

# Étude des réactions $^{232}\text{Th}(n,xn)$ par la méthode de la spectroscopie gamma prompt

Stage de M2 effectué à l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) du CNRS  
groupe Données Nucléaires pour les Réacteurs  
sous la direction de Maëlle Kerveno

Eliot Party

Université de Strasbourg

13 juin 2016

# Plan

- 1 Contexte scientifique
  - Generation IV
  - Réactions nucléaires et réacteurs
- 2 Instruments et méthodes
  - Dispositif expérimental
  - Méthode d'analyse
- 3 Résultats
  - Transitions et sections efficaces
  - Discussion
- 4 Conclusions et perspectives

# Défis de l'énergie nucléaire

Les défis :

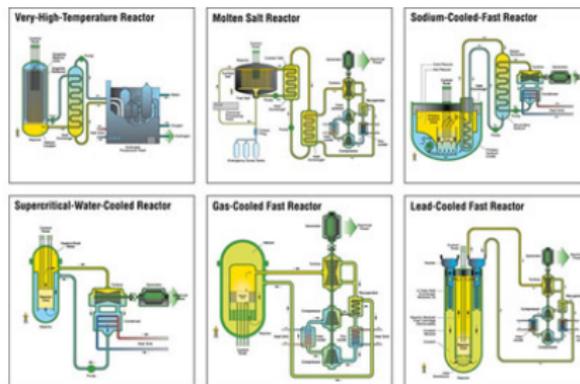
- Sûreté de l'opération
- Minimisation de la production de déchets nucléaires
- Traitement des déchets radioactifs
- Extension des réserves de combustible (par de nouveaux cycles de combustible)

Les développements :

- Réacteurs de Generation III+ (EPR, etc.)
- Recyclage du combustible
- Cycle de combustible  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ ,  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$
- Réacteurs de Generation IV



Chantier de l'EPR de Flamanville.



Les six concepts de réacteur de Generation IV.



# Enjeux des données nucléaires

Pour certaines données nucléaires :

- Déviation importante suivant les évaluations
- Peu de données expérimentales
- Impact important sur les simulations

Étude de sensibilité aux données nucléaires

→ « High Priority Request List » de l'Agence pour l'énergie nucléaire (NEA)

L'amélioration des données évaluées passent par :

- De nouvelles mesures précises
- L'amélioration du pouvoir prédictif des modèles
- Un nouveau travail d'évaluation associé

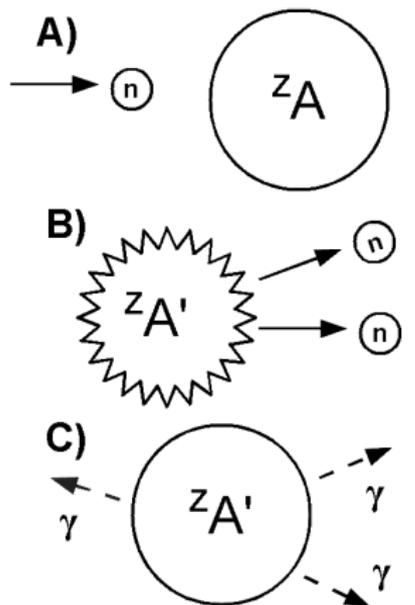
# Réactions $(n,xn)$

Modes d'études possibles :

- Détection des neutrons secondaires, renseigne sur le spectre des neutrons émis
- Mesure d'activation : renseigne sur la section efficace totale, nécessite des temps de vie adaptés
- Spectroscopie gamma prompte

La spectroscopie gamma prompte donne :

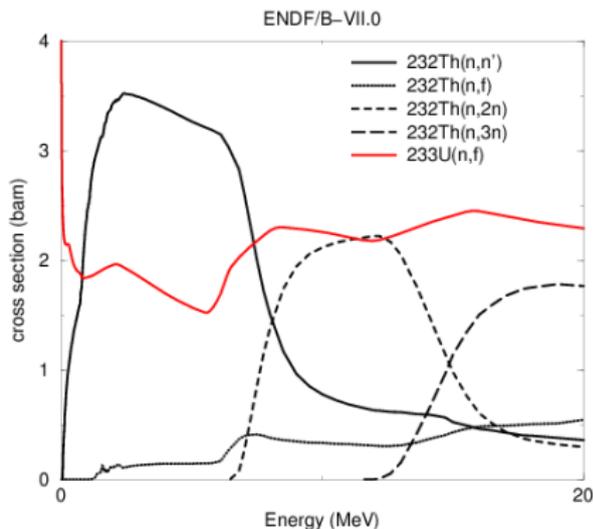
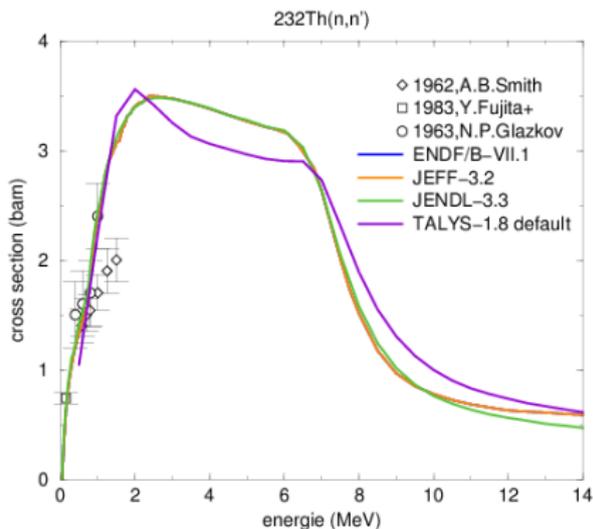
- Les niveaux d'énergie du noyau résiduel peuplés
- La dépendance angulaire des gammas émis
- La possibilité de remonter à la section efficace totale



Étapes d'une réaction  $(n,xn)$

Sujet : Étude des réactions  $^{232}\text{Th}(n,xn\gamma)$  par la méthode de la **spectroscopie gamma prompt**

- Thorium : Son incorporation dans le cycle du combustible envisagée.
- $(n,xn)$  : Sa connaissance est nécessaire pour la bonne marche des réacteurs futurs
- Spectroscopie gamma prompt : Bonne contrainte des modèles et faisabilité expérimentale.



