

UNIVERSITÉ DE NANTES
FACULTÉ DES SCIENCES ET TECHNIQUES

ÉCOLE DOCTORALE
SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE L'INFORMATION ET DES MATÉRIAUX

Année : 2008

N° attribué par la bibliothèque

--	--	--	--	--	--	--	--	--	--

Mesures de taux de production d'éléments gazeux et volatiles lors de réactions induites par des protons de 1 et 1,4 GeV sur des cibles épaisses de plomb et plomb-bismuth liquides

THÈSE DE DOCTORAT
Discipline : Physique
Spécialité : Physique nucléaire

*Préparée à l'École Nationale Supérieure des Techniques Industrielles et des Mines de Nantes
Présentée et soutenue publiquement par*

Yoro TALL

Le 20 mars 2008, devant le jury ci-dessous

<i>Président</i>	M. SEBILLE François, <i>Professeur, Université de Nantes</i>
<i>Rapporteurs</i>	M. BARREAU Gérard, <i>Directeur de Recherche CNRS, CEN Bordeaux Gradignan</i>
	M. GRÖSCHEL Friedrich, <i>Docteur, Paul Scherrer Institut</i>
<i>Examineurs</i>	M. EUDES Philippe, <i>Professeur, Université de Nantes</i>
	M. GUERTIN Arnaud, <i>Chargé de Recherche CNRS, SUBATECH Nantes</i>
	M. ZANINI Luca, <i>Docteur, Paul Scherrer Institut</i>

Directeur de thèse : Philippe Eudes, *Professeur, Université de Nantes*

N° ED 366-353

A ma femme Zahra

A ma fille Diary

“Xamul aay na wànte, laajtewul a ka yéés.”

“Ne pas savoir n’est pas recommandé, mais ne pas questionner c’est pire. ”

Proverbe Wolof

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier Arnaud Guertin pour avoir accepté de continuer avec moi comme directeur scientifique, pour sa grande disponibilité quand j'avais besoin de son aide, pour m'avoir fourni tous les outils nécessaires qui m'ont facilité la tâche, son engagement, son implication dans la thèse et son enthousiasme.

Je remercie mon directeur de thèse Philippe Eudes pour son soutien et sa disponibilité et merci à Jacques Martino pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire SUBATECH.

Je remercie mes rapporteurs, Gerrard Barreau et Friedrich Gröschel, pour avoir accepté de lire, de juger ce mémoire ainsi que leurs remarques qui ont aidé à améliorer le travail de thèse. Les mêmes remerciements vont à François Sébille, président du jury de thèse et aux examinateurs Philippe Eudes, Arnaud Guertin et Luca Zanini.

Je remercie fortement Luca Zanini pour son étroite collaboration et ces longues journées de travail passées ensemble. Je n'oublie pas de remercier tous les membres de la collaboration IS419 particulièrement Thomas Kirchner, Klara Berg, Enzo Manfrin, Ulli Köster, ...

Je remercie Thomas Kirchner de m'avoir donné l'opportunité de faire ce travail de thèse, merci pour les conseils et les remarques malgré maintenant la distance qui nous sépare. Merci à toi, Dominique, pour ton appui, ton soutien et tes conseils bien avisés qui me seront toujours précieux.

Merci à Nicolas Thiollière, je n'ai pas oublié les discussions, tes remarques et tes questionnements qui m'ont aidé dans mon travail.

Je remercie Emmanuel Pleiber, Michael Bailly, Lydie Giot, Vincent Métivier, Muriel Fallot, ..., pour leur collaboration durant mes travaux de thèse.

Mes remerciements vont à l'ensemble du personnel du laboratoire SUBATECH pour leur encouragement et soutien durant les quatre bonnes années (stage DEA et thèse) que j'ai passées au laboratoire.

Je tiens à témoigner mon amitié à l'ensemble des thésards nouveaux ou anciens, ce sont eux qui ont mis du sel à ma présence au laboratoire. Je les cite : Ahmed, Cyril,

Guénolé, Jérôme D., Karim, Lamia, Mickaël, Olivier, Raphaëlle, Samuel, Sandra, Sarah, Sébastien, Thibault, Thomas, etc. Toutes mes pensées vont au regretté Matthieu Vatré qui nous a quitté malheureusement si tôt.

Je tiens à remercier toute ma famille particulièrement ma femme Zahra, mes sœur Faty, Hapsa et Marième, mes frères Abdou et Bass et ma mère pour leur soutien et leur présence.

Mes remerciements vont aussi à mes amis sénégalais, Mame Fatou, Malick, Aliou, ..., pour les bons moments passés ensemble.

Sans oublier personne.

Table des matières

Introduction	1
1 Contexte énergétique et nucléaire	5
1.1 Production d'énergie et enjeux environnementaux	5
1.2 La gestion des déchets nucléaires	6
1.2.1 En France	7
1.2.2 En Europe	13
1.3 Le concept d'ADS	15
1.3.1 Historique	15
1.3.2 Principe de base	16
1.3.3 Intérêt de la transmutation des actinides mineurs dans les ADS	17
1.3.4 Programme européen dédié	17
1.4 Cadre et problématique de la thèse	19
1.5 Etat de l'art	21
2 Expérience IS419 : mécanismes physiques et outils de simulations	27
2.1 La réaction de spallation	28
2.1.1 La cascade intranucléaire	30
2.1.2 La désexcitation	31
2.2 Le relâchement des gaz et éléments volatiles	34
2.3 Outils de simulations	37
2.3.1 Le code de transport MCNPX	37
2.3.2 Les modèles de cascade intranucléaire	38
2.3.3 Les modèles de désexcitation	43
2.3.4 Le code d'évolution CINDER'90	47
3 Expérience IS419 : dispositif et procédure de détection	51
3.1 Dispositif expérimental	51
3.1.1 Le faisceau de protons	52
3.1.2 La cible de spallation	53
3.1.3 La source d'ions	55
3.1.4 Le séparateur de masse GPS	56
3.2 Détection des faisceaux d'ions radioactifs	57
3.2.1 Détection hors ligne	58
3.2.2 Détection en ligne	59

TABLE DES MATIÈRES

3.3	Campagne de mesure	60
3.3.1	Déroulement des mesures	60
3.3.2	Bilan des mesures	62
4	Analyse des données expérimentales	65
4.1	Efficacité d'ionisation	66
4.2	Efficacité de transmission	71
4.3	Etalonnage des détecteurs germanium	73
4.4	Détermination du bruit de fond	76
4.4.1	Détecteurs germanium	76
4.4.2	Cages de Faraday	77
4.5	Calcul de l'activité au dessus de la surface libre	78
5	Résultats expérimentaux	83
5.1	Dépendance en température des taux de relâchement	83
5.1.1	Mesures par γ -spectroscopie	84
5.1.2	Mesures par cages de Faraday	85
5.2	Fonction de relâchement	87
5.3	Mesures des taux de production	89
5.3.1	Hélium	90
5.3.2	Krypton et xénon	91
5.3.3	Mercure	91
5.3.4	Astate	95
5.3.5	Iode	98
6	Comparaison avec les codes de simulations	101
6.1	Gaz rares	101
6.1.1	Hélium	101
6.1.2	Xénon	103
6.1.3	Krypton	106
6.1.4	Néon et argon	108
6.2	Mercure	109
6.3	Astate	109
6.4	Iode, brome et cadmium	112
	Conclusion	117
	A Projet MEGAPIE et production de gaz	121
	B Compilation des résultats obtenus	133
	Bibliographie	141

