## Les données nucléaires

our décrire le cheminement des neutrons dans la matière, les réactions en chaîne\* et les modifications de la composition de la matière dues aux réactions nucléaires, la neutronique a besoin de données de base : sections efficaces microscopiques\* caractérisant les probabilités d'interaction entre les neutrons et la matière, observables post-fission (spectre et multiplicité des neutrons émis par fission\*, rendements de fission\*), données de décroissance radioactive\*

des radionucléides formés par les réactions nucléaires en jeu, nature et énergie des rayonnements émis. La détermination de ces données se fait à l'aide d'expériences et de modèles théoriques de physique nucléaire. Le travail complexe d'analyse de l'ensemble de ces données est mené par des experts **évaluateurs\***. Il conduit à la production de bases de données nucléaires internationales.

## De la mesure à l'évaluation des données nucléaires

es besoins en données nucléaires évaluées pour la physique des réacteurs nucléaires s'expriment au travers des études liées aux réacteurs actuels, mais aussi au travers de concepts innovants de réacteurs de générations III (par exemple EPR\*) et IV (ASTRID\*). Les conclusions des dossiers de qualification\* des formulaires\* et outils de calcul fondés sur la bibliothèque de données nucléaires évaluées JEFF\* (Joint Evaluated Fission and Fusion file) permettent de déterminer les précisions cibles sur les paramètres neutroniques et de pointer les biais provenant des données nucléaires. Plusieurs actions doivent donc être menées de front : (i) la participation/initiation/soutien aux mesures microscopiques des sections efficaces auprès d'installations existantes ou nouvelles, (ii) le développement de nouveaux outils et codes d'évaluation des données nucléaires pour une maîtrise croissante en termes de modélisation physique et d'estimation des incertitudes (le code CONRAD\*), (iii) l'évaluation des données nucléaires associées et (iv) le traitement de ces données nucléaires, afin de les utiliser dans les codes de calcul de neutronique (le système GALILÉE).

La mise en œuvre se fait dans un contexte de collaboration étroite au sein du CEA (DAM-DEN-DSM), ainsi qu'avec des organismes nationaux et internationaux. L'ensemble de ces travaux est promu *via* le groupe JEFF [1] de l'OCDE/AEN.

## Les sections efficaces dans le domaine des résonances résolues, non résolues et le continuum

La modélisation des sections efficaces neutroniques est fondée sur des modèles de réactions nucléaires dont les paramètres (*e.g.* les caractéristiques des **résonances**\*) ne sont pas prédits avec suffisamment de précision à l'heure actuelle par des théories physiques microscopiques. Ils sont donc ajustés sur un jeu d'observations (mesures). On analyse alors trois types d'expériences, les expériences microscopiques, les expériences intégrales analytiques qui ciblent l'influence d'un nucléide particulier et des expériences maquettes qui sont représentatives de concepts de réacteurs. Ces dernières seront détaillées dans le paragraphe consacré à la qualification des données nucléaires (voir *infra*, p. 162-182).

## Les expériences microscopiques par « temps de vol »

Parmi les données de base nécessaires aux calculs de neutronique, les sections efficaces jouent un rôle essentiel. Les sections efficaces en fonction de l'énergie du neutron incident sont dites « microscopiques », par opposition ici aux sections efficaces intégrales dont les résultats sont des quantités intégrées sur le spectre en énergie des neutrons incidents. En Europe, seules deux installations permettent d'effectuer ce genre de mesures : l'accélérateur linéaire GELINA (GEel LINear Accelerator) de l'Institut des Matériaux et des Mesures de Référence (IRMM) installé à Geel (Belgique) et l'installation n-TOF située au CERN à Genève (Suisse). Toutes deux utilisent la technique du « temps de vol », qui consiste à mesurer précisément le temps mis par un neutron entre le moment de sa création et le moment où il interagit avec une cible. La connaissance de ce temps de vol du neutron et de la distance parcourue par celui-ci permet d'en déduire son énergie. Nous allons décrire brièvement l'installation de Geel avec laquelle le CEA entretient depuis de nombreuses années une collaboration très fructueuse.

#### L'installation GELINA

Cette installation est l'une des plus puissantes sources de neutrons au monde, qui se caractérise à la fois par sa très grande résolution en énergie, mais aussi par son large spectre en énergie (de quelques milli-électronvolts à plusieurs millions d'électronvolts). Son principe de fonctionnement (voir fig. 3) repose sur l'accélération d'un faisceau pulsé d'électrons très intense qui vient heurter une cible rotative d'uranium. Typiquement, ces bouffées d'électrons (d'une durée de quelques nanosecondes) sont émises 800 fois par seconde. En pénétrant dans une cible rotative d'uranium naturel, les électrons perdent leur énergie en créant un rayonnement de freinage\*, dit « de Bremsstrahlung\* », qui produit des réactions produisant un neutron [réactions ( $\gamma$ , n)] ou créant une fission [réaction de photofission ( $\gamma$ , f)]. Les réactions ( $\gamma$ , n) donnent naissance à un spectre de neutrons pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines de MeV, alors que les réactions ( $\gamma$ , f) fournissent un spectre de fission dont l'énergie moyenne est d'environ 2 MeV. Afin de créer des neutrons de plus basse énergie (notamment pour couvrir la zone thermique), les neutrons sont ralentis dans deux conteneurs en béryllium contenant de l'eau et placés au-dessus et en-dessous de la cible rotative. Une fois émis puis ralentis, les neutrons passent dans les bases de vol où des dispositifs de plomb, de cuivre et de paraffine assurent la collimation du faisceau. Environ 4,3 x 1010 neutrons par bouffée d'électrons sont créés [2].



Fig. 3. Schéma général de la partie accélératrice des électrons (haut) de l'installation GELINA à Geel (Belgique). La salle des cibles où sont créés les neutrons (bas) débouche sur les bases de vol dont les longueurs varient de 8 à 400 m (photos IRMM).

Parmi les mesures réalisées par temps de vol, celles « de transmission », consistant à mesurer la fraction de neutrons transmise à travers un échantillon placé sur le trajet du faisceau de neutrons, sont indispensables à l'évaluation des sections efficaces induites par neutron. La figure 4 montre un exemple d'une telle mesure réalisée avec des échantillons d'hafnium naturel de trois épaisseurs différentes [3]. L'analyse des résonances clairement visibles sur cette figure consiste à modéliser, à l'aide de la *théorie de la matrice R* (voir paragraphe ci-après), les structures observées en tenant compte de nombreuses corrections expérimentales.



Fig. 4. Mesures de transmission réalisées avec trois échantillons d'hafnium naturel de 15 mm, 2 mm et 1 mm d'épaisseur [3]. Les structures observées correspondent aux résonances des six isotopes du hafnium.

# Les mesures intégrales analytiques de sections efficaces

Le projet Mini-Inca à l'Institut Laue Langevin (ILL) de Grenoble

Dans le cadre de l'étude de faisabilité de la **transmutation**\* d'un certain nombre d'**actinides mineurs**\*, le CEA, en collaboration avec l'Institut Laue Langevin (ILL) de Grenoble (France), a mis en place un dispositif capable de mesurer les sections efficaces (capture et fission) intégrées sous différents spectres neutroniques [4]. Ce projet expérimental « Mini-Inca » s'est déroulé auprès du réacteur de l'Institut Laue Langevin qui délivre un flux de neutrons parmi les plus élevés au monde ( $1,5 \times 10^{15}$  n/s/cm<sup>2</sup>). Ces mesures de sections efficaces dites « intégrales », c'est-à-dire « moyennées » sur un spectre d'énergie du neutron incident, utilisent différents canaux d'irradiation placés dans le cœur du réacteur. Selon la position de l'échantillon à l'intérieur de ces canaux, il est possible de faire varier l'intensité et le spectre des neutrons incidents, comme l'illustre la figure 5.

Ainsi, dans le canal V4, un échantillon placé à une hauteur de 100 cm sera irradié par un flux de neutrons purement **thermiques**\*, tandis qu'à 0 cm (très proche du combustible du réacteur), une composante de neutrons **épithermiques**\* apparaît (environ 15 %).

Après l'irradiation, le **taux de capture**\* de l'échantillon peut être mesuré par spectroscopie *alpha* et/ou *gamma*, afin d'en déduire la section efficace de capture. De même, l'utilisation de chambres à fission miniaturisées fabriquées par le Service de Physique Expérimentale (SPEX) du CEA permet de déterminer le **taux de fission**\* à partir duquel la section efficace de fission peut être calculée.

De la mesure à l'évaluation des données nucléaires



Fig. 5. Variation de l'intensité et du spectre de neutrons servant à irradier un échantillon dont on veut mesurer la section efficace. Selon le canal (V4 ou H9) et selon la position de l'échantillon à l'intérieur du canal, différents flux d'irradiation peuvent être obtenus (figure de O. Bringer [5]).



Fig. 6. Représentation de la section efficace de capture de l'U 238 (JEFF-3.1.1) et des flux de neutrons représentatifs d'un Réacteur à Neutrons Rapides (RNR) refroidi au sodium (courbe rouge) ou d'un Réacteur à Eau sous Pression (REP) [courbe bleue]. Les trois grands domaines en énergie (résonances résolues, résonances non résolues et continuum) sont également représentés.

## Les modèles de réactions nucléaires

Dans les domaines d'énergie de 0 eV à 20 MeV, domaine d'énergie de la physique des réacteurs, le calcul des sections efficaces neutroniques est fondé sur le modèle du noyau composé qui suppose que l'interaction neutron-noyau se déroule en deux étapes distinctes : la formation du noyau composé du noyau-cible et du neutron incident, puis sa décroissance, supposée par ailleurs indépendante du mode de formation.

La section efficace neutronique d'un noyau caractérise la probabilité qu'a un neutron d'interagir avec ce noyau. Cette probabilité peut devenir très grande, lorsque l'énergie du neutron incident est telle que l'énergie conférée au noyau composé est proche de l'énergie de l'un de ses niveaux d'excitation. Cela se traduit par une brusque remontée de la section efficace d'interaction entre le neutron et le noyau au voisinage de ces énergies. On dit alors que, pour ces énergies, le noyau « présente des résonances » ou bien qu'il est « résonnant ». Ces résonances sont bien séparées en énergie à basse énergie d'excitation (domaine des résonances résolues). Leur espacement diminue quand l'énergie d'excitation augmente (domaine des résonances non résolues) jusqu'à s'annuler (domaine du continuum).

