

PRÉSIDENCE DU CONSEIL

COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**ETUDE DE LA VARIATION AVEC L'ÉNERGIE
DES SECTIONS EFFICACES DE FISSION DE
 ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu POUR LES
NEUTRONS RAPIDES**

D. SZTEINSZNAIDER, V. NAGGIAR et F. NETTER

Sauf appendice

Rapport C.E.A. n° 405

1955

Centre d'Études nucléaires de Saclay

Service de Documentation

Service de Physique nucléaire

ETUDE DE LA VARIATION AVEC L'ENERGIE DES SECTIONS EFFICACES
DE FISSION DE ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu POUR LES NEUTRONS RAPIDES

par

D. SZTEINSZNAIDER, V. NAGGIAR et F. NETTER

Communication du C.E.A. à la Conférence de Genève

- Août 1955 -

ETUDE DE LA VARIATION AVEC L'ENERGIE DES SECTIONS EFFICACES
DE FISSION DE ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu POUR LES NEUTRONS RAPIDES

Par Mlle D.SZTEINSZNAIDER⁽¹⁾, MM.V.NAGGIAR⁽²⁾ et F.NETTER⁽³⁾

Résumé

Ces mesures ont été effectuées en prenant la valeur de la section efficace de fission de ^{238}U comme référence. Les neutrons sont produits par la réaction $^7\text{Li}(p,n)$ au générateur Van de Graaff de Saclay. Le domaine exploré s'étend de quelques dizaines de kev à 2000 kev. Nous trouvons :

pour ^{239}Pu	$\sigma_f = 2,04 \pm 0,12$ barns	section efficace constante entre 150 et 2000 kev.
pour ^{235}U	$\sigma_f = 1,15 \pm 0,15$ barns	section efficace constante entre 700 et 1000 kev
pour ^{233}U	$\sigma_f = 1,92 \pm 0,25$ barns	pour des neutrons de 850 kev.

(1), (2) et (3) Service de Physique Nucléaire du C.E.A.

I PRINCIPE DE LA MESURE

La cible du matériau fissile, placée dans une chambre d'ionisation, est soumise à un flux de neutrons monocinétiques. Le nombre de fissions compté est donné par

$$F = a n \sigma \varphi \quad [1]$$

- où
- a est l'efficacité globale de la chambre à fissions et du dispositif électronique
 - n est le nombre de noyaux par centimètre carré de la cible fissile
 - σ est la section efficace de fission
 - φ est le flux de neutrons reçu par la cible supposée mince.

Aucune détermination directe des valeurs absolues de section efficace de fission n'a été effectuée. Pour obtenir ces valeurs nous avons comparé, entre 1500 et 2000 kev, la section efficace de fission de ^{239}Pu à celle de l'uranium naturel dont la valeur est publiée⁽¹⁾. La variation de la section efficace de fission de ^{239}Pu en fonction de l'énergie entre 50 et 2000 kev s'obtient en prenant comme moniteur un "long compteur"⁽²⁾ dont la variation d'efficacité aux basses énergies a été mesurée avec un compteur à protons de recul (voir Annexe). Les variations relatives des sections efficaces avec l'énergie de ^{235}U et ^{233}U sont déterminées par comparaison directe avec ^{239}Pu dans un même flux de neutrons.

II DISPOSITIF ET CONDITIONS EXPERIMENTALES

L'étalonnage du Van de Graaff est effectué en prenant le seuil de $^7\text{Li}(p,n)$ à 1,882 Mev et le seuil de $^{13}\text{C}(p,n)$ à 3,236 Mev. La mesure du champ magnétique qui définit l'énergie des protons est réalisée par une méthode de résonance magnétique nucléaire. La dispersion d'énergie des protons est de l'ordre de 0,5 pour cent pour un courant de l'ordre de 8 microampères.

Le dépôt de lithium obtenu par évaporation thermique sur support de tantale de 0,3 mm d'épaisseur constitue le fond d'un tube de laiton de 30 mm de diamètre, 20 cm de long et 1 mm d'épaisseur de paroi amincie à 0,5 mm du côté de la cible. Les charges électriques recueillies dans ce cylindre sont mesurées par un intégrateur.

La cible de plutonium de 2 mg contient de l'ordre de 1 %

(1) Neutron Cross Sections, AECU 2040.

(2) Hanson A.O. et McKibben J.L. A neutron detector having uniform sensitivity from 10 kev to 3 Mev, Phys.Rev. 72 : 673, (1947).

d'impuretés d'uranium. La cible d'uranium de 20 mg enrichie en ^{235}U est obtenue au séparateur d'isotopes. L'analyse isotopique indique masse 238 / masse 235 = $6,72 \pm 0,10$

La cible de ^{233}U de 0,7 mg contient environ 50 pour cent de U naturel. Nous avons également utilisé une cible de U naturel de 20 mg.