# Faisceau GELINA à l'IRMM

Auprès de Joint Research Centre - Institute for Reference Materials and Measurements (JRC - IRMM)

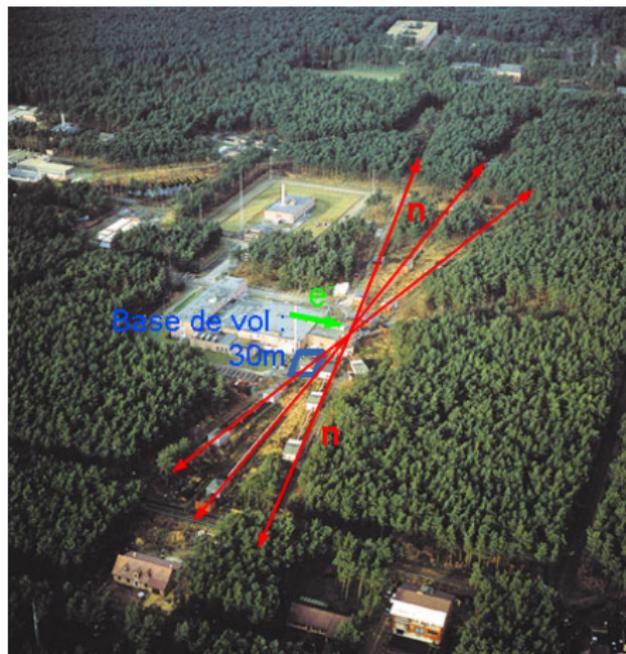
À Geel, en Belgique. Un accélérateur linéaire :

- Faisceau d'électrons de 70 à 140 MeV d'énergie
- Fréquence de 800Hz.
- Courant de 12 A en pointe,  $100\mu\text{A}$  en moyenne

Impact sur une cible d'uranium

→ Rayonnement de freinage → Photofission

- Neutrons de qq keV à 20 MeV
- Envoyés dans 12 bases de vol de 10 à 400m
- Fréquence de 800Hz.
- $4.3 \times 10^{10}$  neutrons par impulsion
- soit  $3.4 \times 10^{13}$  neutrons par seconde

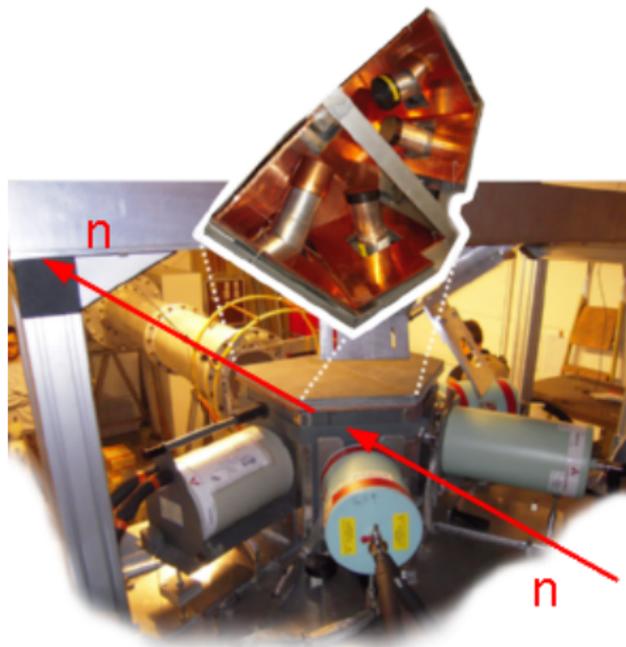
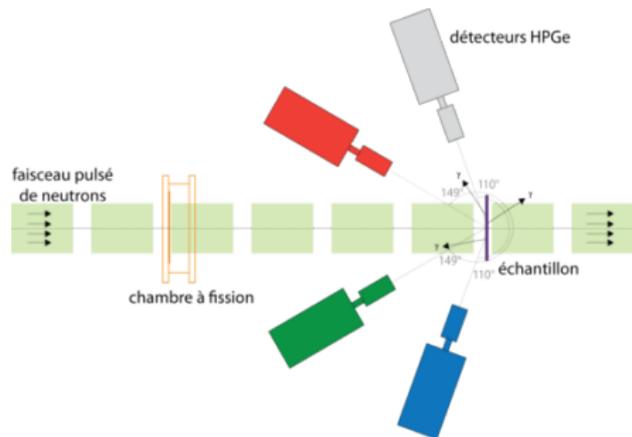


GELINA vue du ciel

# Dispositif expérimental : GRAPhEME

GRAPhEME (GeRmanium array for Actinides PrEcise MEasurements), c'est :

- Quatre détecteurs Germanium, positionnés à  $110^\circ$  et  $150^\circ$
- Une chambre à fission
- Un blindage de cuivre-plomb-cadmium
- Une cible de thorium  $^{232}\text{Th}$  ( $6 \times 6 \times 0.03 \text{ cm}$ ; 12g) à 30 mètres de la source de neutrons
- Acquisition digitale 100MHz par cartes TNT2.



GRAPhEME installé à GELINA

Le calcul des sections efficaces de production ( $n, xn\gamma$ ) passe par les formules suivantes :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta_i, E_n) = \frac{N_\gamma(\theta_i, E_n)}{4\pi\phi_n(E_n)\rho_{Th}}$$

$$\sigma_{tot}(E_n) = 4\pi \times (0.6521 \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta = 110^\circ, E_n) + 0.3479 \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta = 150^\circ, E_n))$$

Avec :

$\rho_{Th}$ , fixé par la cible utilisée

$\phi_n(E_n)$ , obtenu à l'aide de la chambre à fission

$N_\gamma(\theta_i, E_n)$ , obtenu à l'aide des détecteurs Germanium placé à l'angle  $\theta_i$

L'analyse des données est effectuée avec le logiciel ROOT.

# Analyse de données : Flux de neutrons

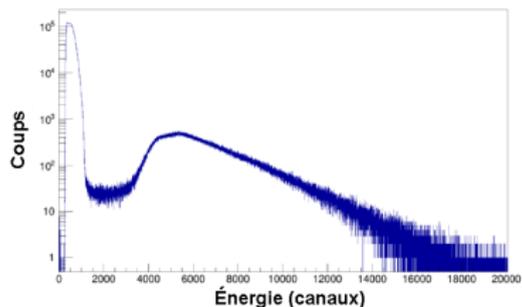
Chambre à fission :

- Feuille d'uranium  $^{235}\text{U}$  de moins de  $1\mu\text{m}$  d'épaisseur.
- Dans un gaz sous tension (compteur proportionnel)
- Détection des PFs issus des fissions produites par neutron
- Temps de vol  $\rightarrow$  Énergie des neutrons
- Section efficace fission  $^{235}\text{U} \rightarrow$  Nombre de neutrons