Une des grandes difficultés de l'évaluation des données nucléaires vient de ce caractère résonnant des sections efficaces neutron-noyau, qui leur confère une dépendance en énergie à la fois complexe et très forte (fig. 6).

Le travail d'évaluation des sections efficaces neutroniques consiste à établir avec les codes CONRAD [6], **ECIS**\* [7] et **TALYS**\* [8], un ensemble cohérent de paramètres de modèles de réactions nucléaires permettant de décrire le domaine des résonances (résolues et non résolues) et le « continuum » jusqu'à quelques dizaines de MeV.

La figure 6 présente les limites de chaque région dans le cas de la section efficace de capture de l'uranium 238.

## CONRAD, un outil pour l'évaluation des sections efficaces

Le développement du code CONRAD, pour « COde for Nuclear Reaction Analysis and Data assimilation », correspond aux efforts déployés au sein du CEA pour se doter d'un outil moderne de modélisation des réactions nucléaires prenant en compte la propagation des incertitudes associées. Ce code permet de produire des évaluations utiles à la physique des réacteurs. Plus précisément, il permet l'analyse et l'évaluation des sections efficaces neutron-noyau totales et partielles (capture radiative, fission...) dans le domaine d'énergie allant de l'électronvolt au méga-électronvolt. Les paramètres de modèles de réactions nucléaires (matrice R. modèles optiques) sont estimés par ajustement des résulats de calcul sur des expériences microscopiques (transmission, rendement de capture...) et intégrales. CONRAD fournit, de surcroît, un cadre pour l'amélioration des modèles associés à la fission. Enfin, il permet l'estimation des incertitudes sur les paramètres de modèles de réactions nucléaires, en tenant compte de l'ensemble des incertitudes expérimentales, puis l'estimation des covariances sur les sections efficaces.

Les modèles de réactions nucléaires évoqués ont été soit développés dans l'outil (matrice *R*), soit intégrés *via* des interfaces (codes ECIS et TALYS). L'objectif majeur de CONRAD est de permettre l'intégration des différents modèles de physique nucléaire dans un cadre générique.

## Matrice de collision et sections efficaces

Les deux étapes de formation et de décroissance du noyau composé peuvent être définies par la notion de voie de réaction [9], dénommée c et caractérisée par :

- les paires de particules, avant ou après la réaction ;
- leurs **spins**\* (*i* et *I*) ;
- leur moment angulaire orbital relatif ( $\ell$ ) et sa projection (m) ;
- le spin de la voie (s = i + I) et sa projection  $(m_s)$ ;
- le moment angulaire total (J).

Le calcul des sections efficaces fait intervenir la matrice de collision U qui décrit la transition entre les fonctions d'onde entrantes et sortantes.

La section efficace partielle d'une voie d'entrée c vers une voie de sortie c' s'exprime alors par :

$$\sigma_{cc'} = \pi \bar{\lambda}_c^2 g_j |\delta_{cc'} - U_{cc'}|^2$$
(1)  
avec  $g_J = \frac{2J+1}{(2I+1)(2i+1)}$ 

 $\bar{\lambda}_c$  étant la longueur d'onde réduite associée à la voie c. La section efficace totale de la voie c est une fonction linéaire de la matrice de collision :

$$\sigma_c = 2\pi \bar{\lambda}_c^2 \sum_{c'} g_j (1 - Re(U_{cc'}))$$
<sup>(2)</sup>

Les modèles de réactions nucléaires fournissent alors la forme et le comportement, en fonction de l'énergie de cette matrice de collision.

#### Domaine des résonances résolues

Le formalisme de la matrice R [9] permet de déterminer la forme des éléments de la matrice de collision dans le domaine des résonances résolues.

Pour des neutrons, celle-ci s'exprime par :

$$U_{cc'} = e^{-i\left(\varphi_c + \varphi_{c'}\right)} \left\{ \delta_{cc'} + 2iP_c^{\frac{1}{2}} [(1 - RL^0)^{-1}R]_{cc'} P_{c'}^{\frac{1}{2}} \right\}$$
  
avec  $L_{cc'}^0 = (S_c + iP_c - B_c)\delta_{cc'}$  (3)

où  $\varphi_c$  est le déphasage de sphère dure,  $P_c$  et  $S_c$  sont respectivement le facteur de pénétrabilité et de décalage de la barrière de potentiel et  $B_c$  est une condition aux limites. Enfin, les éléments de la matrice R sont définis par :

$$R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E}$$
(4)

où  $\gamma_{\lambda c}$  représente les amplitudes de voie,  $E_{\lambda}$  l'énergie du niveau  $\lambda$  et *E* l'énergie cinétique (dans le référentiel du laboratoire) de la particule incidente.

Les amplitudes de voie et les énergies des niveaux (pris réels et indépendants de l'énergie par un choix judicieux des valeurs des conditions limites  $B_c$ ) sont ajustées par comparaison avec des mesures de sections efficaces. Les largeurs de voie  $\Gamma_{\lambda c}$ sont données par :  $\Gamma_{\lambda c} = 2\gamma_{\lambda c}^2 P_c$ .

La structure résonnante apparaît explicitement dans les termes  $(E_{\lambda} - E)$  qui se trouvent au dénominateur de la matrice *R*.

#### Domaine des résonances non résolues et continuum

Le domaine en énergie des résonances non résolues est un domaine intermédiaire entre le domaine des résonances résolues et le « continuum ». Sachant que l'espacement entre les résonances, ainsi que la résolution temporelle des spectromètres par temps de vol ne permettent plus l'analyse individuelle des résonances, le travail d'évaluation consiste alors à décrire le comportement des sections efficaces en fonction de plusieurs paramètres appelés « paramètres moyens ». À plus haute énergie, les calculs reposent sur la résolution de l'équation de Schrödinger en utilisant un potentiel complexe, V+ iW (contrairement à la matrice R qui utilise un potentiel carré réel), représentant l'interaction neutron incident avec l'ensemble des nucléons\* de la cible. Ces potentiels sont appelés « potentiels optiques » par analogie avec l'optique quantique. Cette résolution directe de l'équation de Schrödinger\* est implémentée dans les codes CONRAD (pour les noyaux sphériques) et ECIS.

L'évaluateur doit s'assurer que la formulation « moyennée » de la matrice R et l'utilisation des calculs de modèles optiques permettent une continuité des sections efficaces sur ces deux domaines d'énergie.

### La section efficace totale moyenne

Dans le domaine des résonances non résolues, la section efficace totale moyenne peut s'obtenir à l'aide de la matrice de collision moyennée ( $\overline{U_{cc'}}$ ) :

$$\bar{\sigma_c} = 2\pi \bar{\lambda}_c^2 g_J (1 - Re(\overline{U_{cc}})) \tag{5}$$

Les éléments de la matrice de collision « moyennée » dans le cadre de la théorie de la matrice *R* sont obtenus en fonction des paramètres moyens, comme l'espacement moyen des niveaux  $<D_{\ell}>$ , la fonction densité  $<S_{\ell}>$ , la largeur neutronique réduite moyenne  $<g\Gamma_n^{\ell}>$ . Une première estimation de ces paramètres est possible en réalisant une analyse statistique des résonances. Cette analyse permet, de surcroît, de mettre en évidence des niveaux manquants, des spins de résonances mal assignés ou encore des résonances dues à des impuretés dans l'échantillon.

À plus haute énergie, les calculs de modèles optiques fournissent directement une valeur en fonction de l'énergie de cette matrice de collision,  $U_{cc'}(E)$ , et ce uniquement pour une voie d'entrée *c* de la réaction nucléaire (par exemple, la voie neutron). La section efficace totale de la voie d'entrée *c* s'écrit :

$$\bar{\sigma_c} = 2\pi \bar{\lambda}_c^2 g_I (1 - Re(U_{cc})) \tag{6}$$

## Les sections efficaces partielles moyennes

Le modèle statistique Hauser-Feshbach est utilisé pour décrire le processus de désexcitation du noyau composé (section efficace de capture radiative, section efficace de fission, section efficace de diffusion élastique et inélastique). Il utilise la notion de transmission de voie de réaction  $T_c$ .

Dans le cadre de la théorie de Hauser et Feshbach, les sections efficaces partielles s'écrivent en fonction des coefficients de transmission de la manière suivante :

$$\bar{\sigma}_{cc\prime} = \sigma_p \delta_{cc\prime} + \pi \bar{\lambda}_c^2 g_J \frac{T_c T_{c\prime}}{\sum_c T_c} W_{cc\prime}$$
<sup>(7)</sup>

Le premier terme  $\sigma_p \delta_{cc'}$  concerne la réaction directe *(shape elastic)*,  $\pi \bar{\lambda}_c^2 g_J \frac{T_c T_{c'}}{\sum_c T_c}$  provient de la composante noyau composé et  $W_{cc'}$  est un terme correspondant aux fluctuations et interférences entre les voies.

Pour chaque voie de réaction, les transmissions sont calculées à partir de modèles nucléaires. Pour la voie neutron, par exemple, nous avons :  $T_c(E) = 1 - |U_{cc}|^2$  (ou encore  $T_c(E) = 1 - |\overline{U_{cc}}|^2$  pour le domaine des résonances non résolues).

Pour la fission, la notion de pénétrabilité de barrière de fission permet le calcul de ces coefficients avec plus ou moins de finesse : formalisme rudimentaire de type Hill-Wheeler ou plus perfectionné (approximation **WKB**\* ou Cramer-Nix).

## Modélisation des sections efficaces de fission

L'effort de recherche actuel porte sur l'utilisation, dans les évaluations [10], de la théorie de Lynn relative au traitement de la matrice *R* moyenne qui permet un calcul plus exact des sections efficaces moyennes des actinides dans le domaine des résonances non résolues (paramètres moyens plus adaptés et plus représentatifs de la voie de fission). Par ailleurs, on s'oriente dans CONRAD et TALYS vers l'utilisation accrue de données microscopiques (niveaux collectifs, orbitales de niveaux individuels, densité de niveaux du continuum) associées à une modélisation soit phénoménologique, soit plus

<sup>(6)</sup> États de classe I États de classe I Déformation β Probabilité de fission

Fig. 7. Barrière de fission à deux bosses, en fonction de la déformation du noyau fissionnant (gauche) et probabilité de fission associée (droite).

fondamentale des barrières de fission en fonction de l'application. L'approche fondamentale repose sur des calculs de surface équipotentielle, éventuellement multidimensionnelle.