Dans une première série de mesures, chaque cible était placée dans une chambre d'ionisation identique à deux plateaux parallèles distants de 1 cm. Dans une deuxième série de mesures, nous avons utilisé des chambres doubles avec la même distance entre électrodes. Les chambres sont remplies sous deux atmosphères d'argon contenant du CO_2 sous 2 cm Hg. Pour réduire le nombre d'empilements des particules alpha du plutonium, on est conduit à utiliser dans l'amplificateur une bande passante de $3 \cdot 10^{-7}$ s., à rechercher dans les chambres d'ionisation une montée rapide des impulsions par collection électronique favorisée par l'adjonction de CO_2 (par ailleurs ce gaz contribue à diminuer la dérive des chambres). Le seuil de discrimination est fixé de manière à ne pas compter les empilements alpha. On se réfère aux comptages alpha et aux indications d'un générateur d'impulsions pour contrôler la dérive des chambres (très faible) et la dérive de l'électronique. La figure 1 indique la géométrie utilisée dans chaque série de mesures.

Nous avons utilisé un dépôt de lithium relativement épais de 200 microgrammes/cm² pour obtenir des taux de comptage élevés, au détriment de la résolution en énergie. Du fait de l'épaisseur du dépôt, de la dispersion d'énergie des protons du Van de Graaf et de l'ouverture du cône de neutrons, la dispersion d'énergie des neutrons est de ± 60 kev pour 1600 kev et de ± 20 kev pour 50 kev.

Pour une énergie de neutrons supérieure à 500 kev, nous avons corrigé les comptages de fission du fait de l'existence du groupe de neutrons correspondant à l'état excité du $^7\text{Be}^*$ à 435 kev (3).

En faisant varier la distance d de la source de neutrons à la cible fissile, nous avons constaté que la variation du comptage de fission ne suit pas la loi en $1/d^2$, c'est-à-dire que la cible fissile ne reçoit pas uniquement des neutrons en provenance directe de la source. Pour retrouver la variation expérimentale, on peut admettre que la cible fissile reçoit en plus un certain nombre de neutrons diffusés constant avec la distance. On calcule ainsi que, à la distance à laquelle ont été effectuées les mesures de la première série, 9 % des fissions sont dues aux neutrons diffusés; dans la deuxième série l'emploi de la chambre double nous a permis de nous rapprocher de la cible et, dans ces conditions, cette proportion est réduite à 5 % (à 0°). On a constaté que, en entourant la chambre d'une feuille de cadmium, la variation du nombre de fissions compté était inférieure aux erreurs statistiques (2 %).

(3) Feld, B.T. Experimental Nuclear Physics, 2 : 380 (Segré edit.)

III RESULTATS

1° Détermination de la section efficace de fission de ^{239}Pu en prenant celle de l'uranium naturel comme référence

Pour nous permettre de prendre comme référence la section efficace de fission de l'uranium naturel qui a été publiée⁽¹⁾, nous avons déterminé la variation du comptage de fissions d'une cible d'uranium naturel en fonction de l'énergie des neutrons entre 800 et 2000 kev en prenant le "long compteur" comme moniteur. Notre courbe expérimentale (fig.2a en trait plein) présente la même variation que la courbe publiée (fig.2a en trait pointillé) avec un point d'inflexion à la même énergie. Entre 1600 et 1800 kev, les deux courbes se superposent avec une précision supérieure aux erreurs statistiques de comptage (1 %).

Le nombre de fissions compté F_{nat} normalisé à un même nombre de neutrons détecté au "long compteur" est proportionnel à la section efficace de fission si les efficacités de la chambre d'ionisation et du "long compteur" sont indépendantes de l'énergie. Cette hypothèse se justifie puisque le spectre d'énergie des fragments de fission⁽⁴⁾ et leur distribution angulaire⁽⁵⁾ ne varient pas sensiblement avec l'énergie depuis la région thermique jusqu'à 14 Mev. D'autre part, différents expérimentateurs⁽⁶⁾ ont trouvé que l'efficacité du "long compteur" est constante dans ce domaine d'énergie.

La comparaison des fissions des cibles de Unat et de ^{239}Pu placées dans une chambre double donne, d'après l'équation [1],

$$\frac{F_{\text{Pu}}}{F_{\text{nat}}} = \frac{(an)_{\text{Pu}}}{(an)_{\text{nat}}} \times \frac{\sigma_{\text{Pu}}}{\sigma_{\text{nat}}} \quad [2]$$