Table des figures

1.1	Les grandes dates et les objectifs de la gestion des déchets radioactifs définis par la loi de 2006.	12
1.2	Représentation schématique d'un réacteur sous-critique piloté par accélérateur.	16
1.3	Taux de relâchement du Hg et du Tl à partir de Pb-Bi eutectique sous différents environnements gazeux et différentes concentrations de Hg. . . .	24
2.1	Principe schématique de l'expérience IS419.	27
2.2	Représentation schématique du mécanisme de la réaction de spallation. . .	28
2.3	Sections efficaces isotopiques des noyaux résiduels produits par spallation du ^{208}Pb (1 GeV par nucléon) sur l'hydrogène. Les niveaux représentent les valeurs des sections efficaces.	29
2.4	Evolution de la barrière de fission B_f en fonction de la fissilité.	33
2.5	Comparaison entre trois distributions de densité de nucléons dans le noyau ^{65}Cu : distribution déterminée expérimentalement par Hofstadter (pointillé), distribution suivant trois régions, adoptée dans le modèle de Bertini (ligne pleine) et distribution de la densité nucléaire en une seule région (tirets).	39
3.1	Vue schématique de l'installation ISOLDE.	52
3.2	Structure temporelle du faisceau de protons délivré par le PSB.	53
3.3	La cible ISOLDE. A gauche, le cylindre en tantale, conteneur de la cible liquide. A droite, le cylindre est placé sur son support et connecté à la source d'ionisation. L'axe du faisceau correspond à celui du cylindre. . . .	54
3.4	Vue schématique de la source d'ionisation à plasma connectée à la cible par la ligne de transfert.	55
3.5	Vue schématique du séparateur GPS.	57
3.6	Implantation des radioisotopes sur feuille d'aluminium. En haut à gauche : extrémité de la ligne GLM où sont placées les feuilles d'aluminium pour la collection de faisceaux d'ions radioactifs. En haut à droite : vue de dessus montrant les feuilles d'aluminium insérées dans la ligne GLM. La flèche indique la direction et le sens des faisceaux d'ions radioactifs produits. En bas : feuille d'aluminium sur son support prête à être utilisée.	58
3.7	Dispositif installé sur la ligne centrale constitué d'une bande de transport métallisée et d'un détecteur germanium	59

TABLE DES FIGURES

4.1	Vue schématique du dispositif expérimental avec une mise en évidence de la position des cages de Faraday ayant servi à déterminer les efficacités d'ionisation et de transmission.	65
4.2	Courant de $^{132}\text{Xe}^+$ mesuré en fonction du courant appliqué induisant le champ magnétique à l'intérieur de la source, pour trois valeurs de potentiel à l'anode 1.	66
4.3	Courant mesuré pour différents isotopes en fonction du potentiel à l'anode 1.	67
4.4	Courant de $^{202}\text{Hg}^+$ en fonction de la température de la cible.	69
4.5	Efficacité d'ionisation en fonction du potentiel de première ionisation. . . .	71
4.6	Efficacité de transmission de la ligne centrale en fonction de la masse atomique des isotopes.	72
4.7	Efficacité de transmission de la ligne GLM en fonction de la masse atomique des isotopes.	73
4.8	Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur germanium hors ligne.	74
4.9	Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur germanium en ligne.	75
4.10	Efficacité du détecteur germanium hors ligne en fonction de l'énergie. . . .	75
4.11	Efficacité du détecteur germanium en ligne en fonction de l'énergie.	76
4.12	Mesure du bruit de fond.	77
4.13	Schéma de désintégration du ^{124}I	79
4.14	Schéma de désintégration du ^{131}Xe	79
4.15	Schéma de désintégration du ^{191}Hg	80
4.16	Schéma de désintégration du ^{79}Kr	80
4.17	Schéma de désintégration du ^{85}Kr	82
5.1	Dépendance en température des taux de relâchement des isotopes ^{123}Xe , ^{111m}Cd , $^{209,210}\text{At}$ et ^{203}Hg mesurés hors ligne par γ -spectroscopie.	85
5.2	Courant de $^{82}\text{Kr}^+$ mesuré en fonction du temps aux températures de la cible 500° et 650°C par la cage de Faraday.	86
5.3	Courant de $^{204}\text{Hg}^+$ mesuré en fonction du temps aux températures de la cible 500° et 650°C par la cage de Faraday.	86
5.4	Fonctions de relâchement mesurées en ligne par une cage de Faraday. Ces mesures ont été réalisées avec une cible de Pb liquide à la température de 600°C et irradiée avec un faisceau de protons d'énergie 1,4 GeV.	88
5.5	Taux de production d'isotopes de krypton mesurés pour un faisceau de protons de 1 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600°C	92
5.6	Taux de production d'isotopes de krypton mesurés pour un faisceau de protons de 1,4 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600°C	92
5.7	Taux de production d'isotopes de xénon mesurés pour un faisceau de protons de 1 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600°C	93
5.8	Taux de production d'isotopes de xénon mesurés pour un faisceau de protons de 1,4 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600°C	93
5.9	Taux de production d'isotopes de mercure mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600°C et une énergie faisceau de 1,4 GeV.	94
5.10	Taux de production d'isotopes de mercure mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600°C et une énergie faisceau de 1 GeV.	95

TABLE DES FIGURES

5.11	Taux de production d'isotopes d'astate mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C et une énergie faisceau de protons 1 GeV.	96
5.12	Taux de production d'isotopes d'astate mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C et une énergie faisceau de protons 1,4 GeV.	96
5.13	Dépendance en température du relâchement du polonium à partir de deux échantillons de masses différentes dans du Pb-Bi liquide.	97
5.14	Taux de production d'iode mesurés à la température de Pb-Bi liquide à 600 °C.	98
5.15	Dépendance en température du relâchement d'iode dans du Pb-Bi liquide.	99
6.1	Fonction de relâchement de l' ⁴ He généré par un faisceau de protons d'énergie 1,4 GeV sur une cible de Pb liquide portée à la température de 400 °C.	102
6.2	Taux de production d'isotopes de xénon, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	103
6.3	Distribution de l'énergie d'excitation dans la réaction de spallation p (1 GeV) + Pb calculée avec le modèle de cascade de Cugnon INCL.	105
6.4	Taux de production d'isotopes de xénon, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	106
6.5	Taux de production d'isotopes de krypton, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	107
6.6	Taux de production d'isotopes de krypton, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	107
6.7	Taux de production d'isotopes de mercure, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	110
6.8	Taux de production d'isotopes de mercure, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	110
6.9	Taux de production d'isotopes d'astate, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	111
6.10	Taux de production d'isotopes d'astate, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	111
6.11	Taux de production d'isotopes d'iode, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	113
6.12	Taux de production d'isotopes d'iode, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	113

TABLE DES FIGURES

A.1	Représentation schématique de la cible MEGAPIE.	123
A.2	Représentation de la partie supérieure de MEGAPIE : le vase d'expansion placé au dessus de la surface libre de la cible récupère tous les éléments gazeux ou volatiles ayant diffusé hors de la cible liquide au Pb-Bi.	124
A.3	L'évolution de la pression dans le vase d'expansion mesurée par deux capteurs au cours de l'irradiation de MEGAPIE.	125
A.4	L'évolution de la pression dans le vase d'expansion en fonction du temps d'irradiation obtenue expérimentalement et par simulation avec INCL4/ABLA. La ligne pleine indique les résultats des mesures de pression par le capteur 2 et les pointillés ceux de simulations INCL4/ABLA.	126
A.5	Mesures par γ -spectroscopie de deux échantillons prélevés dans le vase d'expansion. La γ -spectroscopie ne détecte pas d'isotopes de mercure et d'or dans le premier échantillon dont les mesures sont représentées en violet. Les mesures du second échantillon en bleu montre des raies correspondant à des isotopes d'or et de mercure.	128
A.6	Comparaison entre la production en gramme dans le vase d'expansion pour les isotopes d'argon, de krypton, de xénon, d'or et de mercure obtenue avec les simulations INCL4/ABLA et les mesures de relâchement des mêmes isotopes pris à partir d'un échantillon dans le vase d'expansion et normalisées au volume total du vase.	129