Le calcul d'une barrière à deux bosses (voir fig. 7) en utilisant un formalisme de type Cramer-Nix [11] met en évidence la présence d'états du noyau dans le deuxième puits de potentiel qui se manifestent sous forme de résonances dans la probabilité de fission (visibles expérimentalement). Celle-ci, habituellement voisine de zéro pour les noyaux fertiles avec une énergie d'excitation en dessous du seuil de fission est alors amplifiée ponctuellement (en énergie). Ces approches permettent, par conséquent, un calcul plus précis des transmissions de la voie de fission.

## Incertitudes sur les données nucléaires

La part la plus importante de l'incertitude sur les résultats des calculs de neutronique provient de l'incertitude sur les données nucléaires de base. Pour valider les marges prises sur les paramètres de conception des futurs réacteurs ou assurer une propagation des incertitudes sur les paramètres neutroniques des réacteurs existants, il faut donc assurer une maîtrise *a priori* des incertitudes sur les données nucléaires. Afin d'inclure des matrices de variance/covariance explicitant les corrélations entre les diverses données nucléaires dans les prochaines évaluations, un travail conséquent de ré-analyse des mesures microscopiques, de développement de méthodes mathématiques d'évaluation de toutes les composantes des incertitudes, qu'elles proviennent des expériences ou des modèles, est en cours et devra se concrétiser pour les futures bases de données nucléaires.

#### CONRAD : un outil d'analyse des incertitudes

Dans le cadre de CONRAD, l'estimation des paramètres de modèle repose sur le concept d'inférence bayésienne. Si l'on suppose que l'on cherche la probabilité d'obtenir les paramètres  $\vec{x}$ , que U est la connaissance préalable sur ces paramètres et que  $\vec{y}$  est un nouveau jeu de mesures, le théorème de Bayes généralisé aux variables continues donne la relation entre les densités de probabilité [p(.)] suivantes :

$$p\left(\vec{x}|\vec{y},U\right) = \frac{p\left(\vec{x}|U\right)p(\vec{y}|\vec{x},U)}{\int d\vec{x'}\,p\left(\vec{x'}|U\right)p(\vec{y}|\vec{x'},U)} \tag{8}$$

La densité de probabilité  $p(\vec{x}|U)$  est appelée *a priori*. La quantité  $p(\vec{y}|\vec{x}, U)$  représente la fonction de vraisemblance qui nous indique la vraisemblance des mesures sachant U si les paramètres  $\vec{x}$  sont inconnus. La quantité  $p(\vec{x}|\vec{y}, U)$  est la densité de probabilité *a posteriori* de  $\vec{x}$ . Cette relation (8) peut donc être comprise comme étant l'actualisation d'une connaissance *a priori* par une fonction de vraisemblance *(likelihood)* de nouvelles mesures :

$$posterior\left[p\left(\vec{x}|\vec{y},U\right)\right] \propto prior\left[p\left(\vec{x}|U\right)\right] likelihood\left[p(\vec{y}|\vec{x},U)\right]$$
(9)



Fig. 8. Analyse de la section efficace inélastique et totale du sodium [14].

L'objectif de l'estimation des paramètres des modèles nucléaires est d'obtenir leur distribution *a posteriori* (valeurs moyennes et valeurs de la matrice de covariance, dans le cas d'une résolution analytique).

Dans l'évaluation de ces données, les mesures apportent, en outre, leur lot de paramètres propres (normalisation, résolution, etc.). Ces derniers sont utiles pour simuler l'expérience et ainsi rendre possible l'ajustement. Les paramètres de ce type sont dénommés « paramètres de nuisance ». L'influence des incertitudes des paramètres de nuisance sur la matrice de covariance des paramètres de modèle (résultant de l'ajustement) est considérable. C'est pourquoi des méthodes mathématiques originales de marginalisation [12][13] ont été développées dans CONRAD.

La figure 8 présente un exemple de marginalisation d'une normalisation expérimentale réalisée lors d'une analyse du sodium [14]. Les incertitudes obtenues pour cette analyse sans utiliser de méthodes de marginalisation auraient été totalement irréalistes : inférieures au %.

## Les observables post-fission

# Spectre et multiplicité des neutrons prompts de fission

Les caractéristiques des neutrons prompts de fission émis lors de la désexcitation des fragments de fission font partie des données essentielles utilisées dans les calculs de neutronique. Ces caractéristiques figurent, par conséquent, dans les bibliothèques internationales de données nucléaires. Des efforts importants, tant sur le plan expérimental que théorique, sont toujours en cours pour affiner notre connaissance du spectre des neutrons prompts émis. La photographie située en haut de la figure 9 montre un dispositif très simple utilisé récemment dans le cadre d'une collaboration CEA/IRMM [15].

Ce dispositif comprend une chambre à ionisation (dédiée à la détection des deux fragments de fission), ainsi qu'un scintillateur de type NE213, dédié à la détection des neutrons de fission. Une cible mince (quelques nanogrammes par cm<sup>2</sup>) de Cf 252 était déposée au centre de la chambre. La mesure en coïncidence des deux fragments issus de la fission spontanée du californium et d'un neutron prompt de fission permet de



Fig. 9. Dispositif expérimental pour la mesure des neutrons prompts en coïncidence avec les fragments de fission [15]. La figure du bas montre la multiplicité mesurée [15, 16] des neutrons en fonction de la masse du fragment émetteur (courbe dite « en dents de scie ») que la simulation Monte-Carlo de la décroissance des produits de fission (courbe bleue [17]) reproduit correctement.

De la mesure à l'évaluation des données nucléaires

déterminer des corrélations entre les propriétés du fragment émetteur (masse, énergie cinétique...) et les caractéristiques du neutron (multiplicité, spectre...).

Par ailleurs, une approche de type Monte-Carlo permettant de suivre en détail la décroissance des fragments par émission de neutrons et de rayons gamma, et ce sur l'ensemble de la distribution en masse, en charge et en énergie cinétique des fragments, a également été initiée par le CEA [17]. Pour les spectres de neutrons de fission, cette approche permet d'aller au-delà du modèle de Madland-Nix [18] (modèle sur lequel reposent la plupart des évaluations présentes dans les bibliothèques de données) qui ne considère qu'une vue globale du processus de désexcitation des fragments, sans prendre en compte explicitement toute la chaîne de décroissance. Les premiers résultats du code Monte-Carlo FIFRELIN sont très encourageants, comme le montre la partie inférieure de la figure 9 où le nombre moyen de neutrons prompts (multiplicité) émis en fonction de la masse du fragment émetteur a été calculé et comparé aux données expérimentales. La simulation de la totalité de la cascade de décroissance des fragments émis lors du processus de fission permet, en outre, d'accéder à d'autres observables utiles pour les applications : les spectres de rayonnements gammas prompts, leur multiplicité moyenne [19], ainsi que la distribution du nombre de quanta émis, les rendements de fission ou encore la composante prompte des énergies dégagées.

### Rendements de fission

La connaissance des **rendements indépendants et cumu**latifs\* de certains produits de fission émis lors des réactions de fission induite par neutrons est très importante pour la physique des réacteurs (calculs de puissance résiduelle, production des neutrons retardés par calcul de sommation, normalisation du taux de fission dans un réacteur, à partir de la mesure d'émission *gamma* d'un produit de fission...). Dans les bibliothèques de données nucléaires (JEFF, ENDF/B-VII ou JENDL), ces rendements présentent des différences importantes, avec parfois des incertitudes associées souvent trop grandes, compte tenu des exigences actuelles et des progrès accomplis, par ailleurs, sur d'autres données nucléaires (sections efficaces). Dans ce contexte, de nouvelles campagnes de mesures auprès du spectromètre de masse « Lohengrin » de l'Institut Laue Langevin de Grenoble (ILL) – fruit d'une large collaboration entre l'ILL, le Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC) et le CEA – ont été initiées [20, 21].

Le spectromètre de masse « Lohengrin » (représenté schématiquement sur la partie gauche de la figure 10), est un instrument particulièrement bien adapté à l'étude des rendements des produits de fission, notamment grâce à son excellente résolution en masse. Sous l'action combinée d'un champ magnétique et d'un champ électrostatique, cet instrument permet la sélection des produits de fission en fonction de leur masse et de leur énergie cinétique. En rajoutant une chambre à ionisation à l'extrémité du spectromètre, l'information sur la charge nucléaire du produit de fission sélectionné devient accessible. Dès lors, il est possible d'étudier les rendements isotopiques et isobariques, ainsi que les distributions en énergie cinétique des produits de fission émis lors d'une réaction de fission induite par neutrons thermiques (n<sub>th</sub>). Un exemple de distribution en masse des produits de fission issus de la réaction U 235 (n<sub>th</sub>,f) est donné sur la partie droite de la figure 10.



Fig. 10. Vue schématique du spectromètre de masse « Lohengrin » situé à l'Institut Laue Langevin de Grenoble (gauche). Distribution en masse des produits de fission émis lors de la réaction U 235 (n<sub>th</sub>, f) [droite].



Fig. 11. Source de l'échauffement photonique dans un réacteur nucléaire.

## L'amélioration de l'évaluation des échauffements nucléaires

L'échauffement des matériaux dans les réacteurs (barres de commande\* en B<sub>4</sub>C, Hf..., combustibles, baffle lourd, dispositifs expérimentaux) est un des paramètres dimensionnant l'EPR, le réacteur d'irradiation Jules Horowitz RJH\*, ainsi que les concepts de réacteurs de quatrième génération. On entend par échauffement nucléaire, au sens large, le dépôt d'énergie des particules chargées, suite aux processus nucléaires. Ainsi, on distingue : les dépôts locaux d'énergie des réactions neutroniques (fragments de fission,  $\alpha$  des réactions (n,  $\alpha$ ), noyaux de recul...), les dépôts d'énergie photonique et les dépôts d'énergie des désintégrations radioactives ( $\alpha$ ,  $\beta$ ). Trois grandeurs intégrales seront concernées : dose\* et débit de dose\* pour les échauffements, dpa\* et production de gaz via les réactions (n,  $\alpha$ ), fissions et décroissance radioactive  $\beta$  des actinides pour l'estimation des dommages d'irradiation dans les matériaux du réacteur.