Le rapport des nombres efficaces (an) est donné par une expérience avec des neutrons thermiques à la pile de Saclay, le rapport $(\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{nat}})_{\text{therm.}}$ ayant été mesuré⁽⁷⁾ :

$$(\sigma_{\text{Pu}} / \sigma_{\text{nat}})_{\text{therm.}} = 205,7 \pm 4$$

-
- (4) - Friedland S.S. Energy Distribution of Fission Fragments of ^{235}U produced by 2,5 Mev and 14 Mev Neutrons, Phys.Rev.84 : 75 (1951)
- Wahl J.S. Energy Distribution of Fragments from Fission of ^{235}U ^{238}U and ^{239}Pu by fast Neutrons, Phys.Rev.95 :126 (1954)
- (5) - Dickinson,W.C. et Brolley J.E. jr, Angular Distribution of Fragments from Neutron-Induced Fission, Phys.Rev.90 :388 (1953)
- Brolley J.E. jr, Dickinson W.C. et Heukel R.L., The Angular Distribution of ^{235}U Fragments from Neutron-Induced Fission as a Function of Incident Neutron Energy, Bull.Am.phys.Soc.29 n°4 : 63 (1954)
- (6) Nobles R.A. et al., Response of the Long Counter, Rev.Sci.Instr. 25 :334 (1954)
- (7) Leveque A.,Cohen R. et Cotton E.,Mesure du rapport des sections efficaces de fission par neutrons thermiques de ^{239}Pu et Unat, J.Phys.Radium 15 : 101 (1954)

En prenant pour la section efficace de fission de l'uranium naturel à 1600 kev la valeur de 0,34 barn(1), nous trouvons:

$$(\sigma_{\text{Pu}})_{1600 \text{ kev}} = 2,04 \pm 0,12 \text{ barns}$$

Dans le calcul d'erreur, nous tenons compte des erreurs sur le rapport des sections efficaces de fission en neutrons thermiques (2 %), des erreurs statistiques de comptage (2 %) et de l'erreur qui résulte des fissions dues aux neutrons diffusés.

2° Variation de la section efficace de fission de ^{239}Pu avec l'énergie des neutrons

La variation de la section efficace de fission de ^{239}Pu en fonction de l'énergie des neutrons rapides (fig. 3a) est étudiée en prenant le "long compteur" comme moniteur. Cependant, l'efficacité de celui-ci n'est plus constante aux basses énergies. Nous l'avons comparé, entre 80 et 200 kev à un compteur à protons de recul (Annexe). Pour le point à 50 kev l'efficacité du "long compteur" a été extrapolée. Pour les énergies supérieures à 200 kev, nous avons admis, dans le tracé de la courbe de fission, que l'efficacité du "long compteur" est constante. Cette hypothèse doit être précisée par l'expérience.

D'après cette courbe, on voit que, la section efficace de fission du ^{239}Pu étant constante entre 150 et 2000 kev, il est intéressant de l'utiliser comme matériau de référence dans les chambres doubles.

3° Détermination du rapport $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}_5}$ et $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}_3}$

On dispose dans une chambre double soit une cible de ^{239}Pu et une d'uranium enrichi en ^{235}U , soit une cible de ^{239}Pu et une de ^{233}U . Le rapport des sections efficaces de fission est donné, comme dans l'équation (2), par le rapport des comptages de fission. Le rapport des nombres efficaces (an) est déterminé avec des neutrons thermiques en prenant

$$\left(\frac{\sigma_{\text{Pu}}}{\sigma_{\text{U}_5}} \right)_{\text{therm.}} = 1,47 \pm 0,3 \quad (7)$$

$$\text{et} \quad \left(\frac{\sigma_{\text{U}_3}}{\sigma_{\text{Pu}}} \right)_{\text{therm.}} = 0,627 \pm 0,006 \quad (8)$$

La courbe (2b) donne la variation du rapport $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}_5}$ en fonction de l'énergie des neutrons rapides de 50 kev jusqu'à

(8) Auclair et al. Comparaison des sections efficaces de fission pour les neutrons thermiques de ^{233}U et ^{239}Pu , C.R.Acad.Sci. Paris (juin 1955) à paraître.

1000 kev, seuil de fission de ^{238}U . Nous trouvons :

$$\frac{\sigma_{\text{Pu}}}{\sigma_{\text{U}_5}} = 1,78 \pm 0,1 \text{ constant de 700 à 1000 kev}$$

La courbe 2c donne la variation du rapport $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}_3}$ de 130 à 1250 kev. Ces résultats sont corrigés de la présence de U naturel dans la cible de ^{233}U . En particulier, nous trouvons:

$$\frac{\sigma_{\text{Pu}}}{\sigma_{\text{U}_3}} = 1,06 \pm 0,06 \text{ à 850 kev}$$

Dans le domaine d'énergie inférieure à 200 kev, les neutrons émis en avant ne sont plus monocinétiques: il y a deux groupes tant que le cône de neutrons n'est pas complètement ouvert. Cet effet se présente jusqu'à 170 kev de neutrons pour une cible de 200 microgrammes/cm². Pour éviter cet inconvénient, nous nous plaçons à 120° par rapport au faisceau de protons. L'encombrement de la chambre à lithium et de la chambre à fission nous oblige alors à éloigner cette dernière de la source de neutrons et par suite à augmenter la proportion des fissions dues aux neutrons diffusés. Par ailleurs, la distribution angulaire des neutrons est fortement anisotrope pour les énergies considérées, prépondérante en avant, ce qui augmente encore l'effet des neutrons diffusés. Pour raccorder les mesures effectuées à 120° avec celles effectuées à 0° nous avons mesuré la valeur du rapport $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}}$ à 200 kev dans chaque géométrie.