Liste des tableaux

1.1	Production mondiale d'énergie primaire (exprimée en milliards de tonnes équivalent pétrole ou Gtep) - Année 2004.	5
1.2	Classification française des déchets radioactifs et filières de gestion à long terme (existantes ou à l'étude).	7
1.3	Liste des principaux produits de fission, d'actinides majeurs et mineurs à vie longue avec leur période de décroissance.	13
1.4	Inventaire des principaux éléments à vie longue présents dans un combustible usé à l'oxyde d'uranium (UOX) déchargé à 33 GW.j/t.	14
1.5	Principales caractéristiques des concepts étudiés dans le domaine 1 du projet EUROTRANS du 6 ^e PCRD (* : Option alternative envisagée).	18
1.6	Liste de quelques isotopes produits par spallation dans les cibles d'ADS avec leur période (a : année, j : jour, h : heure), leur coefficient de dose efficace engagée par ingestion C_i en Sv/Bq, leur activité en Bq/ μ g et leur radiotoxicité en Sv/ μ g.	20
3.1	Techniques de détection utilisées dans l'expérience IS419.	60
3.2	Valeurs moyennes de courant de protons sur la cible à différents intervalles de temps pendant la troisième phase d'irradiation.	61
3.3	Récapitulation des principaux paramètres de l'expérience.	62
3.4	Liste des isotopes mesurés avec une cible de Pb-Bi liquide portée à 600 °C et avec un faisceau de protons à 1 GeV.	63
3.5	Liste des isotopes mesurés avec une cible de Pb-Bi liquide portée à 600 °C et avec un faisceau de protons à 1,4 GeV.	63
3.6	Liste des isotopes mesurés pour différentes températures de la cible.	64
4.1	Efficacités d'ionisation de la source à plasma obtenues par la méthode des gaz rares.	68
4.2	Efficacités d'ionisation de la source à plasma associées aux valeurs du potentiel de première ionisation des éléments mesurés	70
4.3	Liste des sources utilisées pour l'étalonnage des détecteurs germanium.	74
5.1	Productions intégrales du ^4He , ^{80}Kr , ^{84}Kr , ^{124}Xe , ^{196}Hg et ^{194}Hg tirées de leur fonction de relâchement.	89
6.1	Comparaison des énergies d'excitation moyennes obtenues expérimentalement et par simulations avec Bertini et INCL4.	104

LISTE DES TABLEAUX

6.2	Taux de productions des isotopes de néon à 1,4 GeV et d'argon à 1 GeV comparés aux simulations Monte Carlo.	108
6.3	Taux de relâchement d'isotopes de brome et de cadmium obtenus par γ -spectroscopie hors ligne et comparés aux résultats de simulations MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	114
A.1	Historique d'irradiation de la cible MEGAPIE.	124
A.2	Liste des isotopes diffusés dans le vase d'expansion : les activités des isotopes en Bq est obtenue expérimentalement et par simulation INCL4/ABLA.	129
B.1	Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de 600 °C et une énergie faisceau de protons de 1,4 GeV. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	134
B.2	Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de 600 °C et une énergie faisceau de protons de 1,4 GeV. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	135
B.3	Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de 600 °C et une énergie faisceau de protons de 1 GeV. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	136
B.4	Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de 600 °C et une énergie faisceau de protons de 1 GeV. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	137
B.5	Taux de relâchement de différents isotopes mesurés pour des température de la cible au Pb-Bi liquide de 500, 400, 300 et 250 °C.	138
B.6	Mesure avec une cible de spallation au Pb liquide portée à la température de 520 °C et une énergie faisceau de protons de 1,4 GeV. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).	139

Introduction

Dans le cadre des recherches sur les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur, plus communément appelés ADS pour Accelerator Driven System, dédiés à la transmutation des déchets nucléaires, de nombreuses questions se posent et pour y répondre des expériences dédiées sont mises en place. Un exemple est le développement d'une cible de spallation pour un ADS, où la production de nombreux radioisotopes induite par l'interaction d'un faisceau intense de protons avec une cible liquide est d'une importance fondamentale, en particulier pour des raisons de sûreté.

Dans la feuille de route européenne pour le développement des ADS pour la transmutation des déchets nucléaires, le projet clef pour le couplage faisceau-cible est MEGAPIE, MEGawatt Pilot Experiment. Ce projet est une initiative lancée par le Commissariat à l'Energie Atomique (France), le Forschungszentrum Karlsruhe (Allemagne) en collaboration avec le Paul Scherrer Institut (Suisse) pour concevoir, construire et faire fonctionner une cible en plomb-bismuth liquide. Le but du projet MEGAPIE était de démontrer la faisabilité d'une telle cible pour une puissance faisceau record de 1 Megawatt.

Pendant la phase de conception, de nombreux aspects de sûreté ont dû être considérés. L'un d'entre eux concerne la production d'éléments volatiles au cours du fonctionnement. Lorsque la cible de plomb-bismuth eutectique est en fonctionnement, dans une gamme de température comprise entre 300 °C et 400 °C, des déchets radiotoxiques sont produits. Une partie des noyaux produits est plus ou moins volatile dans cette gamme de température. Les produits volatiles diffusent hors de la cible et sont collectés dans la partie haute de la cible. Les éléments volatiles produits sont l'azote, l'oxygène, le mercure, le brome et l'iode des halogènes ainsi que l'hélium, le néon, l'argon, le krypton et le xénon des gaz rares. On s'intéresse à ces gaz pour plusieurs raisons :

INTRODUCTION

- quelques gaz stables, en particulier l'hélium 4 et l'hydrogène, sont supposés être produits relativement en grande quantité (dans le cas de MEGAPIE, environ 1 litre par mois prédit par simulation numérique) et un système dédié à la gestion des gaz doit donc être mis en place pour éviter une augmentation de pression trop importante à l'intérieur de la cible.
- il est important de connaître le taux de production d'éléments légers pour estimer les possibles dommages aux matériaux de structure.
- la production de tous ces radioéléments concerne au premier chef la sûreté. Les éléments à durée de vie longue sont bien sûr d'un intérêt majeur, mais les éléments de courte durée de vie sont aussi importants en cas d'accident.

Ces dernières années, un gros effort de recherche a été porté sur les études de physique nucléaire "basiques" d'intérêt pour les ADS. Cet effort a débouché sur un renouveau des études liées à la production d'isotopes par spallation sur des matériaux lourds. Les expériences en "cinématique inverse" ont permis d'explorer sur une grande région de masse les sections efficaces de production sur cible mince. Ces expériences, avec le développement des codes de transport Monte Carlo, ont mené à une meilleure compréhension de la spallation et de ses processus ainsi qu'au développement de nouveaux modèles théoriques.

Dans le cas d'une cible d'ADS, où la production des isotopes provient d'un grand volume de plomb-bismuth, il faut considérer non seulement la production des éléments volatiles mais aussi leur relâchement en dehors de ce volume. Pour MEGAPIE, un système de gaz de couverture a été conçu pour gérer efficacement le volume de gaz produit. Une vérification des taux de production prédits par les codes utilisés pendant la phase de conception est donc importante.