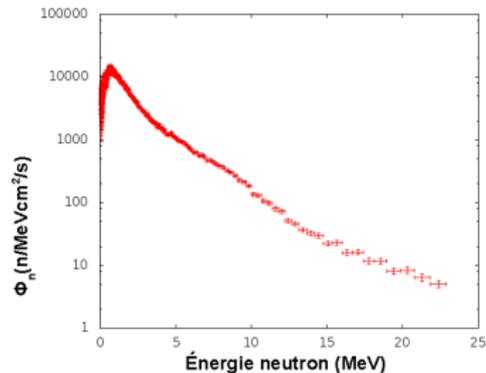
Formule pour l'obtention du flux :

$$\phi_n(E_n) = \frac{N_{det}(E_n)}{\sigma_f(E_n)\rho_s\epsilon}$$

Logiciel utilisé : ROOT



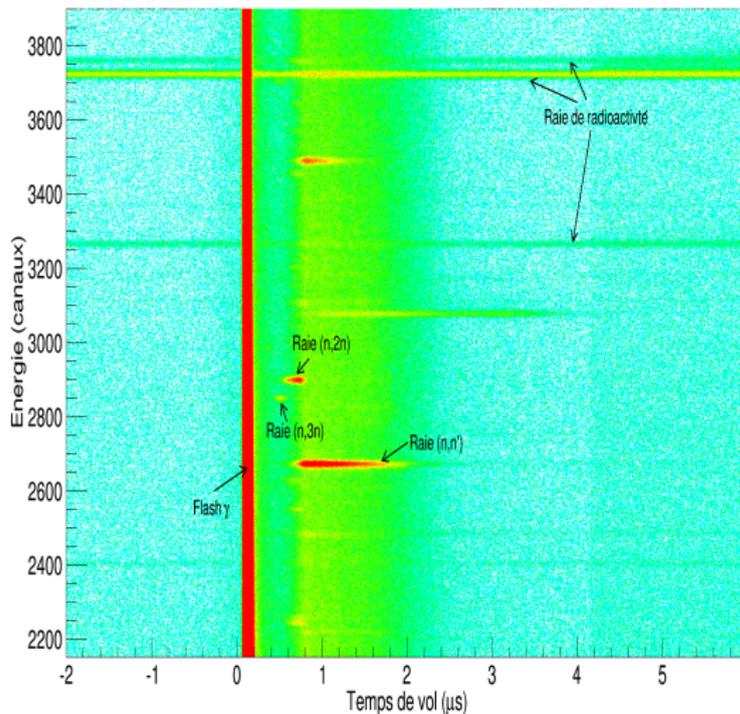
Spectre en énergie des évènements de la chambre à fission



Spectre en énergie du flux de neutrons

# Analyse de données : Distribution en énergie gamma et temps de vol

- Données analysées avec ROOT
- Présence de nombreuses raies
- Calibration en énergie  $\gamma$  par une source d'Eu.
- Temps de vol  $\rightarrow$  Énergie des neutrons



Répartition en énergie et temps de vol pour un détecteur

# Détermination du nombre de coups par transition

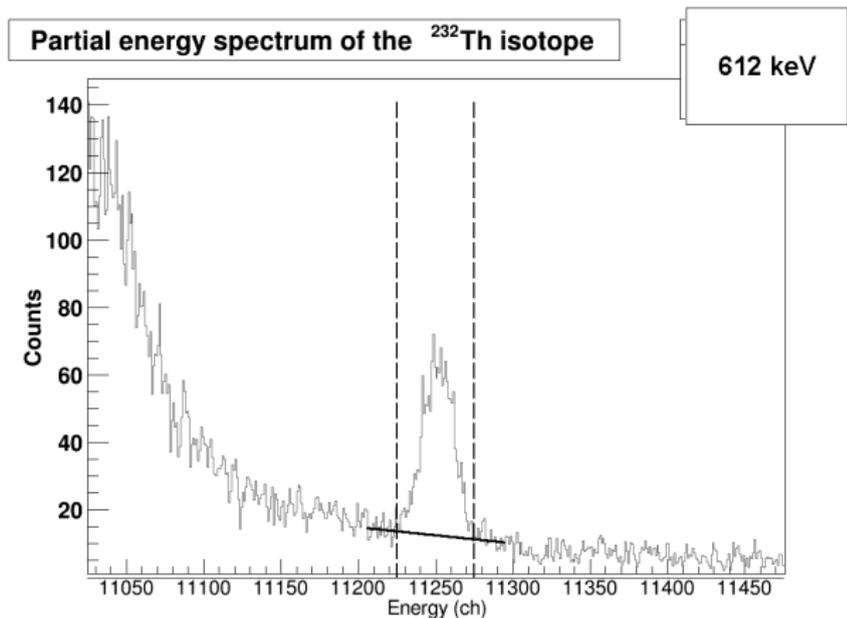
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 0.79 à 0.85 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

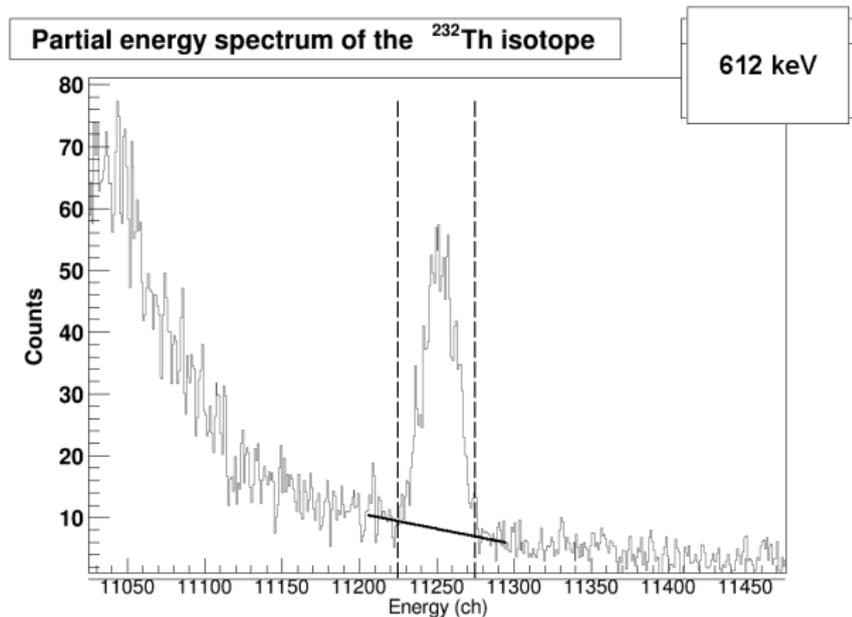
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 0.85 à 0.88 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