La figure 11 montre les différentes sources de production primaire de l'échauffement photonique dans les composants du réacteur (cœur, réflecteur). Les *gammas* de fission sont responsables de plus de 60 % de l'échauffement photonique en cœur (20 % pour les captures et un peu moins pour les inélastiques). L'évaluation des données nucléaires de production *gamma* est un préalable à toute interprétation d'expériences intégrales et se fondera essentiellement sur des données et modèles de structure nucléaires et des données et modèles de désexcitations électromagnétiques des niveaux (qu'ils soient discrets ou dans le continuum).

## Conclusion

Les données nucléaires pour la physique des réacteurs doivent permettre la caractérisation précise (données qualifiées et incertitudes réduites) des grandeurs physiques des systèmes nucléaires électrogènes (réacteurs et cycle de GEN II, III et IV), des réacteurs expérimentaux (RJH, ÉOLE, MINERVE, MASURCA, CABRI...) et des réacteurs de propulsion navale. Cela demande de poursuivre une activité à la fois de mesures (intégrales ou différentielles), d'évaluation (pour la base de données JEFF), de modélisation et de validation. La collaboration, au CEA, entre les directions s'avère être essentielle afin de mutualiser les compétences. Les défis associés à la future bibliothèque nucléaire JEFF-4 portent sur des modèles de réactions nucléaires qui comporteront de plus en plus d'ingrédients microscopiques, sur l'évaluation des données associées aux observables post-fissions, sur les données nucléaires relatives aux échauffements nucléaires et, enfin, sur l'évaluation des incertitudes.

### ▶ Références

[1] A.J. KONING *et al.* « *Status of the JEFF Nuclear Data Library* », Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 2007.

[2] http://www.irmm.jrc.be/about\_IRMM/laboratories/Pages/gelina\_ neutron\_time\_of\_flight\_facility.aspx

[3] G. NOGUÈRE, E. RICH, C. DE SAINT-JEAN, O. LITAIZE, P. SIEGLER and V. AVRIGEANU, "Average neutron parameters for hafnium", *Nucl. Phys.* A831, pp.106-136, 2009.

[4] G. FIONI *et al.*, « *The Mini-Inca project: Experimental study of the transmutation of actinides in high intensity neutron fluxes »*, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Tsukuba, Japan, 2001.

[5] O. BRINGER, Mesure des sections efficaces de capture et potentiels d'incinération des actinides mineurs dans les haut-flux de neutrons. Impact sur la transmutations des déchets, thèse INP Grenoble, 2007.

[6] C. DE SAINT-JEAN *et al.*, "Uncertainly Evaluation of Nuclear Reaction Model Parameters using Integral and Microscopic Measurements with the Conrad Code", *Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND-2010)*, Jeju Island (Korea), April 2010.

[7] J. RAYNAL, code ECIS95, Note CEA-N-2772, 1994.

[8] A.J. KONING, S. HILAIRE, M.C. DUJJVESTIJN, "TALYS : Comprehensive nuclear reaction modeling", *Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, Santa Fe, New Mexico, USA, 2004.

[9] A.M. LANE et R.G. THOMAS, R-Matrix Theory of Nuclear Reactions, *Rev. Mod. Phys.*, 30,2, pp. 257-353, 1958.

 [10] O. BOULAND *et al.*, "Recent Advances in Modeling Fission Cross Section over Intermediate Structures", *Compound Nucleus Reactions*, 2009, Workshop (Bordeaux), *European Physical Journal*, 08001, p. 6, V2, 2010. Les données nucléaires de base (sections efficaces, spectres de particules émises...) initialement utilisées en **Physique des réacteurs nucléaires** proviennent de diverses compilations, parmi lesquelles la compilation anglaise **UKNDL** : *United Kingdom Nuclear Data Library* [1]. L'évaluation d'origine américaine **ENDF/B-IV**, délivrée en 1975 par le *Nuclear Data Center* du *Brookaven National Laboratory*, a été également largement utilisée jusque dans le courant des années 80 [2]. Elle comporte les sections efficaces pour 90 nucléides allant de l'hydrogène au Curium 244.

C'est en 1981 que débute, sous les auspices de l'Agence pour l'Énergie Nucléaire (AEN) de l'OCDE, le «*Joint Evaluated File Project*» (JEF) regroupant les efforts des Européens et des Japonais pour constituer une base de données nucléaires de référence dans le domaine des applications de la fission nucléaire. Les domaines visés sont la physique du cœur, la radioprotection, le cycle du combustible, le démantèlement des réacteurs nucléaires.

La première *« Joint Evaluated File », « JEF-1 », est produite en* 1985. Elle comporte les données nucléaires de base pour 300 nucléides. Elle est le fruit de la collaboration entre l'Autriche, la France, la République Fédérale d'Allemagne, l'Italie, le Japon, les Pays-Bas, le Royaume-Uni, la Suède et la Suisse. Les données de JEF-1 sont au format américain ENDF-5. Les bénéficiaires de JEF-1 sont exclusivement les membres de la *Banque de Données (Data Bank)* de l'AEN, [3].

Le CEA, sous l'impulsion initiale notamment de Massimo Salvatores, a activement travaillé à l'élaboration des évaluations successives : JEF-1, JEF-2 [4], JEFF-3 [5]. L'évaluation JEFF-3 – Joint Evaluated Fission and Fusion File – résulte du regroupement en une « file » unique des évaluations JEF et EFF – European Fusion File –, l'élaboration de cette dernière ayant été conduite par Harm Gruppelaar de l'Energy Research Center of the Netherlands (ECN) de Petten aux Pays-Bas à partir de 1985. Plus récemment, la European Activation File (EAF) contenant les valeurs de sections efficaces pour plus de 15000 réactions d'activation induites par un neutron et dont l'élaboration a été initiée par EURATOM/UKAEA, a aussi été intégrée dans JEFF-3. Cette évaluation s'est conformée au format ENDF-6 américain. Les contributions du CEA, son lien fort avec les applications électronucléaires et ses capacités d'essais physiques, constituent l'un des atouts du projet JEFF. Dans le futur, les objectifs principaux du projet seront de préserver ou d'améliorer les performances de la base de données pour les réacteurs actuels et en projet (EPR, **RJH**\*), et pour les applications RNR, en particulier **ASTRID**\*, de proposer des matrices de covariance réalistes couvrant les applications ci-dessus, de réaliser des avancées conséquentes sur la connaissance physique des principaux noyaux (Actinides, Produits de fission) répercutées dans des fichiers de qualité toujours plus grande.

Récemment, à l'initiative du *Laurence Livermore National Laboratory*, une réflexion internationale a été engagée pour définir un nouveau format modernisé et mondialement partagé des données nucléaires de base [6].

#### Bibliographie

[1] K. PARKER, "The Aldermaston Nuclear Data Library", AWRE Report No. O-70/63 (September 1963); J. S. STORY, R. W. SMITH, "The 1981 Edition of the United Kingdom Nuclear Data Library: A Status Summary", September 1981.

[2] ENDF/B-IV General purpose file (Ed.) D. GARBER: "ENDF/B Summary Documentation", BNL-17541, 2nd Edition, 1975.

[3] JEF Report 1, Index of the JEF-1 Nuclear Data Library, Volume I, General Purpose File, OECD NEA Data Bank, July 1985; http://www.oecd-nea.org/dbdata/nds\_jefreports/

[4] JEFF Report 17, *The JEF-2.2 Nuclear Data Library*, OECD NEA Data Bank (April 2000).

[5] JEFF Report 22, *The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library*; OECD NEA Data Bank (May 2009).

[6] Working Party on International Nuclear Data Evaluation Co-operation (WPEC) Subgroup 38, *Beyond the ENDF format: A modern nuclear database structure:* 

http://www.oecd-nea.org/science/wpec/sg38/

[11] J.D. CRAMER et J.R. NIX, "Exact Calculation of the Penetrability Through Two-Peaked Fission Barriers", *Phys. Rev.* C 2, pp. 1048–1057, 1970.

[12] C. DE SAINT-JEAN *et al.*, "A Monte-Carlo Approach to Nuclear Model Parameter Uncertainties Propagation", *Nucl. Sci. Eng.* 161, 363, 2009.

[13] B. HABERT *et al.*, "Retroactive Generation of Covariance Matrix of Nuclear Model Parameters Using Marginalization Techniques", *Nucl. Sci. Eng.* 166, p. 276, 2010.

[14] P. ARCHIER *et al.*, "Modelling and Evaluation of Na 23 Cross Sections" *GEDEPEON Workshop on Nuclear Data Evaluation*, OECD/NEA databank, 2010. [15] N. VARAPAI, Développement d'un dispositif expériental basé sur la digitalisation des signaux et dédié à la caractérisation des fragments de fission et des neutrons prompts émis, Thèse Université de Bordeaux I, 2006.

[16] C. BUDTZ-JORGENSEN *et al.*, "Simultaneous Investigation of Fission Fragments and Neutrons in Cf 252 (sf)", *Nucl. Phys.* A 490, 307, 1988.

[17] O. LITAIZE and O. SEROT, "Investigation of phenomenological models for the Monte-Carlo simulation of the prompt fission neutron and *gamma* emission", *Phys. Rev. C* 82, 054616, 2010.

La neutronique

[18] D.G. MADLAND et R.J. NIX, "New calculation of prompt fission neutron spectra and average prompt neutron multiplicities", *Nucl. Sci. Eng. 81*, p. 213, 1982.

[19] D. RÉGNIER, O. LITAIZE, O. SÉROT, *Preliminary Results of a Full Hauser-Feshbach Simulation of the Prompt Neutron and Gamma Emission from Fission Fragments*, Scientific Workshop on Nuclear Fission Dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and *Gamma* Rays, Biarritz, France, 28-30 November 2012.

[20] A. BAIL, Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse Lohengrin, Thèse Université de Bordeaux I, 2009.

[21] A. BAIL, O. SEROT, L. MATHIEU, O. LITAIZE, T. MATERNA, U. KOSTER, H. FAUST, A. LETOURNEAU, S. PANEBIANCO, "Isotopic yield measurement in the heavy mass region for Pu 239 thermal neutron induced fission" *Phys. Rev. C* 84, 034605, 2011.