Il est important de mesurer aussi les taux de production des éléments moins volatiles comme le cadmium et l'astate. L'astate décroît sur le polonium qui est hautement radio-toxique. Les isotopes du polonium sont émetteurs alpha avec des durées de vie longues. Des isotopes du polonium sont aussi produits par spallation à l'intérieur de la cible mais ne sont pas supposés être relâchés dans la gamme de température de fonctionnement du projet MEGAPIE.

INTRODUCTION

Pour étudier la production et le relâchement des éléments volatiles produits dans une cible de plomb-bismuth eutectique, une expérience, IS419, avec une cible liquide de plomb-bismuth a été réalisée au Centre Européen de la Recherche Nucléaire en Suisse dans l'installation ISOLDE avec des faisceaux de protons de 1 et 1,4 GeV d'énergie.

Après une brève introduction exposant les motivations principales de ce travail de thèse, le premier chapitre présente le contexte énergétique et nucléaire au niveau mondial ainsi que la politique de gestion des déchets nucléaires en France et en Europe. Une des voies explorées pour gérer les déchets de haute activité et à vie longue est leur transmutation dans un ADS. Le développement d'un démonstrateur de la transmutation en ADS repose, entre autre, sur la conception d'une cible de spallation capable de fournir un flux intense de neutrons. L'interaction d'un faisceau de protons de haute énergie, typiquement de l'ordre du GeV, avec une cible liquide de noyaux lourds satisfait à cette tâche mais s'accompagne aussi de la production de nombreux radioisotopes.

Dans le deuxième chapitre, les mécanismes de spallation et du relâchement des éléments produits dans la cible sont détaillés. Les modèles théoriques de cascade et d'évaporation/fission que nous avons choisis d'utiliser dans les simulations numériques réalisées avec le code de transport Monte Carlo MCNPX y sont aussi exposés. Le chapitre suivant introduit le dispositif de l'expérience IS419 et les techniques de détections utilisées.

Le quatrième chapitre développe la procédure d'analyse des données accumulées au cours des différentes campagnes de mesures. Les résultats obtenus concernant la dépendance en température des taux de relâchement, les fonctions de relâchement et les taux de production sont alors présentés dans le cinquième chapitre. Le dernier chapitre est consacré à la comparaison des résultats expérimentaux avec les simulations Monte Carlo.

INTRODUCTION

Chapitre 1

Contexte énergétique et nucléaire

1.1 Production d'énergie et enjeux environnementaux

La production mondiale d'énergie primaire¹ s'élève aujourd'hui à plus de 11 Gtep² [1] pour une population mondiale de 6 milliards d'individus. Le tableau 1.1 donne la répartition de cette production en fonction de la source d'énergie considérée.

SOURCE PRIMAIRE	Gtep/an	%
Fossile	9,15	81
<i>dont</i>		
<i>Charbon/Pétrole/Gaz</i>	<i>2,8/3,95/2,4</i>	<i>24,8/35/21,2</i>
Nucléaire	0,7	6,2
Renouvelables	1,45	12,8
<i>dont</i>		
<i>Hydraulique</i>	<i>0,25</i>	<i>2,2</i>
<i>Biomasse, Solaire, Eolien, etc.</i>	<i>1,2</i>	<i>10,6</i>
TOTAL	11,3	100 %

TAB. 1.1 – Production mondiale d'énergie primaire (exprimée en milliards de tonnes équivalent pétrole ou Gtep) - Année 2004.

Comme on peut le lire dans le tableau 1.1, plus de 80 % de notre production en énergie fait recours aux énergies fossiles (charbon, pétrole et gaz) qui sont les principales génératrices de gaz à effet de serre et donc responsables en partie du changement climatique de la planète [2]. La part des énergies renouvelables reste faible dans la production ac-

¹On appelle énergie primaire l'énergie disponible dans la nature avant toute transformation.

²Gtep = gigatonne équivalent pétrole.

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

tuelle malgré leur diversification. Les énergies renouvelables principalement la biomasse, le solaire et l'éolien contribuent à hauteur de 13 % dans la production mondiale d'énergie primaire. La part d'énergie d'origine nucléaire de l'ordre 6 %, est relativement faible.

Selon les prévisions de l'Agence Internationale de l'Énergie (AIE), la production actuelle sera doublée dans les années 2040 - 2050 [1], soit une production de plus d'une vingtaine de Gtep pour une population de 9 à 10 milliards d'habitants. L'augmentation de la production est une conséquence directe de l'accroissement des besoins en énergie et de l'émergence de nouvelles puissances mondiales telles que la Chine, le Brésil ou l'Inde. Le rythme actuel et la nature de la consommation des ressources énergétiques accroissent considérablement la charge sur l'environnement mondial. Afin d'assurer un développement durable, il importe de trouver les moyens nécessaires pour inverser ces tendances ou même les stopper. Il faudra pour cela se doter des outils nécessaires pour bâtir un avenir énergétique plus intelligent, propre et économique. La plupart des pays industrialisés devra consentir à de grands efforts en matière de maîtrise de l'énergie. De nombreuses pistes sont explorées à ce jour telles que le développement des énergies renouvelables, l'amélioration des techniques de captation et de séquestration du CO₂, l'augmentation de la part du gaz dans le bilan énergétique ainsi que celle du nucléaire...

Il est probable que le nucléaire occupera dans le futur une place de choix puisque sa production s'accompagne d'une très faible quantité de CO₂. Le recours à l'énergie nucléaire devra prendre en compte des critères de développement : sûreté, compétitivité économique, optimisation des ressources, résistances à la prolifération et aux agressions externes ainsi que la minimisation des déchets. En effet, la production d'énergie nucléaire est indissociable d'une production rédisuelle de déchets nucléaires radioactifs dont la gestion constitue un des défis des prochaines décennies.

1.2 La gestion des déchets nucléaires

La gestion de ces déchets s'inscrit en France dans le cadre de la loi Bataille de 1991 [3] et de celle de 2006 [4]. En Europe, un vaste programme de recherche et de développement sur la gestion des déchets radioactifs est mené dans le cadre du projet intégré EUROTRANS

1.2. LA GESTION DES DÉCHETS NUCLÉAIRES

(European Research Programme for the Transmutation of High Level Nuclear Waste in an Accelerator Driven System) du sixième PCRD (Programme Cadre de Recherche et Développement) [5].

1.2.1 En France

Les déchets radioactifs sont classés suivant leur niveau de radioactivité et leur période [6]. Ils sont dits à vie longue lorsque leur période dépasse trente ans, à vie courte dans le cas contraire. La classification, présentée dans le tableau ci-dessous, est établie par l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs). Elle permet une meilleure gestion des déchets radioactifs en affectant à chaque catégorie sa destination, son mode de conditionnement et sa filière de gestion à long terme.

Catégorie	VIE TRES COURTE	VIE COURTE (VC) $\leq 30 \text{ ans}$	VIE LONGUE (VL) $\geq 30 \text{ ans}$
Très faible activité (TFA)	Déchets gérés en laissant décroître la radioactivité sur place	Centre de stockage TFA	
Faible activité (TFA)		<ul style="list-style-type: none"> ◊ Centre de stockage de surface (actuellement Centre de stockage FMA de l'Aube) ◊ A l'étude pour les déchets tritiés 	A l'étude (déchets radifères, de graphite)
Moyenne activité (MA)		A l'étude dans le cadre de l'article L542-1 à 14 du Code de l'environnement (loi du 30 decembre 1991)	
Haute activité (HA)			

TAB. 1.2 – Classification française des déchets radioactifs et filières de gestion à long terme (existantes ou à l'étude).