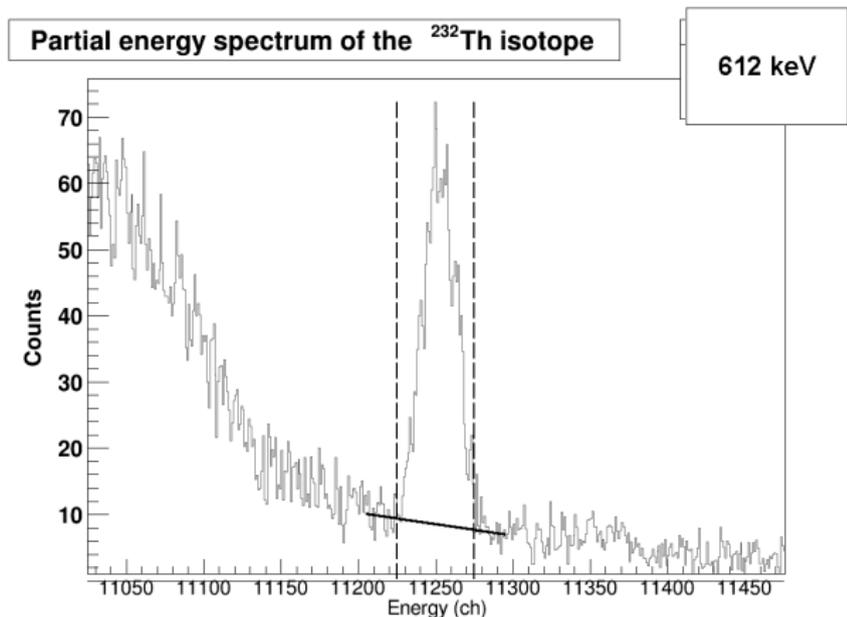
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 0.93 à 0.96 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

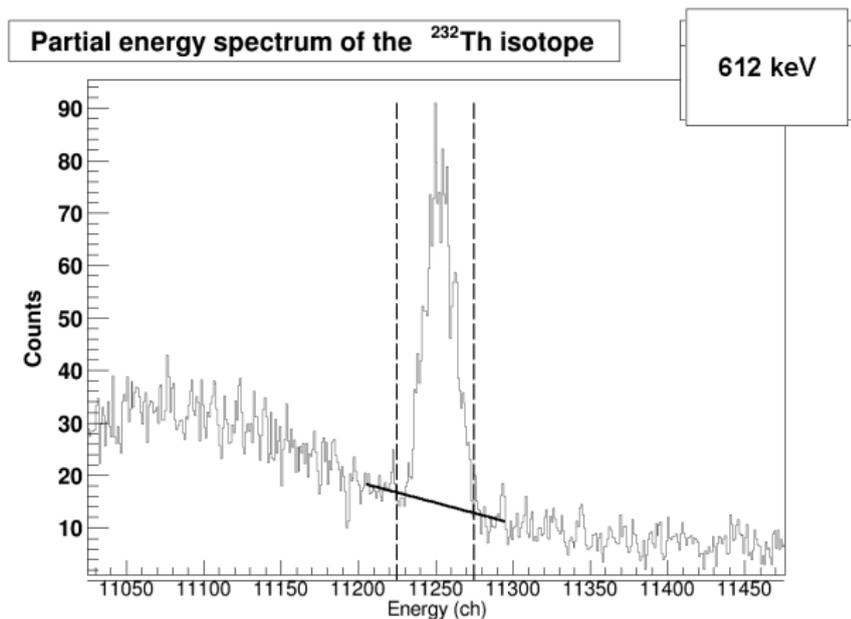
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 1.16 à 1.19 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

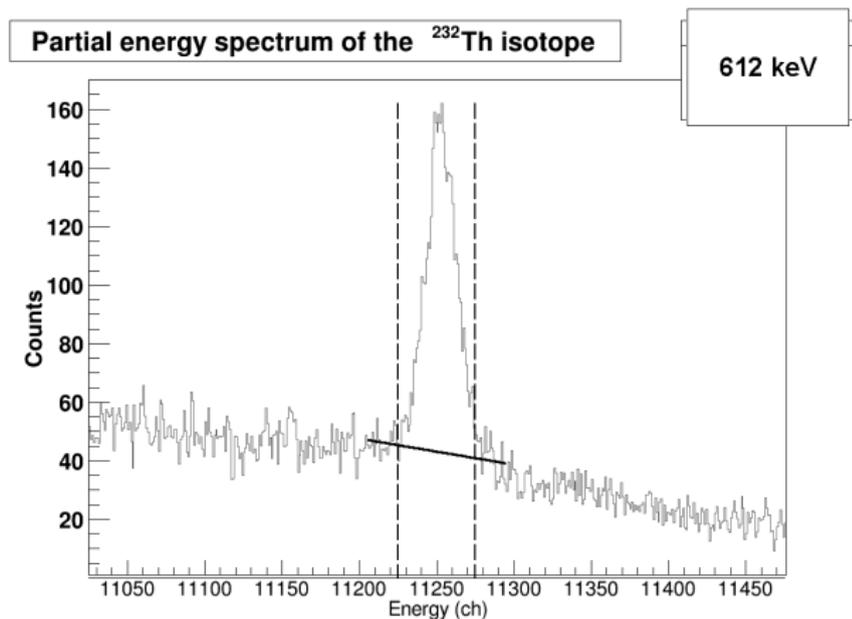
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 1.50 à 1.56 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

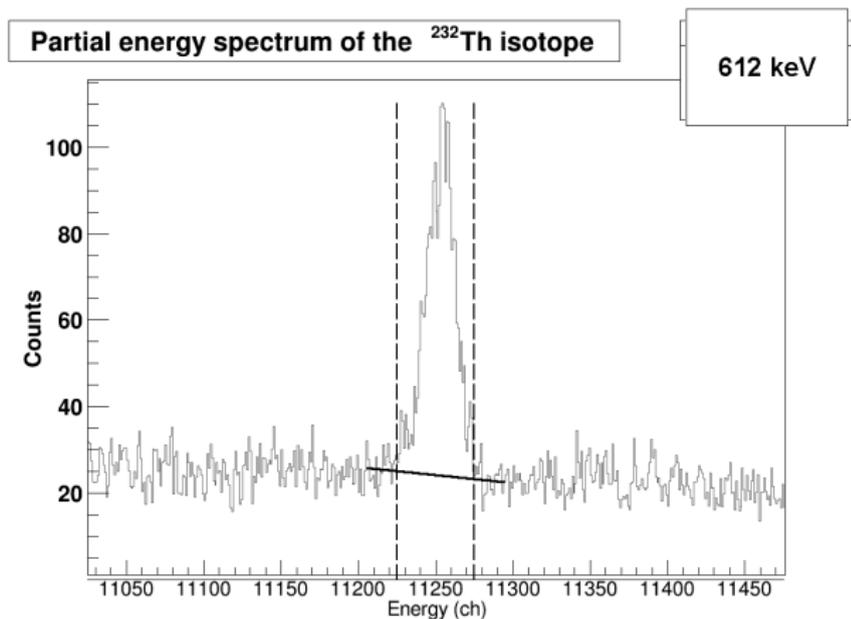
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 2.39 à 2.46 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