Cependant, les mesures à 0° donnent un rapport $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}_5}$ inférieur de 15 % à celui mesuré à 120°. Cet écart encore inexpliqué nécessite des mesures complémentaires.

4° Variation des sections efficaces de fission de U₅ et U₃ avec l'énergie des neutrons

De la section efficace de fission de ^{239}Pu et des rapports $\sigma_{\text{Pu}}/\sigma_{\text{U}}$ en fonction de l'énergie, on déduit les courbes de section efficace de fission de ^{235}U et ^{233}U (fig. 3b et c).

Pour ^{235}U , au-delà du seuil de fission de ^{238}U , la section efficace résulte de la comparaison des fissions de la cible enrichie en U₅ et de la cible de U naturel connaissant l'abondance isotopique de chaque cible. Cette région est indiquée par des hachures qui donnent les limites dans lesquelles doit varier la section efficace de fission.

En conclusion, nous trouvons :

$$\begin{aligned} (\sigma_{\text{Pu}})_{150 \text{ à } 2000 \text{ kev}} &= 2,04 \pm 0,12 \text{ barns} \\ (\sigma_{\text{U}_5})_{700 \text{ à } 1000 \text{ kev}} &= 1,15 \pm 0,15 \\ (\sigma_{\text{U}_3})_{850 \text{ kev}} &= 1,92 \pm 0,25 \end{aligned}$$

Nous rappelons que ces valeurs ont été obtenues en prenant pour référence la section efficace de fission de U naturel à 1600 kev.