La classification des déchets radioactifs selon l'ANDRA comporte les catégories suivantes :

- Les déchets de très faible activité (TFA)

Ils contiennent une très faible quantité de radionucléides. Leur activité est de l'ordre de 10 à 100 Bq/g ce qui de fait les exclut de la catégorie des déchets conventionnels. Les déchets TFA sont issus essentiellement du démantèlement des installations nucléaires, de l'exploitation des installations et d'assainissement des sites. Ils sont composés de bétons,

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

gravats, terres (50 à 60 %), déchets métalliques (20 à 40 %), déchets non métalliques (environ 10 %) et déchets dangereux chimiquement (1 à 5 %).

La gestion de ce type de déchets se fait par décroissance radioactive dans des alvéoles creusées dans l'argile dans le centre de stockage de Morvilliers dans l'Eure-et-Loir. Ce centre ouvert en août 2003 a une capacité de 650000 m³, soit une durée d'exploitation d'une trentaine d'années selon les prévisions de l'ANDRA.

- Les déchets de faible et moyenne activité à vie courte (FMA-VC)

Cette catégorie regroupe principalement les déchets solides d'exploitation, de maintenance ou de démantèlement compactables. Il s'agit de gants, filtres, sacs vinyl, ferrailles... Leur nocivité ne dépasse pas 300 ans.

Ces déchets sont placés en surface dans le centre de stockage de la Manche fermé depuis 1994 et en observation depuis 2003. Sa capacité de 527000 m³ a été atteinte. Actuellement, le centre de stockage de l'Aube accueille ce type de déchets. Avec sa capacité de 1 million de m³, le centre de stockage de l'Aube est conçu pour fonctionner pendant une soixantaine d'années.

- Les déchets de faible activité à vie longue (FA-VL)

Ce sont principalement des déchets radifères provenant des installations non nucléaires d'extraction de terres rares, d'yttrium et des déchets graphites issus de l'ancienne filière UNGG, Uranium Naturel Gaz Graphite, en déconstruction.

Leur gestion en sub-surface est à l'étude. La mise en service d'un stockage est prévue en 2010, en attendant ces déchets sont entreposés sur place, notamment dans les réacteurs arrêtés de la filière UNGG de Chinon, Marcoule, Saint-Laurent et Bugey.

- Les déchets de moyenne activité et à vie longue (MA-VL)

Cette famille concerne les grappes poisons et de commande, les déchets métalliques divers activés dans les réacteurs. Leur gestion est à l'étude dans le cadre de la loi du 30 décembre 1991 présentée dans le paragraphe suivant.

1.2. LA GESTION DES DÉCHETS NUCLÉAIRES

- Les déchets de haute activité (HA)

Ils sont composés de produits de fission et d'actinides mineurs provenant des combustibles usés. Les principales sources de ces déchets radioactifs sont les réacteurs nucléaires dédiés à la production d'électricité. La part du secteur de la recherche dans leur production reste très faible.

Le devenir de ces deux derniers types de déchets, haute et moyenne activité à vie longue, est étudié dans le cadre de la loi Bataille du 30 décembre 1991 qui avait fixé trois axes principaux de recherche pour leur gestion à long terme. Une nouvelle loi sur la gestion durable des déchets radioactifs, précédemment énoncée dans celle de 1991, conclut en 2006 quinze années de recherche ponctuées d'importants progrès. Cette nouvelle loi confirme l'importance et la complémentarité des trois axes de recherche et précise le stockage réversible en formation géologique profonde comme la solution de référence. Les trois axes de recherche sont :

- axe 1 : La séparation et la transmutation

La séparation est antérieure à la transmutation. Elle permet de séparer les actinides mineurs dédiés à la transmutation des produits de fission. Les produits de fission, dont les durées de vie tournent aux environs de mille ans seront stockés dans des sites spéciaux. La transmutation a pour but de recycler les actinides mineurs qui concentrent la plus grande partie de la radiotoxicité des combustibles usés des réacteurs électronucléaires en les transformant en des éléments non radioactifs ou à vie plus courte. La transmutation industrielle des actinides mineurs n'est pas prévue avant 2040. Actuellement, les actinides mineurs et les produits de fission sont vitrifiés ensemble et entreposés sur leur site de production à la Hague en Normandie.

Les principaux acteurs des études menées sur l'axe 1 sont le CEA, l'EDF, le CNRS, L'Université, et AREVA. Ils participent tous à un Groupement de Recherche national nommé GdR GEDEPEON (GEstion des DEchets pour la Production d'Energie par des Options Nouvelles). Le GdR GEDEPEON a pour mission de mener et coordonner les efforts de recherche concernant les solutions au devenir des déchets nucléaires, solutions basées sur la séparation et la transmutation des isotopes à vie longue. Il s'agit notamment

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

d'explorer les potentialités des réacteurs sous-critiques assistés par accélérateur, ainsi que celles des cycles fondés sur l'utilisation du Thorium et susceptibles d'avoir un impact radiologique plus faible que celui de cycles basés sur l'Uranium.

Le GdR GEDEPEON a sélectionné huit opérations scientifiques dont quatre restent spécifiques aux réacteurs sous-critiques assistés par accélérateur, une opération concernant les données nucléaires pour la transmutation des corps à vie longue et trois opérations concernant :

- Les études conceptuelles de systèmes innovants.
- Les études de scénarios.
- Les études génériques de cycles dits propres (Thorium ou autre).

On notera donc que la problématique de recherche n'est plus exclusivement orientée vers la transmutation des déchets, mais celle-ci s'ouvre sur la définition d'un nucléaire du futur pour une production d'énergie durable, économe des ressources naturelles et minimisant la radiotoxicité des rejets et des combustibles présents en réacteur ou dans le cycle du combustible.

Le Programme PACEN (Programme sur l'Aval du Cycle et l'Energie Nucléaire), dont le GdR GEDEPEON fait partie, organise et pilote la réponse du CNRS aux exigences législatives liées à la gestion durable des matières et déchets radioactifs ainsi qu'au nucléaire du futur en l'associant au dispositif national de recherche coordonné par l'ANDRA et le CEA.

- axe 2 : Le stockage en formation géologique profonde

Le stockage géologique en couches profondes est considéré comme la solution de référence pour la gestion des déchets ultimes par plusieurs pays dont la France, les Etats-Unis, la Suède, la Finlande, l'Allemagne. En France, cet axe de recherche est confié à l'ANDRA qui mène des études de faisabilité sur l'argile en France à Bure, en Belgique dans les laboratoires souterrains de Mol et en Suisse dans le Mont Terri. Les résultats obtenus montrent que l'argile de Bure présente des capacités de confinement favorables et les études d'ingénierie permettent de concevoir un centre de stockage réversible, où la reprise des colis de déchets est possible sur une longue période. Les études sont toujours en cours et la mise en service d'un stockage géologique est prévue entre 2020 et 2025.