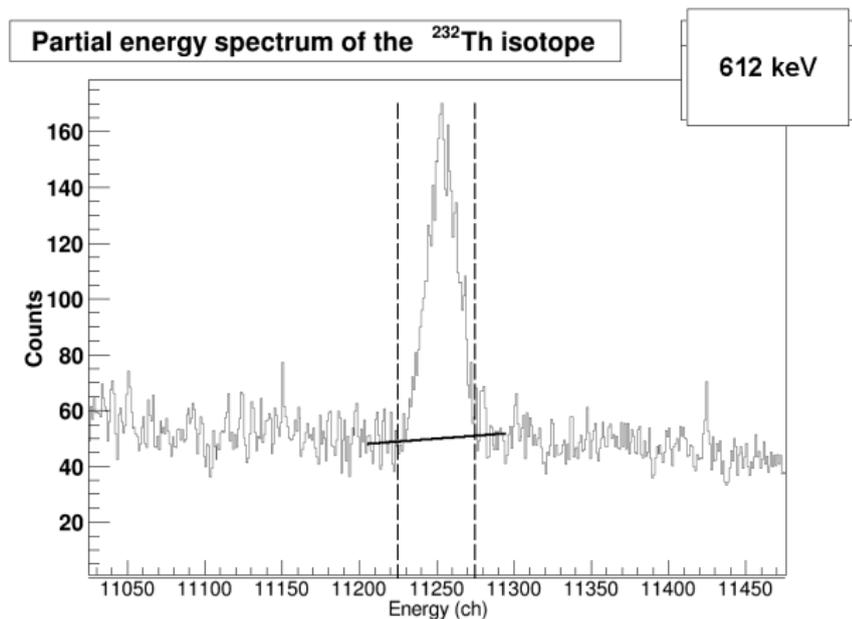
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 6.05 à 6.84 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

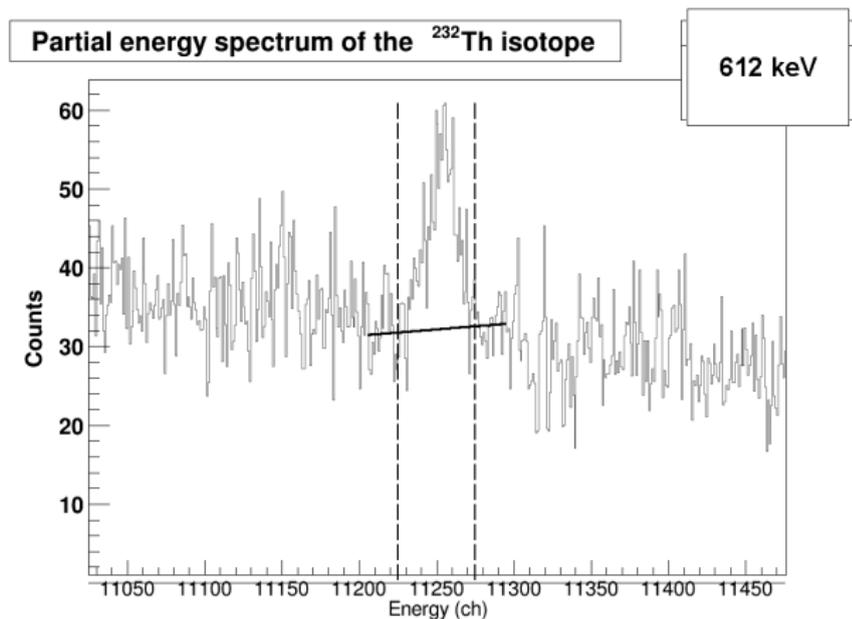
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 8.22 à 10.09 MeV

# Détermination du nombre de coups par transition

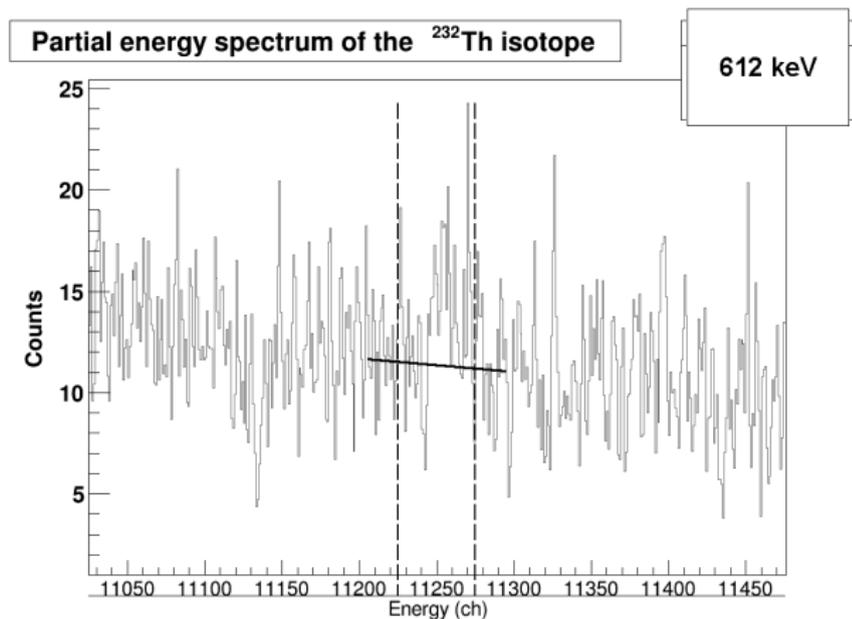
Logiciel utilisé : ROOT

Deux étapes :

- Soustraire le fond : interpolation linéaire
- Compter les coups dans le pic

Répétées pour :

- Plusieurs fenêtres en énergie neutron
- Plusieurs transitions différentes



Énergie neutron de 12.67 à 16.40 MeV

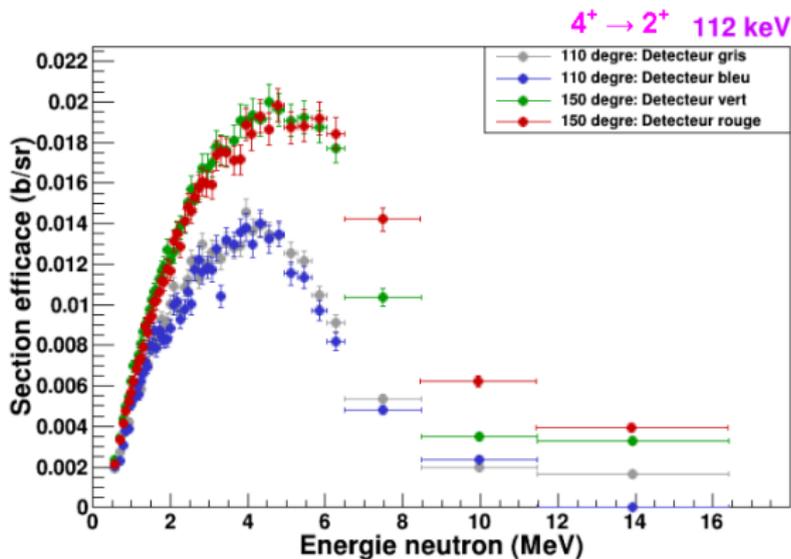
# Section efficace différentielle

Section efficace différentielle :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta_i, E_n) = \frac{N_{det}(\theta_i, E_n)}{4\pi\phi_n(E_n)\rho_{Th}}$$