Cyrille de Saint-Jean, Olivier Sérot, Pascal Archier, David Bernard, Olivier Bouland, Olivier Litaize et Gilles Noguère Département d'étude des réacteurs

## Le traitement des données nucléaires

L'aboutissement du travail de mesures et d'analyse décrit précédemment est la production de fichiers d'évaluations nucléaires, plus simplement appelés « évaluations\* ». Ces fichiers contiennent, sous la forme la plus compacte possible, les informations permettant de reconstruire toutes les données nucléaires nécessaires à la modélisation d'un système nucléaire. Ces évaluations partagent, en général, un même format informatique d'origine américaine qui a été adopté au plan international : c'est le format dénommé ENDF-n où n est un chiffre arabe spécifiant la version de ce format. Les évaluations produites actuellement sont au format ENDF-6 *(Evaluated Nuclear Data Format, version 6)* [1].

## Les données présentes dans les évaluations

Les données présentes dans les évaluations concernent :

- Les réactions nucléaires induites par les neutrons ;
- les réactions nucléaires induites par les photons ;
- les interactions électromagnétiques induites par les photons dites « réactions photo-atomiques »;
- les données de décroissance radioactive ;
- les rendements de produits de fission pour une fission spontanée ou induite par un neutron ;
- les données relatives au transport des particules chargées (protons, deutons, tritium, hélium 3...);
- · les incertitudes associées.

## Les réactions nucléaires induites par les neutrons

La majorité des données décrivant les réactions nucléaires induites par les neutrons se trouvent dans des sous-bibliothèques *(sub-libraries)* des fichiers internationaux d'évaluation. Ces données sont décrites dans le tableau 8. Elles sont fournies pour environ 400 nucléides dans le domaine d'énergie allant de 10<sup>-5</sup> eV à au moins 20 MeV. Les bibliothèques d'évaluations les plus récentes sont : ENDF/B-VII [2], JEFF-3.1.1 [3], JENDL-4.0 [4], CENDL-3.1 [5], ROSFOND [6].

La descriptions des produits issus de la fission induite par capture d'un neutron nécessite des données supplémentaires : les **rendements de fission\***, pour chaque noyau fissile. Ces rendements se trouvent dans les *« files »* dites *« Fission Yields »* (FY) des fichiers d'évaluation précédemment cités.

La figure 12 (page suivante) permet de comparer les rendements en nombre de masse des produits de fission pour une fission induite par un neutron thermique sur un noyau d'uranium 235 ou de plutonium 239.

Pour traiter les liaisons chimiques de certains noyaux liés dans un édifice moléculaire (hydrogène dans l'eau, hydrogène dans l'hydrure de zirconium, zirconium dans l'hydrure de zirconium...) dans le domaine thermique, des données de thermalisation peuvent être fournies dans des « *files* » spécifiques.

Toutes ces données servent essentiellement à calculer la propagation des particules (neutrons, photons...) et les sources de particules secondaires.

#### Tableau 8

Nature de l'information contenue dans la sous-bibliothèque « réactions nucléaires induites par les neutrons »									
Numéro de « file » (MF)	Nature de l'information stockée								
1	Informations générales sur le contenu de l'évaluation.								
2	Paramètres de <b>résonance*</b> .								
3	Sections efficaces* des neutrons.								
4	Distributions angulaires des neutrons secondaires.								
5	Distributions en énergie des neutrons secondaires.								
6	Distributions énergie/angle des particules secondaires.								
7	Données pour les lois de diffusion des neutrons thermiques.								
8	Production d'états isomériques.								
12	Multiplicité des photons issus des réactions neutroniques.								
14	Distributions angulaires des photons issus des réactions neutroniques.								
15	Distributions en énergie des photons issus des réactions neutroniques.								

La neutronique



Fig. 12. Rendement de masse des produits de fission pour l'U 235 et le Pu 239.

#### Remarque

Il existe des évaluations particulières, contenant uniquement des sections efficaces, qui sont dédiées à des domaines d'application particuliers.

- L'activation des structures sous flux neutronique. On peut citer l'évaluation EAF 2010 [7] qui donne, pour 816 noyaux cibles, les sections efficaces de près de 66 000 réactions d'activation (sections efficaces partielles) pour un domaine d'énergie allant de 10<sup>-5</sup> eV à 60 MeV.
- La dosimétrie. Dans l'évaluation IRDF-2002 (International Reactor Dosimetry File) [8] se trouvent des sections efficaces d'activation particulières utilisées, par exemple, pour l'évaluation de la fluence neutronique reçue par les structures sous irradiation.

## Les réactions induites par les photons

Les photons peuvent interagir avec l'atome (interactions photo-atomiques [9]) ou avec le noyau (interactions photonucléaires [10]). Dans le domaine d'énergie allant jusqu'à 20 MeV, les interactions photo-atomiques sont largement prédominantes pour résoudre l'équation du **transport**\* (effet photoélectrique, diffusions cohérentes et incohérentes et création de paires e<sup>+</sup>, e<sup>-</sup>). En revanche, les interactions photonucléaires sont à l'origine de sources secondaires de neutrons qu'il faut évaluer.

Ces données servent essentiellement à calculer la propagation des photons et les sources secondaires de neutrons.

## Les données de décroissance radioactive

La matière peut contenir des radionucléides naturels ou devenir radioactive suite à des réactions nucléaires. Les données relatives aux noyaux radioactifs sont les suivantes :

- Les sections efficaces des noyaux radioactifs, en distinguant l'état fondamental des états isomériques;
- les modes de décroissance ( $\beta^-$ ,  $\beta^+$ , C.E., T.I.,  $\alpha$ , ...);
- les périodes de désintégration ou demi-vies ;
- les rapports de branchements entre plusieurs voies possibles de désintégration ;
- les rendements de fission spontanée ;
- les multiplicités neutroniques de la fission spontanée ;
- les énergies moyennes mises en jeu dans les transitions radioactives ;
- les intensités et les spectres en énergie des particules émises.

Ces grandeurs peuvent être trouvées dans différentes sousbibliothèques. Il faut noter la création, en Europe, de la base de données NUBASE [11], « *A Database of Nuclear and Decay Properties »,* qui comporte les données de structure (spin, masse, parité...) pour plus de 3 000 noyaux. Un autre ouvrage de référence est « *Atomic Mass Evaluation* » [12].

Ces données sont indispensables pour calculer **l'évolution isotopique au cours du temps** d'un combustible.

# Les données relatives au transport des particules chargées

Les particules chargées apparaissent à la suite des processus d'interaction nucléaire ou photo-atomique. Ces particules sont, par exemple, les *alpha* et *bêta* pour les processus radioactifs, les électrons de recul de l'effet Compton ou photo-électrique, les paires (électron-positon) issues de la matérialisation des rayons *gamma*. Ces phénomènes donnent naissance à ce que l'on appelle la **cascade électromagnétique** qui est une sorte de propagation arborescente d'électrons, de positons et de *gammas*.

Les données sont essentiellement :

- Les sections efficaces des réactions nucléaires induites par les particules chargées ;
- les sections efficaces de bremsstrahlung (ou rayonnement de freinage);
- les sections efficaces de diffusion des électrons/positons dans la matière ;
- les pouvoirs d'arrêt des électrons/positons et des ions dans la matière.

Ces données sont disponibles soit sous forme de valeurs tabulées (évaluations EEDL [13], pour les sections efficaces induites par électrons), soit déterminées par des programmes informatiques permettant de les calculer (ESTAR, PSTAR, ASTAR [14] pour les pouvoirs d'arrêt et les parcours des électrons, positons et *alphas*).

## Les incertitudes sur les données nucléaires

Dans la mesure du possible, on cherche à attribuer une incertitude à la valeur calculée d'une grandeur physique. Cette incertitude résulte d'incertitudes de natures différentes : incertitudes sur les données physiques de base, incertitudes dues à la méthode de calcul, incertitudes sur les données technologiques, etc. La connaissance de ces incertitudes est cruciale pour la sûreté, l'optimisation d'un dimensionnement. Ces incertitudes ont aussi une incidence économique. Dans la plupart des calculs de neutronique, les incertitudes sur les données nucléaires de base sont prépondérantes, d'où l'intérêt de bien les connaître et de disposer de méthodes permettant d'évaluer leur impact sur l'incertitude associée à la grandeur physique recherchée.

C'est en vue de tels calculs d'incertitudes que sont constituées les sous-bibliothèques 30 à 40 des évaluations en format ENDF. Elles contiennent les données de covariances (c'est-àdire d'incertitudes avec les corrélations éventuelles) relatives aux données nucléaires décrites dans les *« files »* 1 à 10 du tableau 8 (voir *supra*, p. 31).

## Le traitement des données nucléaires

Pour être utilisables dans les codes de modélisation des systèmes nucléaires (codes de transport et d'évolution), les données nucléaires présentes dans les évaluations doivent généralement subir un **traitement** à la fois **physique**, **numérique** et **informatique**. Celui-ci découle de la nature des informations stockées dans les évaluations, de la nature du problème physique étudié et des méthodes numériques mises en œuvre dans les codes utilisés. Le produit final du traitement est une **bibliothèque de données physiques (bibliothèque d'application**) exploitable par le code de modélisation concerné.

## La représentation des données nucléaires

De façon générale, les données nucléaires caractérisant l'interaction d'un neutron ou d'un photon avec un nucléide ou un élément dépendent de l'énergie E de la particule incidente et de la température T de la cible. Dans les bibliothèques d'application, la dépendance en énergie peut être représentée de façon continue (ponctuelle) ou discrète (multigroupe), alors que la dépendance en température est généralement traitée de façon continue.

## **Représentation ponctuelle**

La donnée nucléaire *D* est représentée par un ensemble de couples de valeurs ( $x_i$ ,  $D(x_i)$ ) où  $x_i$  caractérise le paramètre dont dépend la donnée *D* et  $D(x_i)$  est la valeur de la donnée pour ce paramètre. À cette description est associée une loi d'interpolation permettant de recalculer la donnée pour n'importe quelle valeur du paramètre *x* (énergie incidente ou température).

#### **Représentation multigroupe**

Cette représentation est associée à la dépendance en énergie (de la particule incidente) d'une donnée D. Le domaine en énergie est subdivisé en intervalles appelés « **groupes**\* (d'énergie) », les bornes en énergie de ces intervalles formant alors un **maillage multigroupe**\*. Sur chacun de ces groupes g, la donnée nucléaire ponctuelle D est représentée par une valeur moyenne  $D^g$  appelée « valeur multigroupe ».

Dans le cas des sections efficaces, une autre représentation est aussi couramment utilisée : la représentation par tables de probabilité multigroupes.

