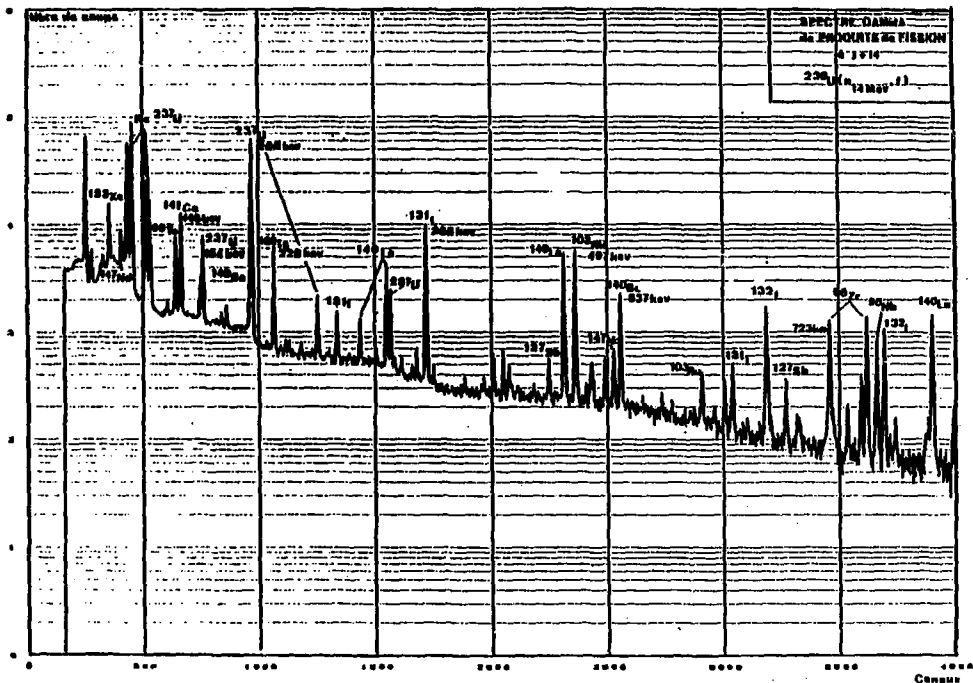


FIGURE 7 - Spectra gamma de produits de fission obtenu sur une cible de ²³⁸U soumise à un flux de neutrons de 14 MeV. L'efficacité intrinsèque du détecteur Ge-Li est de 10 %

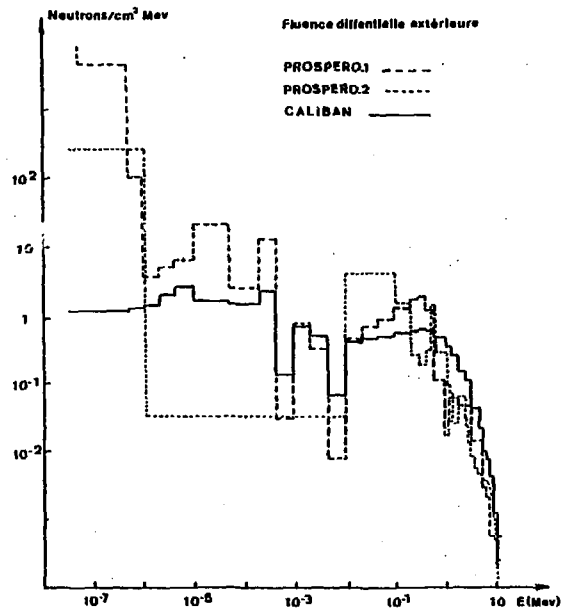
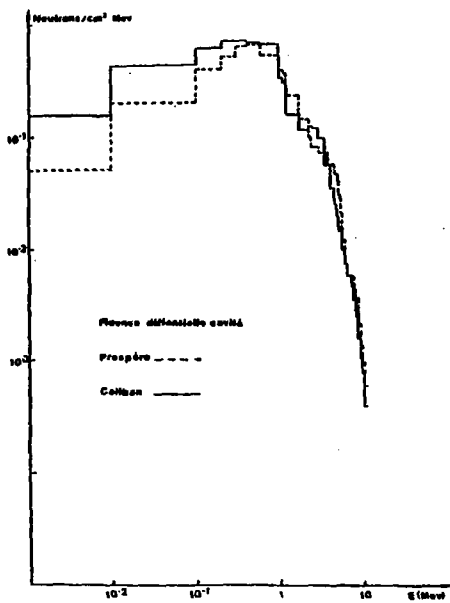