Calculée pour chaque détecteur

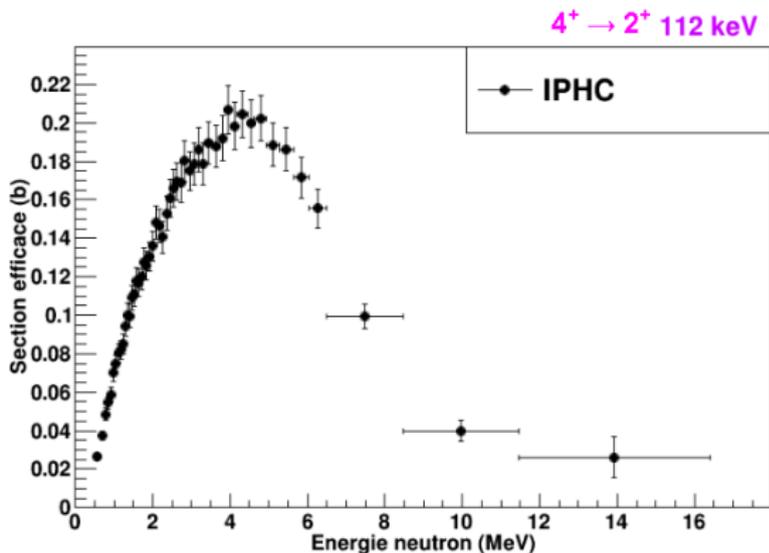
Dépendance angulaire visible



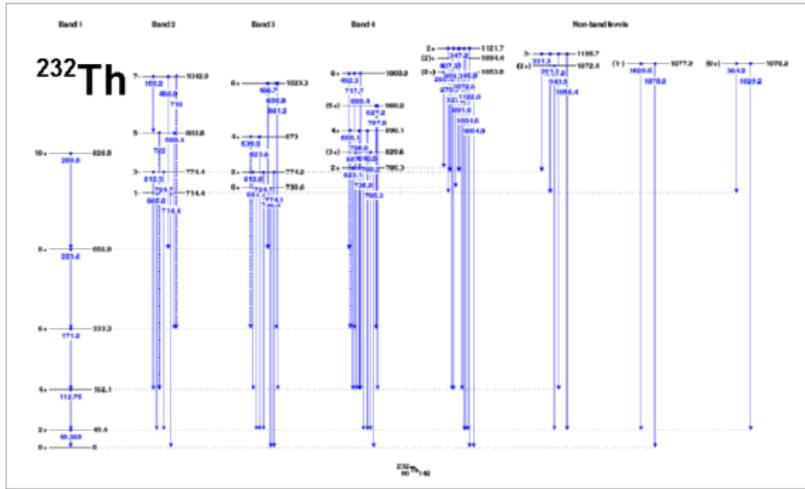
# Obtention de la section efficace totale

Prise en compte de la dépendance angulaire par la quadrature de Gauss :

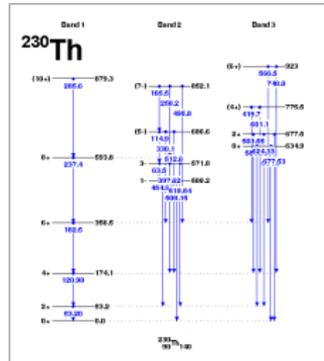
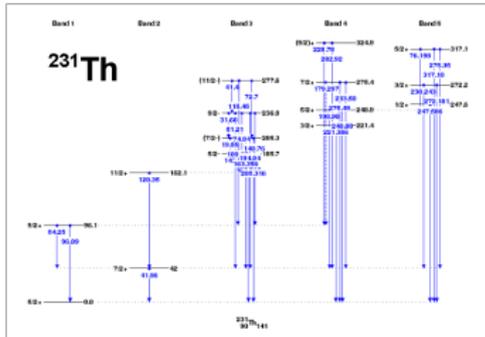
$$\sigma_{tot}(E_n) = 4\pi \times (0.6521 \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta = 110^\circ, E_n) + 0.3479 \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta = 150^\circ, E_n))$$



# Transitions observées

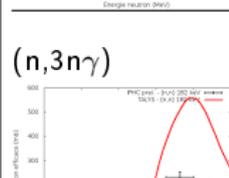
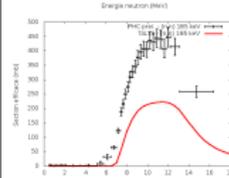
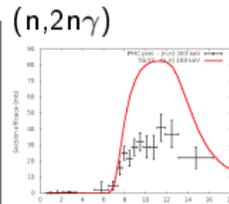
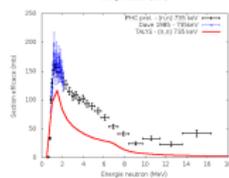
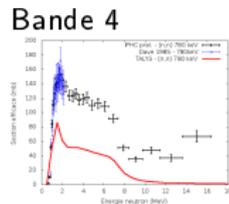
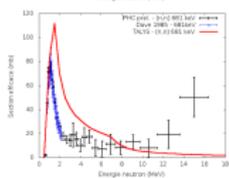
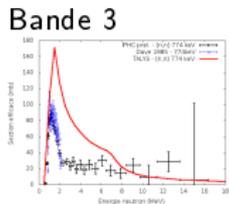
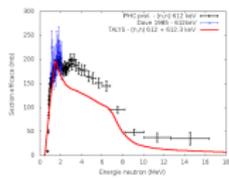
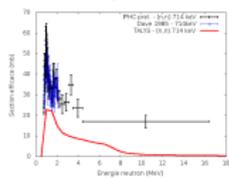
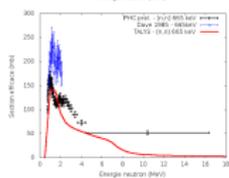
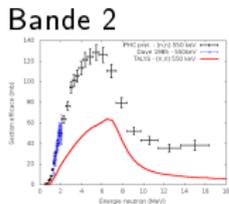
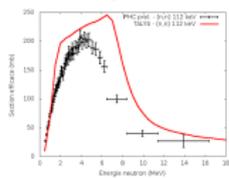
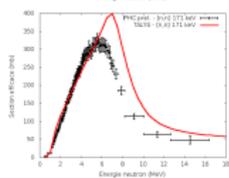
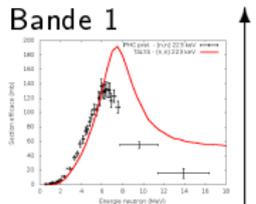


- $^{232}\text{Th}$  : 43 transitions observés, soit jusqu'à 1200 keV d'énergie d'excitation
- $^{231}\text{Th}$  : 12 transitions observées, soit jusqu'à 325keV d'énergie d'excitation
- $^{230}\text{Th}$  : 4 transitions de la bande principale, première exclue.