1.2. LA GESTION DES DÉCHETS NUCLÉAIRES

- axe 3 : Le conditionnement et l'entreposage de longue durée

Dans cet axe, d'importants progrès ont été réalisés dans le cadre de la loi de 1991. Le conditionnement est un ensemble de procédés techniques allant du traitement des déchets radioactifs jusqu'à l'élaboration du colis. Le traitement des déchets radioactifs peut se faire par évaporation s'il s'agit de déchets liquides, incinération, compactage ou la fusion selon la nature du déchet. Après le traitement, le conditionnement consiste à confiner la radioactivité en insérant les déchets dans une matrice en verre, béton, bitume ou polymère. Enfin, l'ensemble est placé dans un conteneur adapté, avec des propriétés spécifiques de rétention des éléments radioactifs. Les conteneurs sont en béton, en acier ordinaire ou inoxydable. Les déchets ainsi conditionnés sont appelés colis. Le conditionnement permet de réduire considérablement le volume des déchets, par exemple le volume des déchets de haute ou moyenne activité a été divisé par dix depuis 1992, par la vitrification des effluents, le compactage des déchets technologiques et des structures métalliques des combustibles. L'objectif du conditionnement étant d'assurer un confinement durable pour toutes les phases de gestion des colis. La résistance des verres à la dissolution pendant plusieurs centaines de milliers d'années est d'une grande importance pour l'entreposage de longue durée et même pour le stockage réversible en formation géologique profonde.

Les déchets de haute et moyenne activité à vie longue sont actuellement stockés dans des entrepôts prévus pour être opérationnels pendant une durée maximale de 50 ans. Au regard des nouveaux objectifs d'entreposage de longue durée de l'ordre de plusieurs siècles (au moins trois siècles), l'extension de la durée de vie des entrepôts actuels et la construction de nouvelles installations d'entreposage s'imposent. L'entreposage de longue durée restera une technique transitoire et réversible avec à terme la récupération des déchets pour de nouveaux traitements (recyclage/transmutation ou stockage géologique en couches profondes). Un entreposage de longue durée pourrait être mis en service opérationnel en France d'ici à 2015.

Le schéma 1.1 montre l'ordre chronologique prévu pour la mise en service des différents procédés définis par la loi de 2006 qui sont par nature complémentaires.

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

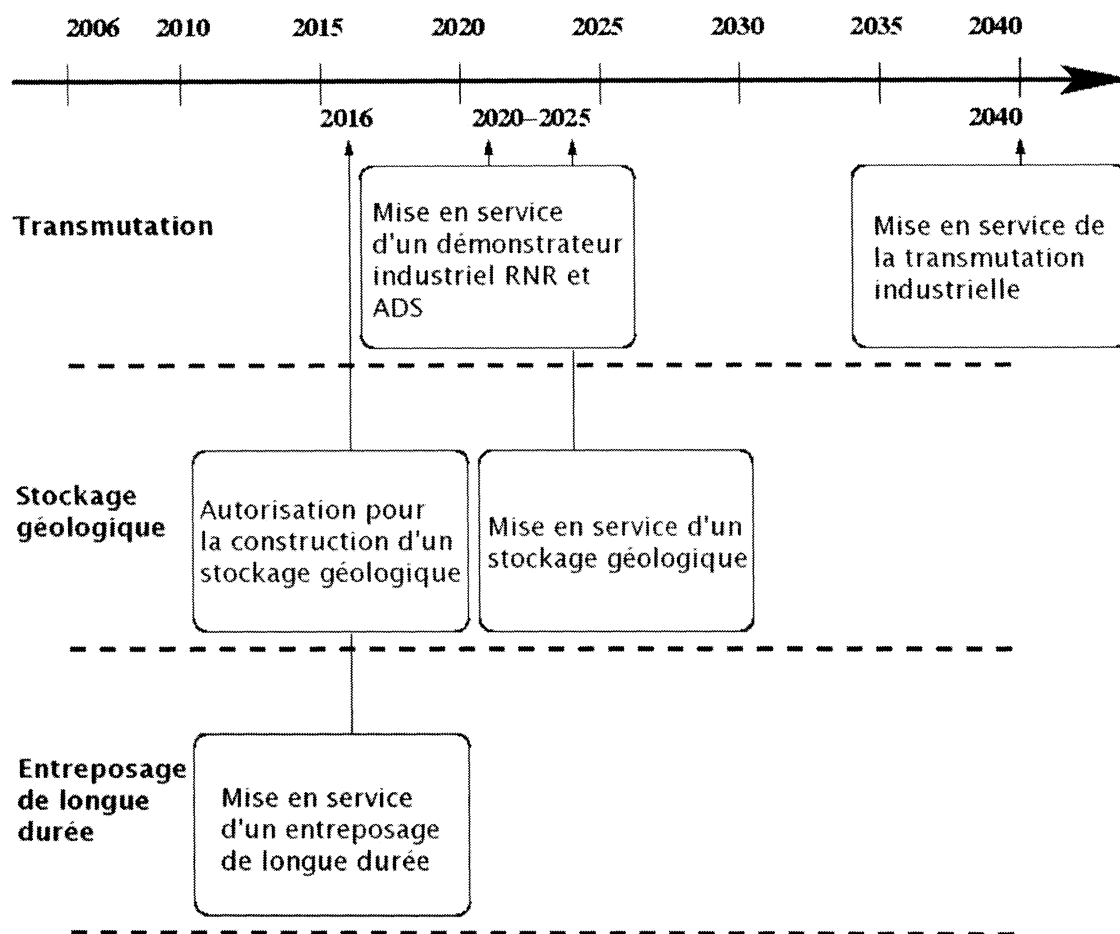


FIG. 1.1 – Les grandes dates et les objectifs de la gestion des déchets radioactifs définis par la loi de 2006.

1.2. LA GESTION DES DÉCHETS NUCLÉAIRES

1.2.2 En Europe

Les différentes approches en terme de gestion des déchets en Europe sont basées sur le retraitement ou non des combustibles usés. Les combustibles usés sont composés essentiellement de produits de fission, d'actinides majeurs et mineurs. Le tableau 1.3 donnent les principaux radionucléides présents dans un combustible usé produit à la fin d'un cycle électronucléaire.

Produits de fission	Radionucléide	^{93}Zr	^{99}Tc	^{107}Pd	^{126}Sn	^{129}I	^{135}Cs
	Période (année)	$1,5 \cdot 10^6$	$2,1 \cdot 10^5$	$6,5 \cdot 10^6$	10^5	$1,6 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$
Actinides majeurs	Radionucléide	^{235}U	^{236}U	^{238}U	^{238}Pu	^{239}Pu	^{242}Pu
	Période (année)	$7,1 \cdot 10^8$	$2,3 \cdot 10^7$	$4,5 \cdot 10^9$	87,7	$2,4 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^5$
Actinides mineurs	Radionucléide	^{237}Np	^{241}Am	^{243}Am	^{243}Cm	^{244}Cm	^{245}Cm
	Période (année)	$2,1 \cdot 10^6$	432,2	7380	28,5	18,1	8500

TAB. 1.3 – Liste des principaux produits de fission, d'actinides majeurs et mineurs à vie longue avec leur période de décroissance.

Le tableau 1.4 présente l'inventaire des principaux produits de fission et actinides mineurs présents dans un combustible usé à l'oxyde d'uranium (UOX) déchargé à 33 GW.j/t.

Des pays comme la France et l'Allemagne ont fait le choix du cycle dit fermé où le combustible usé est retraité : les actinides majeurs tels que le plutonium et l'uranium sont séparés du combustible irradié. Une partie du plutonium est alors recyclée dans du MOX³ et peut être ensuite utilisée comme combustible dans un cœur de réacteur. L'uranium une fois recyclé est stocké pour une éventuelle revalorisation.

³Le combustible MOX, abréviation de Mixed OXide, est un combustible nucléaire fabriqué à partir du plutonium et de l'uranium appauvri. Il contient les oxydes d'uranium (UO_2) et de plutonium (PuO_2).