FIGURE 8 - Spectres appropriés des neutrons des assemblages critiques PROSPERO et CALIBAN

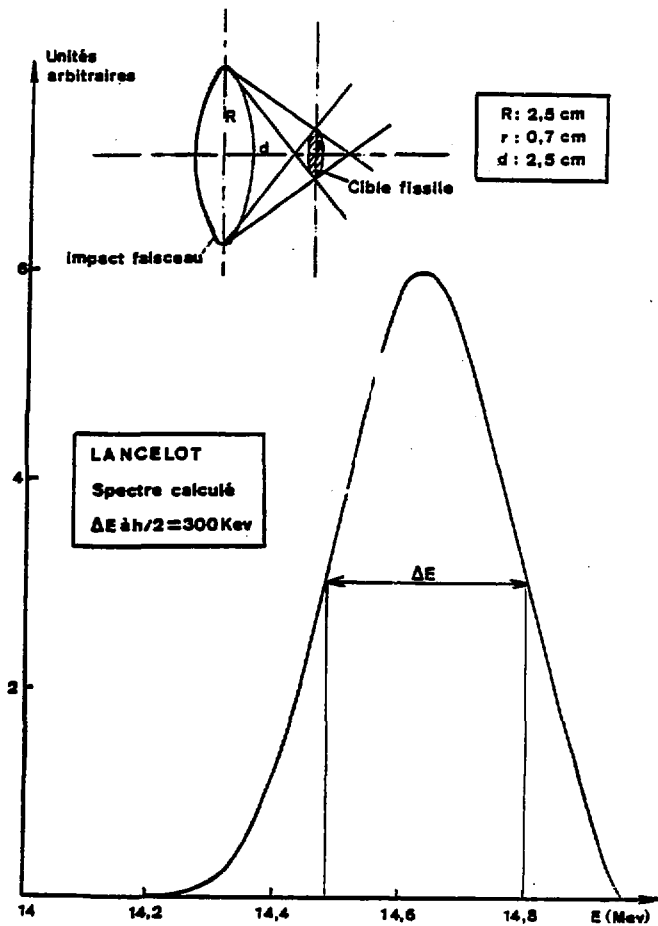


FIGURE 10 - Répartition en énergie des neutrons émis par LANCELOT dans l'axe du faisceau à 2,5 cm de la cible de tritium