# Sections efficaces extraites

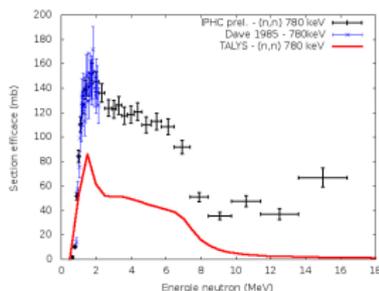
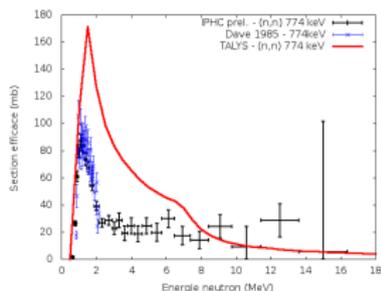
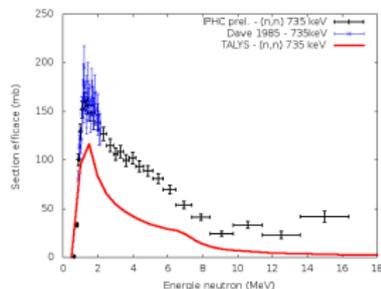
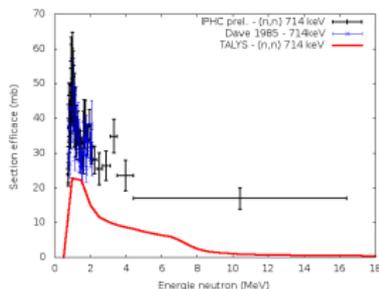
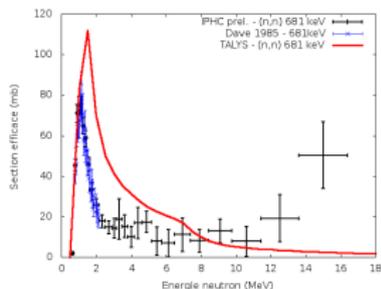
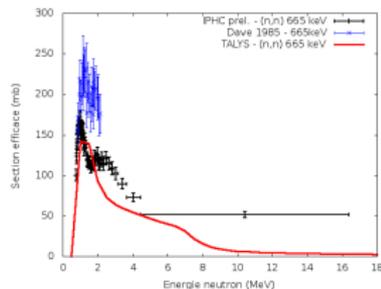
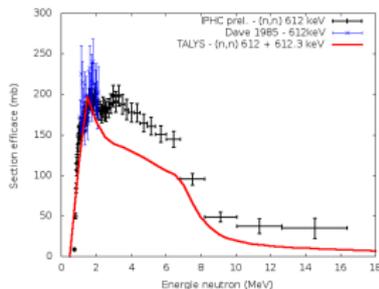
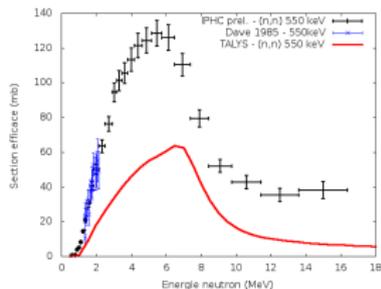
(n,n' $\gamma$ )



$E^*$

Légende :  
 + IPHC  
 + Dave (1985)  
 - TALYS

# Comparaison des sections efficaces ( $n, n'\gamma$ ) avec la bibliographie



Légende :

+ IPHC

+ Dave (1985)

- TALYS

Très bon accord avec les mesures de Dave (1985).

# Code de réaction TALYS

TALYS est un code de réaction nucléaire :

- Développé par NRG Petten (Pays-Bas) et CEA Bruyères-le-Châtel, France
- Sous licence publique GNU
- Vise à produire des simulations précises des réactions nucléaires de 1 keV à 200 MeV
- Utilisé pour analyse d'expérience et comme fournisseur de données nucléaires (base TENDL)
- Dernière version 1.8 utilisée, Dec. 2015

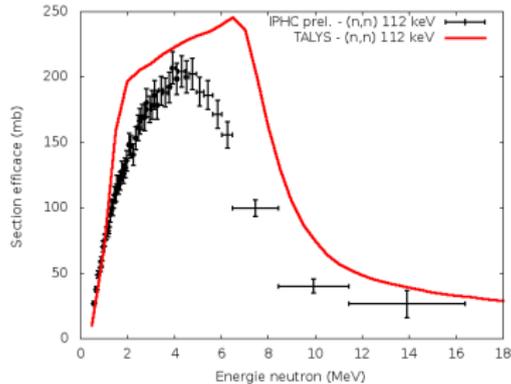
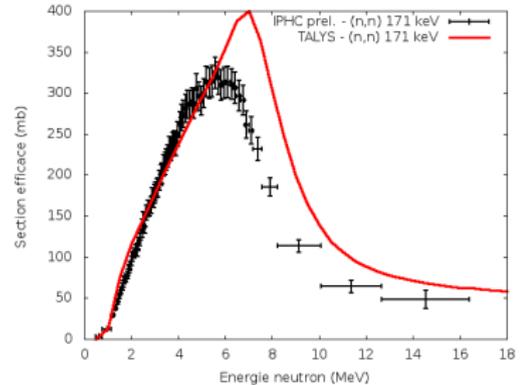
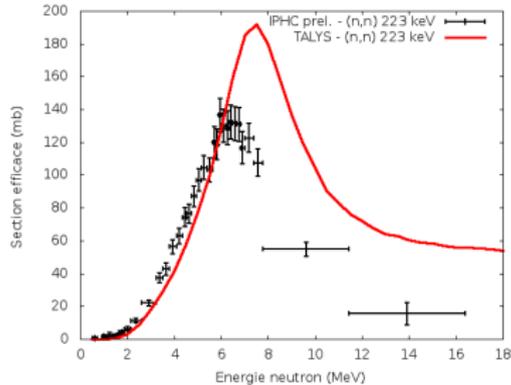
Présente :

- Nombreux modèles pour les réactions directes, composées, de pré-équilibre et de fission.
- Spectre des particules émises
- Interface simple
- Programme source transparent

# Comparaison des mesures avec TALYS

- **Bande rotationnelle :** Comportement bon à basse énergie surestimé par TALYS aux hautes énergies
- **Transitions interbandes :** Forme et intensité différentes
- **Réaction (n,2n), seuil de TALYS** surestimé Intensité différente