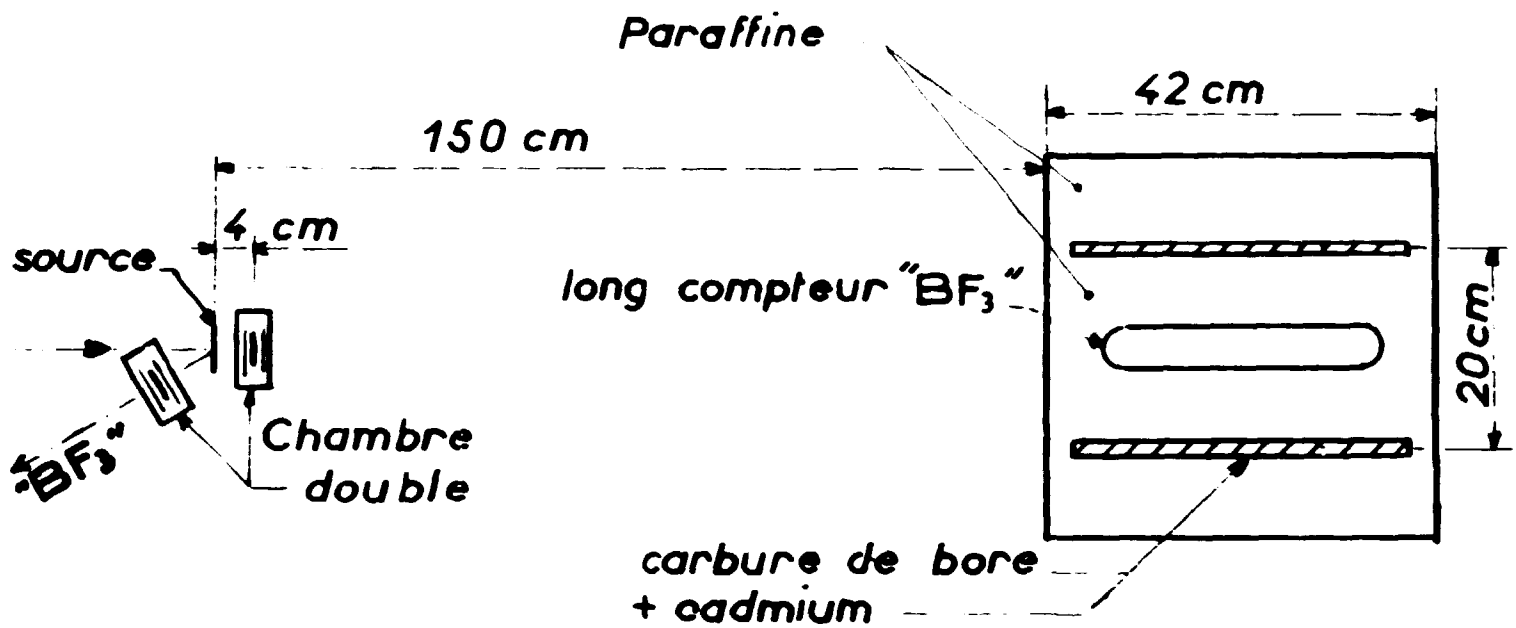
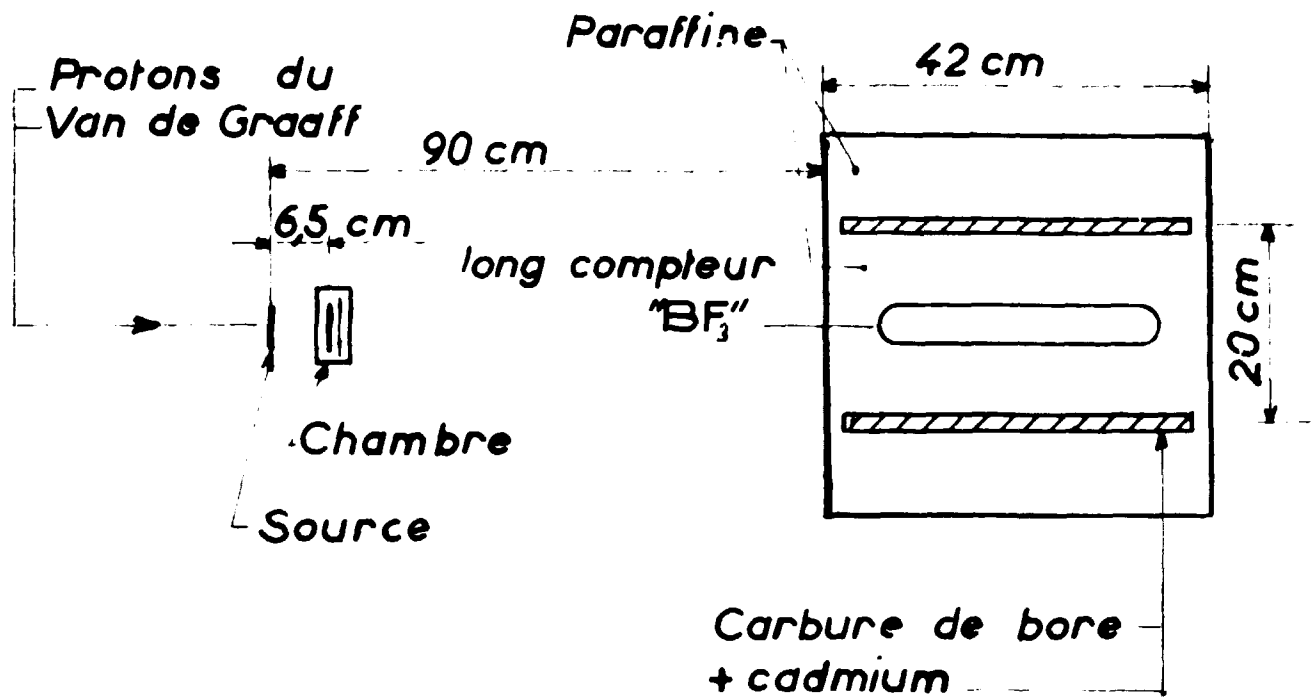
ANNEXE

Nous avons utilisé un compteur proportionnel à protons de recul identique à celui décrit par Skyrme et al. (9). Comme l'ont indiqué ces auteurs, la distribution des impulsions des protons de recul est en bon accord avec la distribution calculée théoriquement.