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

Nature	Elément	Isotope	Masse (g/t)	Teneur isotopique
Actinides mineurs	Np	237	430	100 %
		241	220	67 %
	Am	243	100	31 %
		243	0,3	1 %
	Cm	244	24	94 %
		245	1	5 %
Produits de fission	Se	79	4,7	9 %
	Zr	93	710	20 %
	Tc	99	810	100 %
	Pd	107	200	16 %
	Sn	126	20	40 %
	I	129	170	81 %
	Cs	135	360	10 %

TAB. 1.4 – Inventaire des principaux éléments à vie longue présents dans un combustible usé à l’oxyde d’uranium (UOX) déchargé à 33 GW.j/t.

Les pays ayant fait le choix du cycle ouvert prévoient de stocker directement leur combustible usé sans retraitement. Par exemple, la Suède a choisi l’entreposage et le stockage souterrain dans le socle cristallin, aussi bien pour les déchets radioactifs que pour les combustibles usés. Dans ce cas, tout le combustible irradié, y compris le plutonium et l’uranium, est considéré comme déchet ultime. D’un autre côté, les pays à cycle fermé conditionnent les produits de fission et les actinides mineurs issus de l’irradiation des combustibles UOX⁴ usés sous forme de verre réduisant en même temps le volume, la charge radiotoxique et thermique des déchets par rapport à ceux du cycle ouvert. Mieux encore, des recherches sont en cours pour améliorer la séparation des actinides mineurs et les produits de fission. Cette séparation poussée est intéressante dans l’optique du développement de réacteurs de quatrième génération et de réacteurs rapides sous-critiques assistés par accélérateurs ou ADS (Accelerator Driven Sub-critical system) capables de les transmuter.

En Europe, les études sur la transmutation des actinides mineurs dans des ADS se font principalement dans le cadre du projet intégré EUROTRANS du 6^e PCRD. Ce projet cherche à démontrer la faisabilité technique de la transmutation des déchets radioactifs à

⁴Le combustible UOX, abréviation d’Uranium Oxyde, est un combustible nucléaire constitué de dioxyde d’uranium (UO₂)

haute activité dans un ADS, de réaliser le design d'un démonstrateur expérimental pour la transmutation et d'étudier le concept d'une installation industrielle européenne dédiée à la transmutation.

1.3 Le concept d'ADS

1.3.1 Historique

Depuis les années 30, les études menées sur les accélérateurs ont montré que le bombardement d'une cible d'uranium par des protons ou des deutons de très grandes énergies produisait un nombre important de neutrons. Ces neutrons étaient à leur tour utilisés pour produire des éléments fissiles tels que le plutonium par des réactions nucléaires. Ainsi le terme "spallation" fut utilisé pour la première fois en 1937 par Seaborg dans ses travaux de thèse [7] pour caractériser ces réactions nucléaires entre particules légères et cibles de noyaux lourds.

Cependant, la première idée d'un système de couplage accélérateur et milieu sous-critique fut proposée plus tard par E. O. Lawrence dans les années 50 à Berkeley. Ces études faisaient suite à la mise au point du générateur électrostatique de Van de Graaff [8], des accélérateurs linéaires [9] et du cyclotron de Lawrence [10]. Vers les années 90, ce concept refit surface mais avec des objectifs différents. Ainsi, le groupe de recherche dirigé par C. Bowman [11] proposa en 1991 un concept détaillé d'un réacteur sous-critique piloté par accélérateur. Ce concept, utilisant le cycle thorium-uranium, cherchait à réaliser la transmutation des transuraniens, en particulier celle du plutonium, et des produits de fission à vie longue en utilisant des neutrons thermiques. Plus récemment, Carlo Rubbia [12] présentait en 1993 son concept d'amplificateur d'énergie dédié à la production d'énergie et à la transmutation. Il s'agissait d'un système sous-critique basé, lui aussi, sur le cycle thorium-uranium refroidi au plomb liquide. Ce concept utilisait un cyclotron comme accélérateur de protons à des intensités de 10 à 20 mA et à de très grandes énergies de l'ordre du GeV. La source de neutrons externes était alors obtenue par réaction de spallation sur du plomb par les faisceaux de protons énergétiques. Cet amplificateur d'énergie propulsa au devant de la scène l'intérêt pour les réacteurs sous-critiques assistés par accélérateur

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

et dédiés à la transmutation.

1.3.2 Principe de base

Un système hybride est constitué de trois éléments fondamentaux : l'accélérateur, la cible de spallation et le cœur sous-critique c'est à dire incapable à lui seul d'entretenir une réaction en chaîne de fissions. La figure 1.2 montre une vue schématique d'un ADS.

L'accélérateur délivre un faisceau de protons de haute énergie qui bombarde la cible de spallation constituée de noyaux massifs. La réaction de spallation, expliquée en détail dans le prochain chapitre, permet de produire un grand nombre de neutrons par particule source incidente. Le flux intense de neutrons ainsi générés alimente le cœur du réacteur où sont transmutés les déchets essentiellement des actinides mineurs. La transmutation, objectif principal des systèmes hybrides, consiste à transformer les isotopes radioactifs à vie longue, ici les actinides mineurs, en des isotopes stables ou à durée de vie courte.

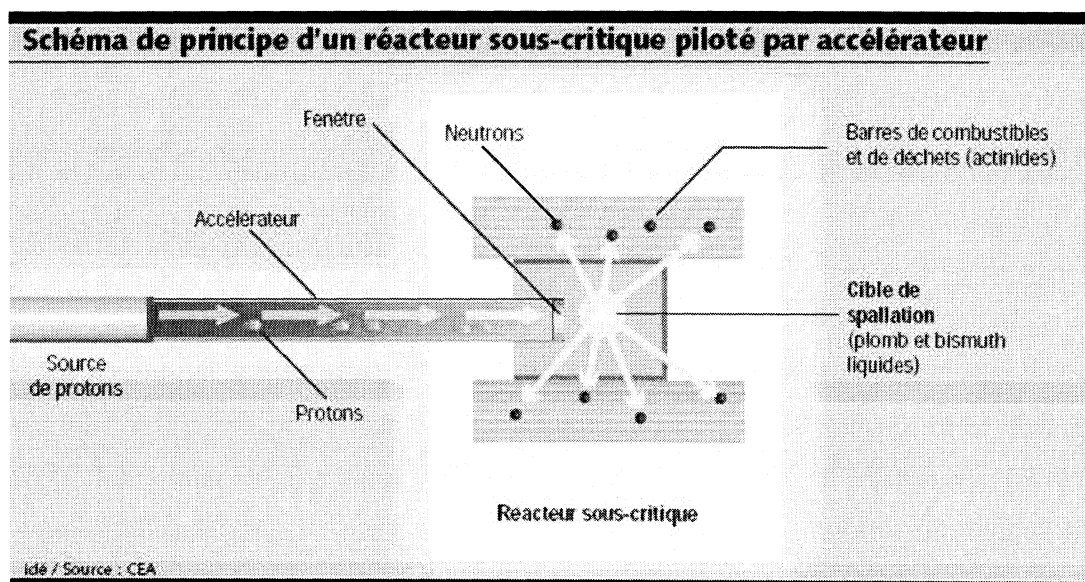


FIG. 1.2 – Représentation schématique d'un réacteur sous-critique piloté par accélérateur.