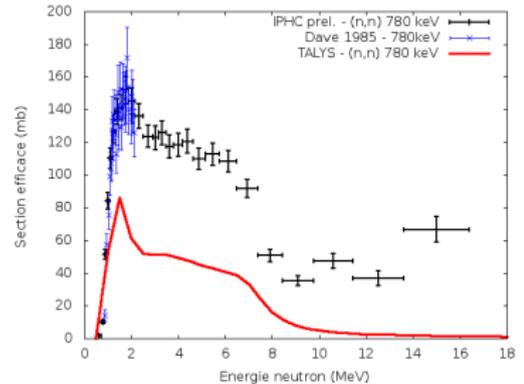
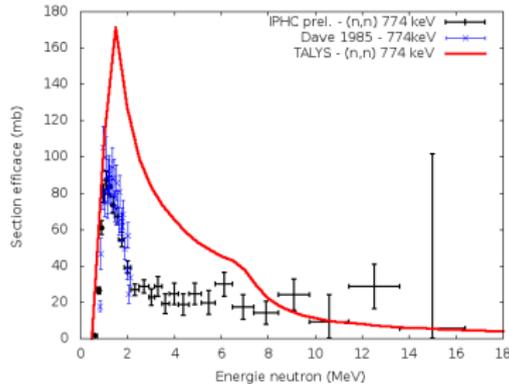
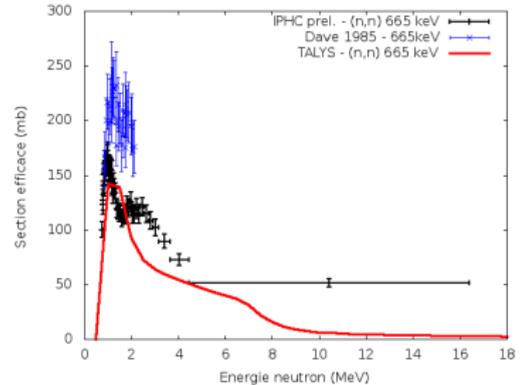
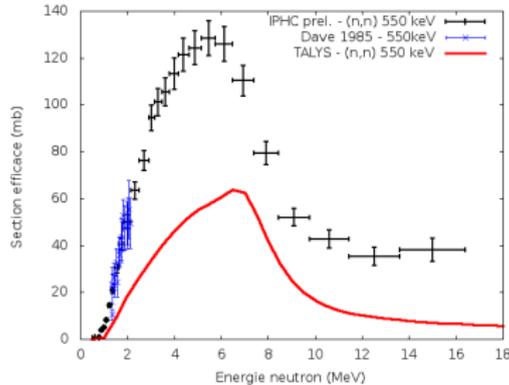
(n,n' $\gamma$ ) : Bande rotationnelle



# Comparaison des mesures avec TALYS

- Bande rotationnelle : Comportement bon à basse énergie surestimé par TALYS aux hautes énergies
- Transitions interbandes : Forme et intensité différentes
- Réaction  $(n,2n)$ , seuil de TALYS surestimé Intensité différente

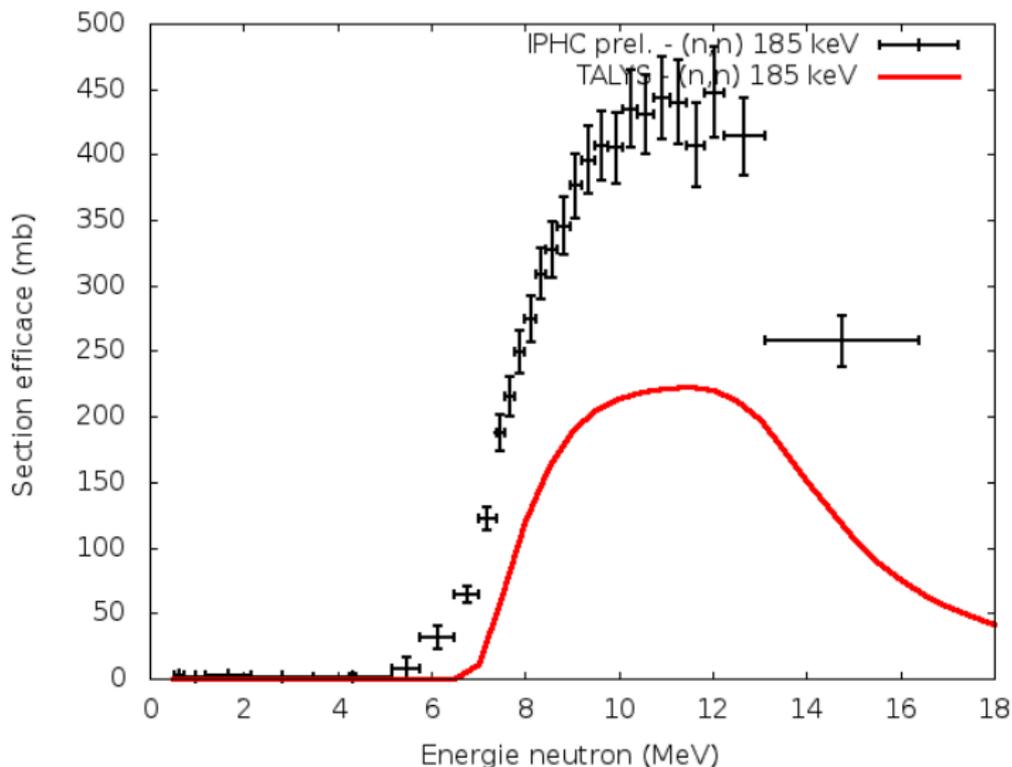
$(n,n'\gamma)$  : Transitions interbandes



# Comparaison des mesures avec TALYS

- Bande rotationnelle : Comportement bon à basse énergie surestimé par TALYS aux hautes énergies
- Transitions interbandes : Forme et intensité différentes
- Réaction  $(n,2n)$ , seuil de TALYS surestimé Intensité différente

$(n,2n\gamma)$  :



# Conclusion

- 43 transitions de  $^{232}\text{Th}$ , 8 transitions de  $^{231}\text{Th}$  et 4 transitions de  $^{230}\text{Th}$  identifiées
- Obtention de 11 sections efficaces ( $n,n'\gamma$ ), 2 ( $n,2n\gamma$ ) et 1 ( $n,3n\gamma$ ), dont 6 inédites.
- Très bon accord avec la bibliographie pour les transitions déjà mesurées
- Importantes divergences avec les prédictions de TALYS (en utilisant les paramètres par défaut)

Plusieurs travaux restent à faire ou sont engagés suite à ces résultats.

- Obtenir les sections efficaces d'un maximum de transitions, plus précisément
- Optimiser les paramètres des modèles de TALYS pour accorder prévisions théoriques et mesures, en collaboration avec les théoriciens du CEA  
Identique au travail en cours sur l'uranium 238
- Remonter aux sections efficaces totales  $(n,n')$  et  $(n,2n)$
- Collecte de données en cours sur l'autre noyau clé du cycle du thorium :  $^{233}\text{U}$ , utilisant de nouveaux détecteurs