## Représentation par tables de probabilité multigroupes

Cette représentation [15] nécessite aussi la définition d'un maillage multigroupe. Sur chaque groupe, la section efficace ponctuelle est représentée par un certain nombre de couples ( $p_i$ ,  $\sigma_i$ ),  $\sigma_i$  décrivant les paliers pouvant être atteints par la section efficace dans ce groupe et  $p_i$  la probabilité que le palier  $\sigma_i$  soit atteint.

La figure 13 montre les trois représentations de la section efficace pour l'uranium 238.



Fig. 13. Différentes représentations d'une section efficace : en haut, représentations ponctuelle et multigroupe ; en bas, représentations ponctuelle et par table de probabilité multigroupe.

# Les différentes étapes du traitement des données nucléaires

On distingue deux grandes étapes dans le traitement des données : la génération des données ponctuelles à une température donnée et la génération des données multigroupes. Pour les sections efficaces, il faut ajouter l'étape de génération des tables de probabilité.

Dans la suite sont détaillées les étapes du traitement sur deux types de données : les sections efficaces et les distributions en angle et en énergie des neutrons secondaires.

#### Le traitement des sections efficaces

### Sections efficaces ponctuelles

Quelle que soit la représentation finale des sections efficaces dans un code de modélisation, la première étape de traitement est toujours la reconstruction des sections efficaces nucléaires ponctuelles en fonction de l'énergie du neutron incident E dans le référentiel du laboratoire pour un noyau-cible au repos, c'est-à-dire pour T = 0 Kelvin. Cette reconstruction est faite en utilisant divers formalismes nucléaires. Les plus usités sont le formalisme de Breit et Wigner simple niveau ou multiniveaux et le formalisme de Reich et Moore, approximations dérivant du formalisme général de la « matrice R » [16]. Les données de ces formalismes sont les paramètres des résonances stockés dans les évaluations. La grille de points en énergie sur laquelle la section efficace est reconstruite est associée à une interpolation linéaire permettant la reconstruction à n'importe quelle énergie E avec respect d'un critère de précision imposé (écart relatif entre la valeur interpolée et la valeur exacte).

La section efficace ponctuelle à T Kelvin est ensuite calculée en tenant compte de l'effet **Doppler\*** par convolution de la section efficace à 0 Kelvin avec la distribution de vitesses du noyau cible.

Cette description est la plus précise. C'est celle qui est utilisée dans les codes de transport des neutrons par la méthode de Monte-Carlo « à énergie continue » pour décrire le domaine des **résonances résolues**\* des nucléides.

La figure 14 montre l'effet Doppler sur les sections efficaces de l'uranium 238, en fonction de la température.

#### Sections efficaces multigroupes

La valeur moyenne sur chaque groupe g d'une section efficace est obtenue en pondérant sur le groupe g la section efficace ponctuelle par un flux de pondération  $\Phi_w$  « représentatif » du spectre neutronique du système nucléaire à modéliser et ne dépendant que de l'énergie. Par exemple, pour traiter un réacteur à neutrons thermiques, le flux de pondération est, audessus de 1 MeV, un spectre de fission, entre 1 MeV et quelques eV un spectre de ralentissement et en dessous, un spectre thermique (maxwellien).



Fig. 14. Section efficace ponctuelle totale de l'uranium 238 à différentes températures.

$$\sigma^g = \frac{\int_g \sigma(E) \Phi_w(E) dE}{\int_a \Phi_w(E) dE}$$

Cette description est utilisée par les codes de transport multigroupes des particules, Monte-Carlo et déterministes. Cette technique très simple de mise en groupes peut s'avérer insuffisamment précise pour les nucléides résonnants quand le maillage en énergie est relativement large. Dans ce cas, les sections efficaces multigroupes sont recalculées dans le code de transport avec une fonction de pondération (appelée « facteur de structure fine ») prenant en compte les résonances de tous les noyaux présents dans le cas particulier à traiter. Ce problème sera repris dans le paragraphe traitant du phénomène d'autoprotection dont la modélisation nécessitera des données supplémentaires qui seront alors décrites.

#### Tables de probabilité

Les paliers des tables de probabilité (TP) sur un groupe g peuvent être vus comme les points d'une formule de quadrature sur le groupe g dont les poids sont proportionnels aux probabilités associées. Il y a donc différentes façons d'établir ces tables suivant le choix des fonctions pour lesquelles on impose que la formule de quadrature soit exacte. Lorsque l'on choisit de préserver les moments de la fonction section efficace totale, les tables de probabilité conduisent à des formules de quadrature de Gauss, ce qui leur confère des propriétés mathématiques très intéressantes.

Cette troisième représentation peut être utilisée dans les codes Monte-Carlo « à énergie continue » pour décrire le domaine des résonances non résolues des nucléides et dans les codes Monte-Carlo et déterministes multigroupes pour décrire tout le domaine en énergie.



Fig. 15. Schéma simplifié d'élaboration des bibliothèques pour les codes de transport Monte-Carlo et déterministes.

La figure 15 donne le schéma simplifié d'élaboration des bibliothèques de sections efficaces pour les codes de transport Monte-Carlo et déterministes.

## Le traitement des distributions en angle et en énergie des neutrons secondaires

Après une collision élastique ou inélastique, correspondant à un niveau d'excitation discret du noyau résiduel, entre un neutron et un nucléide, on peut déduire de la distribution en angle des neutrons secondaires dans le référentiel du centre de masse leur distribution en énergie dans le référentiel du laboratoire. Ces distributions sont données dans les évaluations nucléaires pour plusieurs valeurs de l'énergie incidente et sont associées à une loi d'interpolation.

Elles sont utilisées telles quelles ou transformées en plages équiprobables de cosinus de déviation  $\mu$  par les codes de transport Monte-Carlo. La figure 16 décrit la distribution en angle du neutron diffusé par collision élastique sur un noyau d'oxygène 16 pour une énergie du neutron incident de 18 MeV dans le référentiel du laboratoire. L'axe des abscisses représente le cosinus de l'angle de déviation dans le référentiel du centre de masse (CdM). Les énergies indiquées sont les énergies correspondantes du neutron émergent dans le référentiel du laboratoire.

En ce qui concerne les codes de transport déterministes, la représentation la plus courante est le développement en polynômes de Legendre des matrices décrivant le transfert d'énergie d'un groupe vers un autre.

## Le traitement des données de décroissance

Le traitement des données de décroissance conduit à l'élaboration des chaînes de **décroissance radioactive**\*. La figure 17 page suivante montre, par exemple, la chaîne de décroissance de l'uranium 238 qui conduit à l'isotope stable du plomb de nombre de masse 206. Les durées indiquées à gauche des nucléides donnent leur demi-vie.



Fig. 16. Distribution en angle à la suite de la collision élastique d'un neutron de 18 MeV sur de l'O16.

## Les systèmes de traitement des données nucléaires

Il existe dans le monde plusieurs systèmes de codes capables de réaliser partiellement ou en totalité ce traitement des données nucléaires neutron et *gamma*. On peut citer :

- Le système NJOY [17] élaboré au Centre de Los Alamos, distribué par RSICC (*Radiation Shielding Information and Computational Center*) d'Oak Ridge aux USA et l'OCDE/AEN :
- le code CALENDF [18] développé au CEA et également distribué par l'OCDE/AEN ;
- le système AMPX [19] développé au centre d'Oak Ridge et distribué par RSICC (Radiation Shielding Information and Computational Center) d'Oak Ridge aux USA;
- le système PREPRO [20], maintenu et distribué par l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique, à Vienne, en Autriche.

Le développement du système de traitement des données nucléaires pour les codes de transport, d'évolution et de radioprotection, GALILÉE [21], complète l'effort déployé au CEA (avec le développement du système CONRAD) pour disposer d'un ensemble d'outils propres visant à évaluer et traiter les données nucléaires et leurs incertitudes qui sont à la base de toute modélisation neutronique. Le système GALILÉE s'appuie sur le nouveau code TREND (*Treatment and Representation of Evaluated Nuclear Data*) dont les modèles physiques sont essentiellement issus du code CALENDF.

	Z = 81	Z = 82	Z = 83	Z = 84	Z = 85	Z = 86	Z = 87	Z = 88	Z = 89	Z = 90	Z = 91	Z = 92
											4,47 10° a	U 238
									24,10 j	Th 234		
										6,70 h	Pa 234	
											2,46 10⁵ a	U 234
									7,54 10⁴ a	Th 230		
							1600 a	Ra 226				
					3,82 j	Rn 222						
			3,10 mn	Po 218								
	26,8 mn	Pb 214								<u> </u>	β-	
		19,9 mn	Bi 214	99,98 %								
		0,02 %	164,3 μs	Po 214								
1,30 mn	TI 210										~~	1
	22,20 a	Pb 210										
		5,01 j	Bi 210									
			138,38 j	Po 210								
		Pb 206										

Fig. 17. Schéma simplifié de la chaîne de décroissance radioactive de l'uranium 238.

Avec les outils CONRAD et GALILÉE, le CEA se dote donc d'un dispositif complet et cohérent permettant à la fois de créer et de traiter les données nucléaires, ce qui fait de lui un acteur majeur du domaine.



## Références

[1] *ENDF-6 Formats Manual*, Edited by A. Trkov, M. Herman and D.A. Brown, BNL-90365-2009 Rev.2, 2011.

[2] M. B. CHADWICK *et al.*, « ENDF/B-VII.0: Next Generation of Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and. Technology », Nuclear Data Sheets, 107, 2931-3060, 2006.

[3] A. SANTAMARINA *et al.*, *The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library - Validation Results from JEF-2.2 to JEFF-3.1.1*, JEFF Report 22, OECD 2009 NEA No 6807, 2009.

[4] K. SHIBATA *et al.*, « JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering », *J. Nucl. Sci. Technol.* 48(1), 1-30, 2011. http://www.jstage.jst.go.jp/article/jnst/48/1/48\_1/\_article/

[5] R. Xu *et al.*, « The Updated Version of Chinese Evaluated Nuclear Data Library (CENDL-3.1) », *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, Jeju Island, Korea, April 26-30, 2010.

[6] http://www-nds.iaea.org/ndspub/download-endf/ROSFOND-2010/ backup/

http://www.ippe.ru/podr/abbn/english/libr/rosfond.php

[7] J.C. SUBLET *et al.*, *The European Activation File : EAF-2010 neutron-induced cross section library*, EASY documentation Series CCFE-R (10) 05.