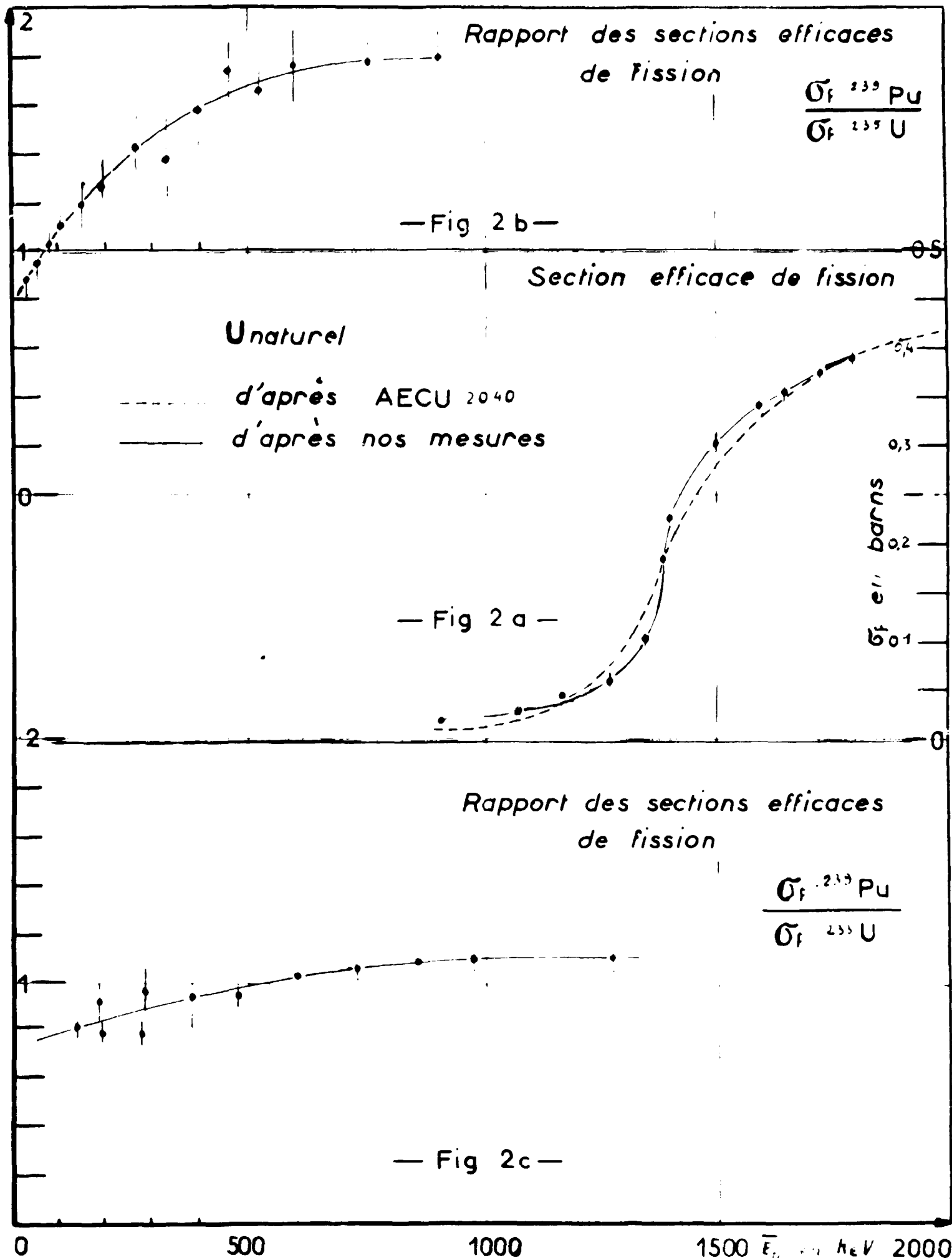
La fig. 4a donne à titre d'exemple le spectre des protons de recul, enregistré avec un sélecteur à 10 canaux pour des neutrons de 200 kev (géométrie de 120°), avec et sans écran de paraffine pour arrêter les neutrons en provenance directe de la source, ainsi que le spectre corrigé qui en découle.