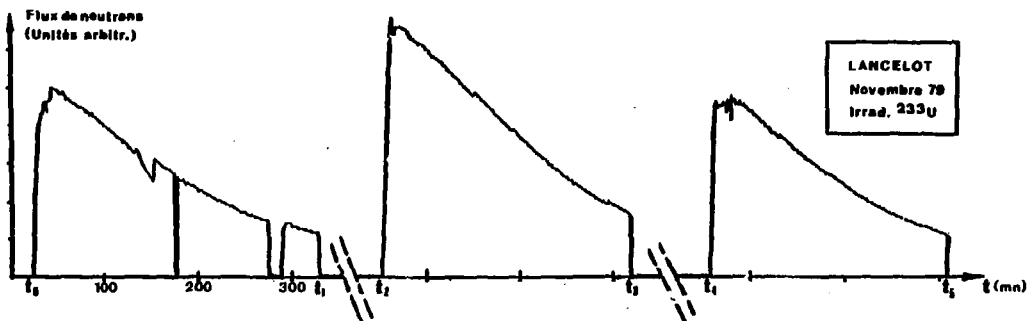
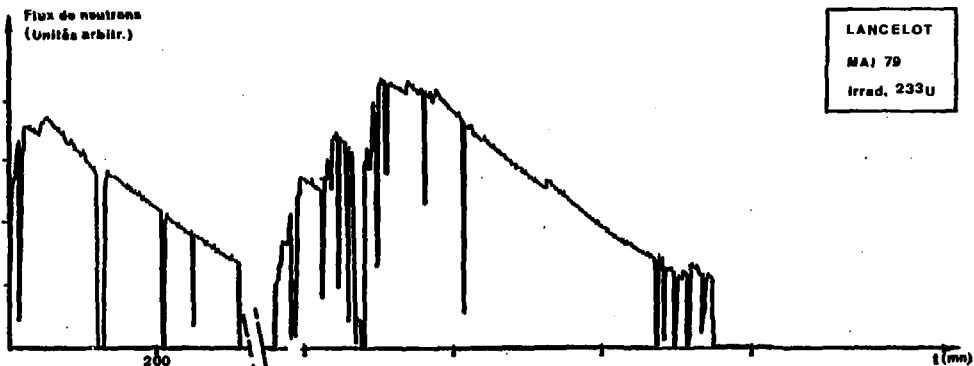


FIGURE 11 - Séquences d'irradiation de deux expériences effectuées sur LANCELOT. Les durées des séquences d'interruption T1-T2 et T3-T4 sont de l'ordre de 1000 mn. A chaque séquence correspond une nouvelle cible de tritium

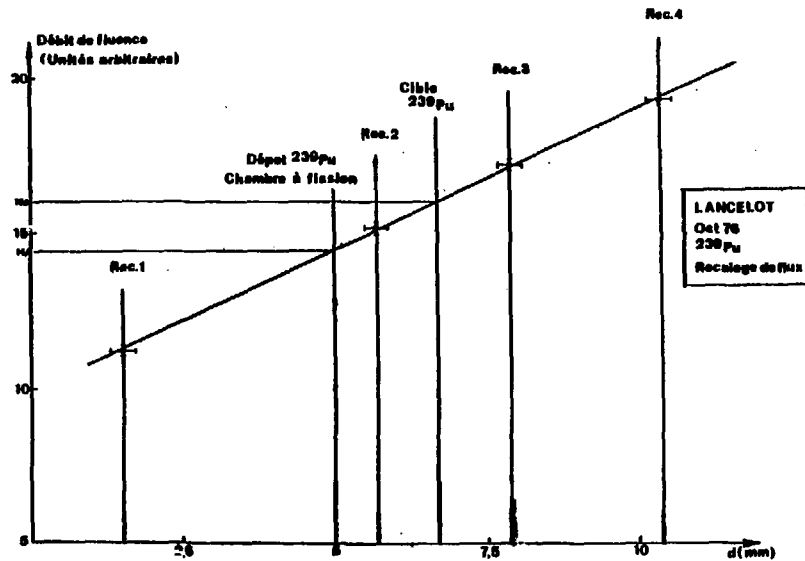


FIGURE 12 - LANCELOT : Variation du débit de fluence en fonction de la distance au niveau du montage cible-chambre à fission. Pour cette expérience le facteur de recalage du flux est de $1,11 \pm 0,006$.

*Achevé d'imprimer
par
le CEA, Service de Documentation, Saclay
Décembre 1981*

DEPOT LEGAL
4ème trimestre 1981

La diffusion des rapports et bibliographies du Commissariat à l'Energie Atomique est assurée par le Service de Documentation, CEN-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex, (France)

Reports and bibliographies of the Commissariat à l'Energie Atomique are available from the Service de Documentation, CEN-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex, (France)

Édité par

le Service de Documentation

Centre d'Études Nucléaires de Saclay

91191 GIF-sur-YVETTE Cédex (France)