[8] http://www-nds.iaea.org/irdf2002/

[9] http://www-nds.iaea.org/indg\_phat.html

[10] http://www-nds.iaea.or.at/photonuclear/

[11] G. AUDI, O. BERSILLON, J. BLACHOT, A.H. WAPSTRA, « The NUBASE evaluation of nuclear and decay properties », *Nuclear Physics A*, vol. 729, 2003, pp. 3-128.

http://csnwww.in2p3.fr/amdc/web/nubase\_fr.html

[12] G. AUDI, A.H. WAPSTRA et C. THIBAULT, « The AME2003 Atomic Mass Evaluation », *Nucl. Phys.* Vol. 729, Issue 1, pp. 129-676, 2003.

[13] http://www.oecd-nea.org/dbdata/data/manual-endf/nds\_eval\_ eedl.pdf

[14] http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/contents.html

[15] P. RIBON, J. M. MAILLARD, Les Tables de probabilité. Application au traitement des sections efficaces pour la neutronique, Note CEA-N-2485, CEA/Saclay, France, 1986.

[16] A.M. LANE and R.G. THOMAS, « R-Matrix Theory of Nuclear Reactions », *Rev. Mod. Phys.*, 30, 2, pp. 257-353, 1958.

## Le traitement des sections efficaces pour les codes de physique des réacteurs nucléaires au CEA

Pour les besoins de ses premiers codes de calcul de neutronique le CEA a développé des outils de traitement des sections efficaces. Parmi ceux-ci, on peut citer les codes [1] :

- MICRAL et CELADON ayant pour fonction l'élaboration de sections efficaces multigroupes à partir de compilations de données de base ;
- AUTOSECOL regroupant deux codes antérieurement écrits, CARLRÉSONNE et SECOL dédiés au traitement des sections efficaces dans le domaine des résonances ;
- SEFAC, dérivé de CARLRÉSONNE, calculant des facteurs d'autoprotection dans le domaine des résonances et utilisé pour le calcul des réacteurs à neutrons rapides;
- SEMUL et MODERATO chargés d'élaborer des matrices de thermalisation ou de fonctions utilisées dans des modèles de thermalisation.

C'est au début des années 80 que le système de traitement des sections efficaces NJOY [2], produit par Robert E. MacFarlane du Los Alamos National Laboratory (LANL) aux États-Unis et distribué par le Radiation Shielding Information Center (RSIC aujourd'hui RSICC : Radiation Safety Information Computational Center) d'Oak Ridge (ORNL), a été introduit au CEA. Sous l'impulsion de Jean Gonnord, c'est sur la base du système NJOY que le CEA développera et maintiendra jusque dans les années 1990 le système de traitement des sections efficaces baptisé THÉMIS [3], assurant d'une part la cohérence des sections efficaces (origine, traitement : reconstruction, élargissement Doppler, mise en groupes...) entre les voies de calcul de transport déterministe et probabiliste Monte-Carlo tant pour les applications de neutronique (REP et RNR) que de radioprotection et d'autre part offrant des fonctionnalités inédites de consultation, de manipulation, de conversion de format de stockage ainsi que de visualisation sur écran des données nucléaires traitées.

C'est à la même époque que le code français de traitement des évaluations nucléaires, **CALENDF** [4], a vu le jour. Ce code, développé au CEA par **Pierre Ribon**, est essentiellement dédié à la production de tables de probabilité de sections efficaces dans les domaines résolu et non résolu des résonances. L'originalité de ce code réside dans le traitement du domaine non résolu par reconstruction d'un ou plusieurs échantillons de « pseudo sections efficaces ponctuelles », et dans la méthode d'établissement des tables de probabilité par conservation des moments des sections efficaces. Ce code, toujours en développement, est distribué en France depuis 2002 par l'OCDE/AEN [5]. Les premiers codes de transport utilisant CALENDF ont été le code déterministe ECCO [6] pour sa méthode de sousgroupes et le code de Monte-Carlo TRIPOLI-3 [7] pour le traitement du domaine non résolu.

Le système NJOY et le code CALENDF sont encore, aujourd'hui, les outils de production des bibliothèques des codes de transport et d'évolution du CEA.

Cependant, en raison notamment de l'évolution de l'environnement informatique et des exigences accrues en matière de maîtrise des outils d'évaluation et de traitement des données nucléaires de base, de cohérence, de traçabilité et de souplesse dans l'utilisation qui en est faite, le CEA est conduit à refondre son système de traitement des données nucléaires dédiées au calcul des réacteurs nucléaires : **GALILÉE** est le nom de ce nouveau système fondé sur le code **TREND** en cours de développement.

#### Références

[1] P. REUSS, Traité de Neutronique, p. 648, Paris, Hermann, 1985.

[2] R. E. MACFARLANE, D. W. MUIR, R. M. BOICOURT, *The NJOY Nuclear Data Processing System*, LA-9303-M / ENDF-324, LANL, May 1982.

[3] G. DEJONGHE, J. GONNORD, A. MONNIER, J. C. NIMAL, "THEMIS-4: A Coherent Punctual and Multigroup Cross Section Library for Monte Carlo and SN Codes from ENDF/B4", May 1983 ; Seminar on NJOY-91 and THEMIS for the processing of Evaluated Nuclear Data Files, OCDE/AEN, Saclay, April 7-8, 1992.

[4] P. RIBON, J. M. MAILLARD, Les tables probabilité. Application au traitement des sections efficaces pour la neutronique, Note CEA-N-2485, CEA/Saclay, France, 1986.

[5] J.C. SUBLET, P. RIBON, M. COSTE-DELCLAUX, CALENDF-2010: User Manual, Rapport CEA-R-6277, 2011.

[6] G. RIMPAULT et al., "Algorithmic Features of the ECCO Cell Code for Treating Heterogeneous Fast Reactor Subassemblies", *International Topical Meeting on Reactor Physics and Computations*, Portland, Oregon, May 1-5, 1995.

[7] S. H. ZHENG, T. VERGNAUD, J.C. NIMAL, "Neutron cross section probability tables in TRIPOLI-3 Monte Carlo code", *Nuclear Science and Engineering*, 128, pp. 321-328, 1998. [17] R.E. MACFARLANE, D.W. MUIR, D.C. GEORGE, *NJOY99.0 : Code* System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross-Sections from ENDF/B Data, PSR-480/NJOY99.0 – RSICC Peripheral Shielding Routine Collection – Contributed by Los Alamos National Laboratory - 2000.

[18] J.C. SUBLET, P. RIBON, M. COSTE-DELCLAUX, CALENDF-2010: User Manual, CEA-R-6277, 2011.

[19] M. E. DUNN and N. M. GREENE, "AMPX-2000: A Cross-Section Processing System for Generating Nuclear Data for Criticality Safety Applications", *Trans. Am. Nucl. Soc.* 86, pp. 118-119, 2002.

[20] D. E. CULLEN, "PREPRO2012: 2012 ENDF/B Pre-processing Codes", IAEA-NDS-39, Rev. 15, octobre 2012.

[21] M. COSTE-DELCLAUX, « GALILÉE: A nuclear data processing system for transport, depletion and shielding codes », *International Conference on the Physics of Reactors "Nuclear Power: A Sustainable Resource"*, Casino-Kursaal Conference Center, Interlaken, Switzerland, September 14-19, 2008.

Mireille Coste-Delclaux, Cheikh M. DIOP, Cédric JOUANNE et Claude MOUNIER Département de modélisation des systèmes et des structures

## Les données nucléaires de haute énergie : la spallation

Ans un réacteur de fission et même de fusion, les réactions nucléaires impliquent essentiellement des neutrons dont l'énergie s'étend, au grand maximum, jusqu'à une vingtaine de MeV. C'est pourquoi, jusqu'à une date récente, les bibliothèques de données nucléaires ne concernaient que ces réactions.

Il existe cependant d'autres applications qui mettent en jeu des réactions nucléaires de plus haute énergie ou d'autres types de particules. C'est le cas, par exemple, des réacteurs sous-critiques assistés par accélérateurs (ADS\*), envisagés pour la transmutation des déchets nucléaires ou comme outils d'irradiation, et des sources de spallation qui fournissent des neutrons pour les besoins de la recherche sur les matériaux. Ces systèmes font appel à un faisceau de protons accélérés jusqu'à une énergie de l'ordre du GeV bombardant une cible constituée d'un élément lourd (tungstène, mercure, plomb-bismuth). Il s'y produit alors un processus appelé «spallation\*», au cours duquel de nombreuses particules, essentiellement des neutrons, sont éjectées laissant un noyau plus petit que le noyau initial. Certaines des particules émises ont une énergie suffisamment élevée pour induire une nouvelle réaction avec un noyau voisin (fig. 18). De proche en proche, dans une cible épaisse, cela conduit à la génération d'un grand nombre de neutrons dont la plupart vont s'échapper de la cible. On peut ainsi produire des flux intenses de neutrons utilisables directement, après ralentissement, dans neutrons créés lors des réactions de spallation ont un spectre en énergie s'étendant jusqu'à des valeurs très supérieures à ce que l'on trouve dans des réacteurs, même de fusion. Bien qu'en proportion du nombre total de neutrons, ils soient peu nombreux, les neutrons de haute énergie sont susceptibles de poser des problèmes de blindage.

Tous ces aspects doivent être évalués de façon précise dès la conception. Pour cela, on utilise généralement des codes de simulation dits « codes de transport de haute énergie » qui décrivent la propagation, le ralentissement et les interactions de toutes les particules, incidentes et secondaires, dans l'ensemble du système. Pour traiter les interactions nucléaires, le code de transport fait intervenir les probabilités de réaction (sections efficaces\*) et les caractéristiques (nature, énergie, angle) de toutes les particules et noyaux produits dans ces réactions. Deux gammes différentes en énergie doivent être distinguées : les énergies intermédiaires, entre 20 et 200 MeV, et les hautes énergies au-delà. Aux énergies intermédiaires, les codes utilisent, comme à plus basse énergie, des bibliothèques de données évaluées qui contiennent des données tabulées de sections efficaces, spectres en énergie et angles des particules légères et taux de production des résidus pour toute la gamme d'énergie et de noyaux considérés. En fait, les bases de données sont produites grâce à des codes qui contiennent un ensemble de modèles de réactions nucléaires dont les paramètres sont ajustés sur des expériences bien

une source de spallation ou pour compenser la sous-criticité dans un ADS.