La courbe 4b indique la variation d'efficacité du "long compteur" entre 80 et 200 kev en prenant pour référence la section efficace de diffusion neutron-proton.

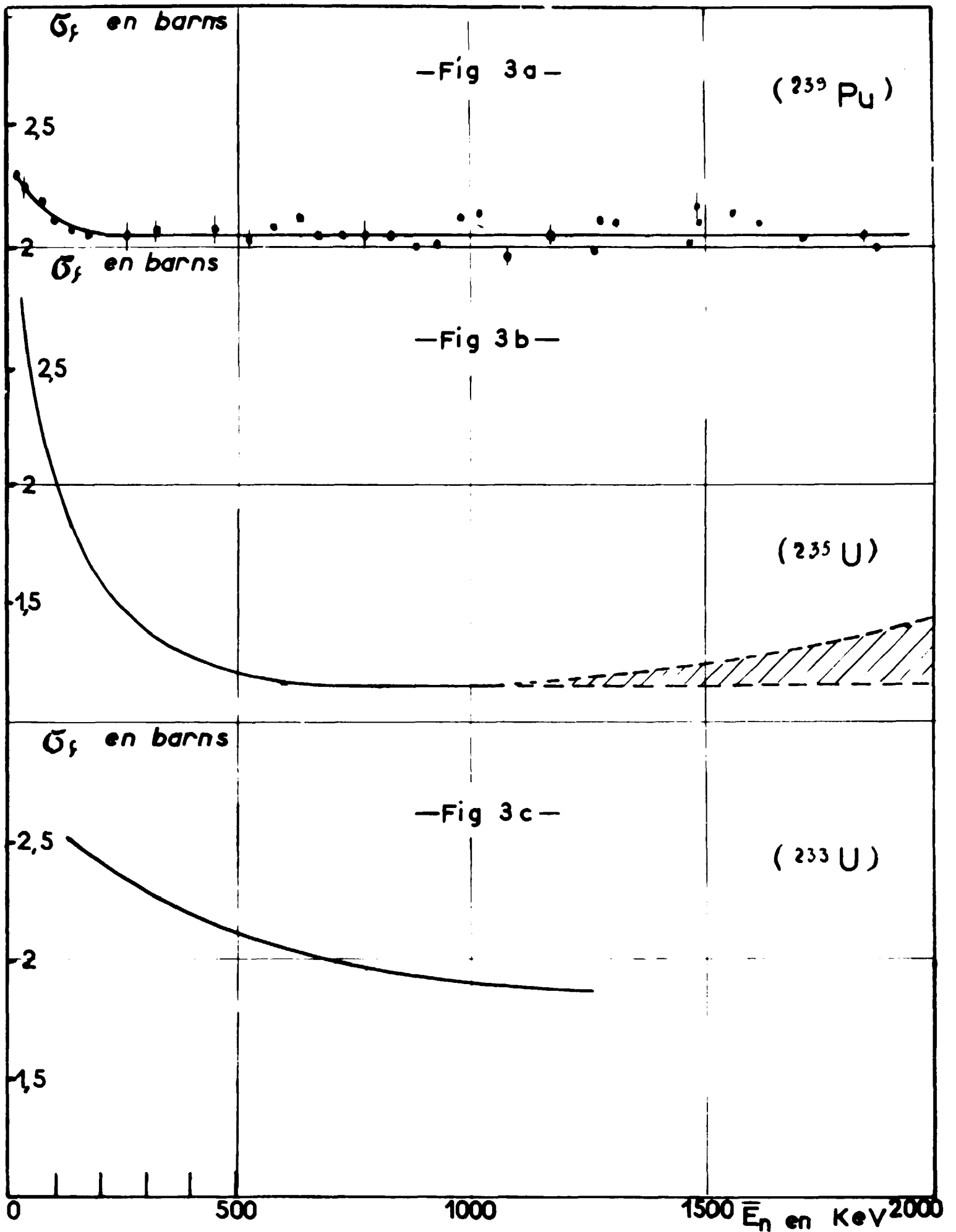
(9) Skyrme T.H.R., Tunnicliffe P.R. et Ward A.G., A proportional Counter for Neutron Flux Measurements in the Energy Range 0,1 to 1 Mev, Rev.Sci.Instr. 23 : 204 (1952).