Dans ces systèmes se posent des problèmes spécifiques dus aux réactions de haute énergie qui ont lieu dans la cible, mais aussi dans les matériaux environnants. Dans la cible, chaque proton incident, directement ou lors des réactions secondaires, conduit à la production, par spallation, de près de 25 neutrons et 3 noyaux résiduels en moyenne, dont la plupart sont radioactifs. Les noyaux de période courte posent un problème de radioprotection en cas d'intervention ou d'accident : en particulier, les éléments volatils dans le cas d'une cible liquide. Les noyaux de période longue doivent être pris en compte dans l'estimation de la radio-toxicité à long terme. Enfin, les



Fig. 18. Le mécanisme de la spallation dans une cible épaisse.

choisies et qui produisent ensuite l'ensemble des données sur toute la gamme en énergie et pour toutes les voies de réaction. En revanche, aux énergies supérieures à 200 MeV, le nombre de voies de réaction possibles est trop important pour utiliser des bibliothèques : les sections efficaces et les caractéristiques des particules émises sont alors calculées à chaque interaction par des modèles de physique nucléaire inclus directement dans le code de transport. L'amélioration de la qualité et de la fiabilité des codes de simulation nécessite, dans les deux cas, à la fois des mesures expérimentales de qualité qui permettent de contraindre les modèles de physique décrivant les réactions, des développements théoriques permettant d'améliorer ces modèles et des validations, grâce à des mesures intégrales.

## La modélisation de la spallation

La spallation est généralement décrite comme un processus en deux étapes : la première, rapide (quelques 10<sup>-22</sup>s), est une succession de collisions entre le projectile et les nucléons du noyau, comme des chocs entre boules de billard. On l'appelle « cascade intranucléaire ». Ces collisions conduisent à l'éjection d'un certain nombre de particules énergétiques (nucléons, pions\*). À la fin de ce processus, l'énergie incidente est distribuée sur l'ensemble des nucléons du noyau, et celui-ci se retrouve dans un état excité. La seconde étape. beaucoup plus lente, est la désexcitation. Elle se traduit par l'émission de particules de basse énergie (des neutrons surtout, mais aussi des protons, des alphas ou même des fragments plus lourds). Dans le cas des noyaux lourds, la fission en deux noyaux plus petits entre aussi en compétition avec l'émission de particules. En fin de désexcitation, des photons (gammas) sont aussi émis.

La modélisation consiste donc, le plus souvent, à coupler deux modèles : un modèle de cascade intranucléaire et un modèle de désexcitation. Dans le premier, les ingrédients principaux sont l'interaction nucléon-nucléon, bien connue, le potentiel retenant les nucléons dans le noyau et le traitement semi-classique du principe de Pauli. La désexcitation est traitée par un modèle statistique qui évalue la probabilité d'émission d'une particule, à partir des états disponibles et de la probabilité de la réaction inverse (capture de la particule par le noyau). Dans le cas de la fission, interviennent les barrières de fission et la façon dont se séparent les deux fragments. Ces ingrédients peuvent être des paramétrisations phénoménologiques ou peuvent être obtenus à partir de modèles plus microscopiques.

L'objectif est d'aboutir à un couple de modèles dont les ingrédients et les paramètres auront été déterminés à partir de l'analyse de données expérimentales, puis confrontés à l'ensemble des données disponibles afin de les valider et de les fixer une fois pour toutes.

## Les mesures élémentaires

On ne peut atteindre cet objectif que si l'on a une bonne compréhension des mécanismes de la réaction de spallation. Pour cela, il faut disposer de données élémentaires expérimentales de qualité couvrant l'ensemble du domaine en énergie et en masse. Aux énergies considérées, contrairement à ce qui se passe à plus basse énergie où les effets de structure jouent un plus grand rôle, les variations selon la nature du noyau ou selon l'énergie de la réaction sont lentes. On peut donc se contenter d'explorer quelques régions du tableau périodique des éléments, avec des pas en énergie relativement grands. En revanche, si l'on veut bien maîtriser les différentes étapes du mécanisme, il est nécessaire d'avoir des données concernant les taux de production et les caractéristiques de tous les produits de la réaction (neutrons, particules chargées, résidus). L'idéal serait, en fait, de mesurer simultanément tous ces produits, événement par événement. De nombreuses expériences ont été réalisées dans le cadre de programmes européens permettant une coordination des résultats. Les différentes équipes du CEA ont plus particulièrement participé à l'obtention de données concernant la production de neutrons sur l'accélérateur SATURNE (désormais fermé) et la mesure des résidus auprès de l'accélérateur du GSI en Allemagne (fig. 19). Pour la production des novaux résiduels, des avancées considérables ont été réalisées grâce à la technique de la cinématique inverse qui a permis de mesurer simultanément l'ensemble des noyaux produits dans une réaction et leur vitesse de recul. Cette méthode utilise un faisceau d'ions lourds bombardant une cible de protons, en fait de l'hydrogène liquide. L'avantage est que les noyaux ainsi produits sont fortement focalisés vers l'avant, du fait de la vitesse d'entraînement. Il devient alors facile de les identifier grâce à une succession d'aimants et de détecteurs. Les distributions isotopiques mesurées à GSI ont notamment aidé à tester le comportement des modèles nucléaires, en ce qui concerne la compétition entre l'émission de neutrons, de particules chargées et la fission. On est passé ensuite à une seconde génération d'expériences, toujours en cinématique inverse au GSI, de mesure simultanée de différents produits de la réaction, par exemple résidus et particules légères, qui permettent d'accéder aux caractéristiques du noyau avant désexcitation et, par conséguent, de mieux contraindre séparément les modèles de cascade et de désexcitation.

Plus généralement, la qualité des données expérimentales a permis une meilleure compréhension du mécanisme de la réaction et des raisons des défauts des modèles existants. De nouveaux modèles ont donc été développés en collaboration avec des théoriciens, en particulier, le modèle de cascade intra-nucléaire de Liège, INCL4, et le modèle de désexcitation ABLA, du groupe de GSI à Darmstadt. Cette combinaison INCL4-ABLA a été introduite dans des codes de transport de haute énergie, couramment utilisés pour la conception des ADS et se trouve donc maintenant disponible pour l'ensemble de la communauté. Récemment, une inter-comparaison des



Fig. 19. Les nombreux noyaux dont le taux de production a été mesuré dans une expérience utilisant un faisceau de plomb de 1 GeV par nucléon au GSI, Darmstadt. Les carrés représentent les noyaux stables.

modèles de spallation utilisés dans les codes de transport, organisée par l'AIEA, a montré que INCL4-ABLA était le modèle donnant le meilleur accord avec l'ensemble des données disponibles, en particulier en ce qui concerne les taux de production des résidus.

## Les mesures intégrales

Une fois les modèles de physique intégrés dans les codes de transport, il est nécessaire de tester ceux-ci sur des expériences intégrales afin d'évaluer leur degré de prédictibilité des grandeurs utiles pour les applications. On fait alors des mesures sur des cibles, dites « épaisses », représentatives d'une cible de spallation. Par exemple, une expérience de mesure des produits de fission volatils sur une cible épaisse de Plomb-Bismuth, réalisée au CERN, a confirmé que les nouveaux modèles reproduisent de façon bien meilleure que les anciens les taux de production observés. De même, les spectres en énergie des neutrons s'échappant d'une cible épaisse sont relativement bien reproduits par les modèles. Cela indique que les calculs de fuites de neutrons de haute énergie, importants pour les problèmes de blindage et de radioprotection, peuvent être considérés comme suffisamment fiables. La cible de spallation, MEGAPIE, en plomb-bismuth, qui a été irradiée avec succès pendant quatre mois par le faisceau intense de protons de la source SINQ à l'Institut Paul Scherrer de Zürich, a été le premier test en vraie grandeur d'une cible en métal liquide telle que celles envisagées pour les ADS. Après une période de décroissance de la radioactivité, de nombreux échantillons ont été prélevés et sont en cours d'analyse, ce qui permettra de répondre aux questions concernant les résidus produits et les dommages causés aux matériaux.

L'ensemble de ces études, originellement motivées par les ADS et les sources de spallation, devrait conduire, à terme, à des codes de simulation fiables pouvant être utilisés dans de nombreux autres domaines : spatial, pour la radioprotection des astronautes, les dégâts sur les composants électroniques (en effet, le rayonnement cosmique est constitué majoritairement de particules légères dont le spectre présente un maximum autour du GeV), médical dans le cadre des traitements par hadronthérapie ou la production d'isotopes, astrophysique, radioprotection auprès des accélérateurs de particules...

### Bibliographie

FILGES (D.) and GOLDENBAUM (F.), Handbook of Spallation Research Theory, Experiments and Applications, Wiley VCH, Berlin, 2010.

GUDOWSKI (W.), "Accelerator-driven Transmutation Projects. The importance of Nuclear Physics Research for Waste Transmutation", *Nuclear Physics A* 654, pp. 436c-457c, 1999.

AïT ABDERRAHIM (H.), Baeten (P.), DE BRUYN (D.), HEYSE (J.), SCHUURMANS (P.) and WAGEMANS (J.), "MYRRHA, a Multi-purpose Hybrid Research Reactor for High-end Applications", *Nuclear Physics News*, vol. 20, Issue 1, pp. 24-28, 2010.

BAUER (G.S), SALVATORES (M.) and HEUSENER (G.), "MEGAPIE, a 1 MW pilot experiment for a liquid metal spallation target", *Journal of Nuclear Materials*, 296, pp. 17-33, 2001.

BOUDARD (A.), CUGNON (J.), LERAY (S.) and VOLANT (C.), "Intranuclear cascade model for a comprehensive description of spallation reaction data", *Physical Review* C 66, 044615 -1 to 28, 2002.

LERAY (S.) *et al.*, "Results from the IAEA Benchmark of Spallation Models", *Journal of the Korean Physical Society*, 59(2), pp. 791-796, 2011.

ZANINI (L.) *et al.*, "Experience from the post-test analysis of MEGAPIE", *Journal of Nuclear Materials*, 415(3): pp. 367-377, 2011.

LERAY (S.), "Specific features of particle/matter interaction for accelerator-driven sub-critical reactors", *Materials Issues for Generation IV Systems: Status, Open Questions and Challenges*, (Editors: V. Ghetta, D. Gorse, D. Mazière, V. Pontikis), pp. 559-573, 2008.

#### Sylvie LERAY

Institut de recherche sur les lois fondamentales de l'univers.