- Fig . 1 -

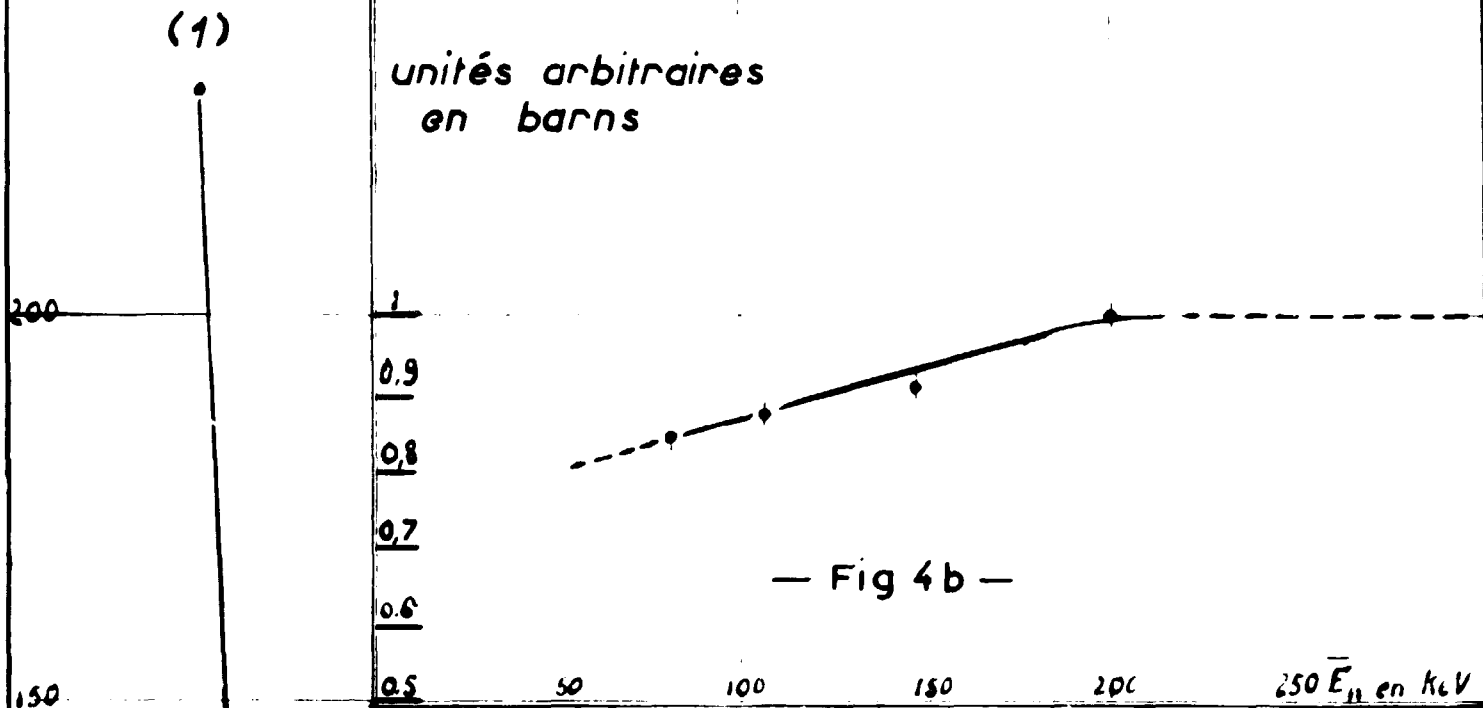


Section efficace de fission



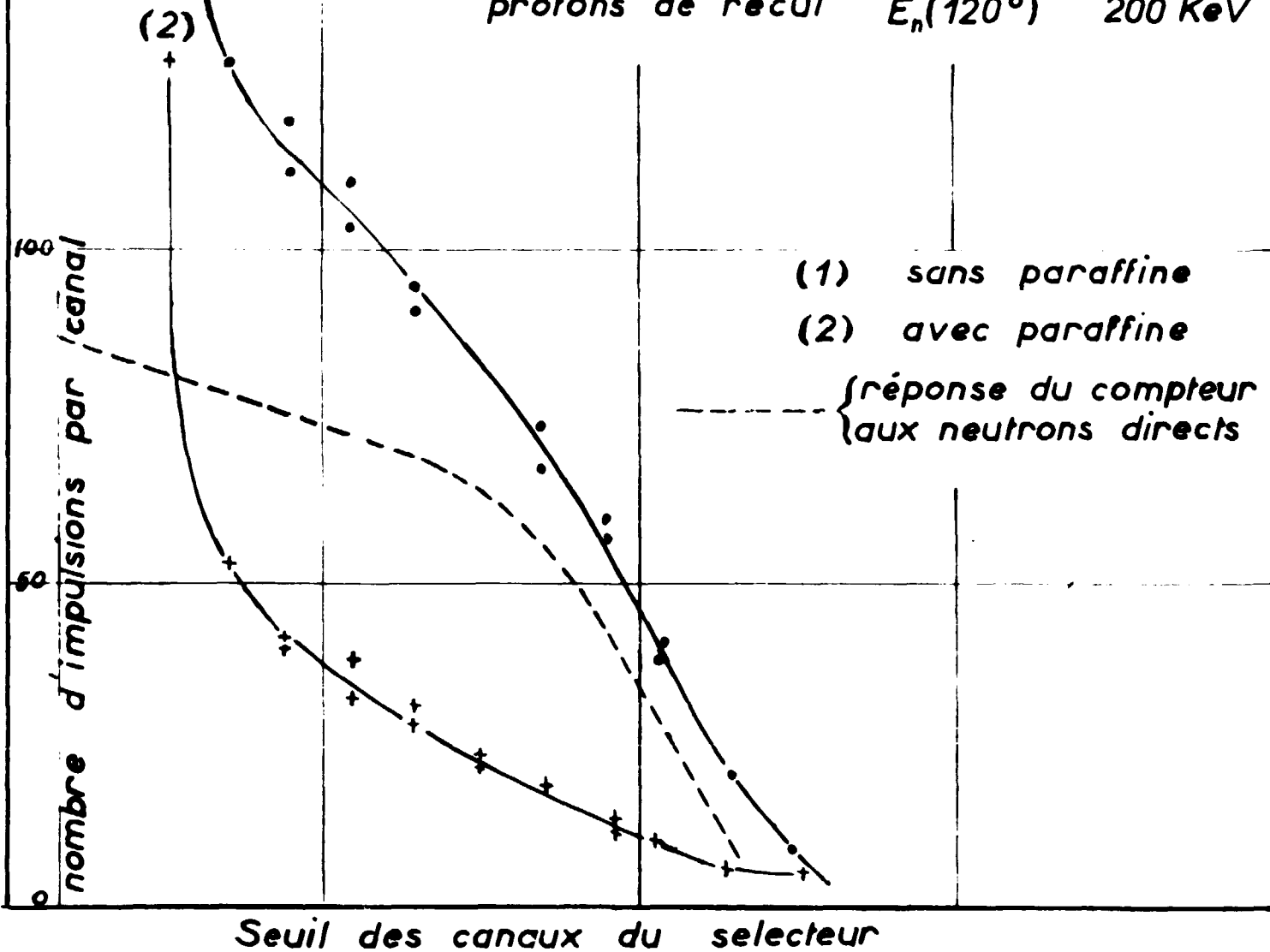
Efficacité du long compteur

unités arbitraires
en barns



— Fig 4b —

Spectre d'impulsions du compteur à protons de recul $\bar{E}_n(120^\circ)$ 200 KeV



- (1) sans paraffine
- (2) avec paraffine

{ réponse du compteur
aux neutrons directs

Seuil des canaux du selecteur

FIN