1.3.3 Intérêt de la transmutation des actinides mineurs dans les ADS

Le principal intérêt des ADS réside dans leur sûreté liée à leur état de criticité maintenu par un apport externe de neutrons. En effet, les réacteurs critiques voient leurs coefficients cinétiques et de sûreté (fraction de neutrons retardés, effet Doppler et coefficient de vide) fortement dégradés en présence d'actinides mineurs [13]. En conséquence, les teneurs maximales admissibles en actinides mineurs dans un réacteur critique est relativement faible, de l'ordre de quelques %. A titre d'exemple, pour un réacteur à neutrons rapides avec caloporteur sodium, cette teneur maximale est de 2,5 % pour les cœurs de grandes tailles et 5 % pour ceux de petites tailles [13]. Les ADS contournent ces difficultés en gardant une souplesse de pilotage grâce à la source externe de neutrons. Ainsi, il est possible en utilisant des combustibles dédiés d'obtenir des teneurs en actinides mineurs atteignant 50 % [13]. Cependant, il faut mettre en balance l'intérêt de la transmutation des actinides mineurs en ADS avec les défis techniques que représente le couplage de ses trois éléments constitutifs fondamentaux (accélérateur, cible de spallation et cœur sous-critique).

1.3.4 Programme européen dédié

Plusieurs études de faisabilité sont en cours dans le cadre européen avec le programme intégré EUROTRANS du 6^e PCRD. Le principal objectif de ce projet européen est de démontrer la faisabilité technique de la transmutation dans un réacteur sous-critique assisté par accélérateur. Dans ce but, chacun des composants de l'ADS à savoir l'accélérateur de protons, la cible de spallation et le cœur sous-critique doivent être validés individuellement ainsi que leur couplage. Ce projet est structuré en cinq domaines (DM) :

- **DM1 DESIGN** est consacré à la conception avancée d'un démonstrateur d'ADS pour la transmutation, le XT-ADS (eXperimental demonstration of the technical feasibility of Transmutation in an Accelerator Driven sub-critical System), et à la conception préliminaire d'une installation industrielle dédiée à la transmutation des déchets radioactifs, le EFIT (European Facility for Industrial Transmutation). Les principales caractéristiques des deux concepts présentés ci-dessus sont indiquées dans le tableau 1.5.

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

Caractéristiques	XT-ADS	EFIT
Puissance du cœur	80 MW _{th}	qq 100 MW _{th}
Caloporteur	Pb-Bi	Pb, He*
Interface accélérateur/cible	Sans fenêtre, avec fenêtre*	Sans fenêtre
Design	Avancé	Conceptuel
Intensité faisceau	3 mA	10 mA
Energie faisceau	600 MeV	800 MeV

TAB. 1.5 – Principales caractéristiques des concepts étudiés dans le domaine 1 du projet EUROTRANS du 6^e PCRD (* : Option alternative envisagée).

Pour atteindre les intensités et les énergies faisceau attendues, les accélérateurs linéaires ont été retenus préférentiellement aux cyclotrons. Les composants clés de ce type d'accélérateurs (injecteurs et cavités) sont ainsi développés, construits et testés dans le cadre du domaine 1. Enfin, des études concernant la sûreté en fonctionnement et en présence d'actinides mineurs sont effectuées dans le but d'être appliquées au futur XT-ADS.

- **DM2 ECATS (Experimental programme on the Coupling of an Accelerator, a Target and a Sub-critical blanket)** regroupe un ensemble de travaux expérimentaux sur le couplage d'un accélérateur, une cible de spallation et un cœur de réacteur sous-critique. Ce domaine doit apporter des éléments de réponse indispensables dans la conception et le développement du démonstrateur et de l'installation industrielle.

- **DM3 AFTRA (Advanced Fuels for TRAnsmutation systems)** est consacré à l'étude, le développement et la conception du combustible nucléaire pour l'installation industrielle dans des configurations d'opérations normales ou accidentelles dans le respect du concept du démonstrateur.

- **DM4 DEMETRA (DEvelopment and assessment of structural materials and heavy liquid METal technologies for TRAnsmutation systems)** a pour objectif l'étude et l'évaluation des matériaux de structure (réacteur et cible) soumis à de nombreuses contraintes. Nous pouvons citer leur fragilisation et leur corrosion en présence de métaux liquides ainsi que l'effet des contraintes mécaniques et de l'irradiation (déplacement des atomes de la structure cristalline et gonflement).

- **DM5 NUDATRA (NUclear DAta for TRAnsmutation)** cherche à compléter les bases de données nucléaires concernant le combustible, la cible de spallation, le caloporteur, le cœur du réacteur et les matériaux de structure.

1.4 Cadre et problématique de la thèse

Le travail que nous présentons ici a été réalisé au sein du groupe PARI (Physique nucléaire, Applications et Recherche Interdisciplinaire) du laboratoire de physique subatomique et des technologies associées de Nantes (SUBATECH).

Ce groupe intervient dans le projet EUROTRANS à travers le premier domaine (DM1) sur la partie cible de spallation. Il mène des travaux de conception et de physique nucléaire en collaboration avec le bureau d'études mécaniques de SUBATECH depuis 1999, date à laquelle le projet MEGAPIE (MEGAwatt Pilot Experiment) [14] a été initié.

Le projet international MEGAPIE⁵ a pour principal objectif de concevoir, réaliser et opérer une cible liquide de spallation au Pb-Bi liquide pour une puissance de faisceau de l'ordre de 1 MW (1,75 mA de protons à 575 MeV) dans l'installation SING du Paul Scherrer Institut (PSI, Suisse). Il regroupe aujourd'hui des chercheurs du PSI, du FZK (Allemagne), du CEA et du CNRS (France), de l'ENEA (Italie), du SCK-CEN (Belgique), du DOE (Etats-Unis), JAERI (Japon) et KAERI (Corée du Sud).

Ce projet représente un programme clef pour la validation d'une cible de spallation liquide avec fenêtre lorsqu'elle est couplée à un accélérateur de protons de haute énergie.

⁵Le projet international MEGAPIE est présenté de façon plus étoffée dans l'Annexe A

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

Il s'agit du premier couplage entre une cible de spallation et un accélérateur de forte puissance. Plusieurs aspects de sûreté et de radioprotection doivent être pris en considération avant et pendant la phase d'irradiation d'une telle cible de spallation.

Dans ce travail, nous nous intéressons aux aspects de sûreté liés à la production d'éléments gazeux et volatiles au dessus de la surface libre de la cible. En effet, cette production présente des risques sur le bon fonctionnement des ADS pour plusieurs raisons :

- La production d'éléments légers tels que l'hydrogène et l'hélium peut entraîner des dommages aux matériaux de structure par gonflement ou par déplacements d'atomes.
- La production de gaz ou d'éléments volatiles au dessus de la surface libre induit une augmentation de la pression résiduelle. La conception d'un système de confinement et d'extraction efficace des gaz et éléments volatiles produits est nécessaire [15].
- Certains radioisotopes sont importants sur le plan de la radioprotection car susceptibles d'être produits et relâchés en cas de fonctionnement normal ou en cas d'accident.

Le tableau 1.6 présente quelques uns de ces isotopes avec leur durée de vie, leur coefficient de dose efficace engagée par ingestion⁶, leur activité pour un μg de leur masse et leur radiotoxicité⁷ induite. Les données sont tirées de la référence [16].

Isotope	Période	C_i (Sv/Bq)	Activité (Bq/ μg)	Radiotoxicité (Sv/ μg)
^3H	12,35 a	$4,20 \cdot 10^{-11}$	$3,57 \cdot 10^8$	$1,50 \cdot 10^{-2}$
^{131}I	8,04 j	$2,20 \cdot 10^{-8}$	$4,59 \cdot 10^9$	$1,10 \cdot 10^2$
^{195}Hg	9,9 h	$9,70 \cdot 10^{-11}$	$6,00 \cdot 10^{10}$	5,82
^{203}Hg	46,6 j	$1,9 \cdot 10^{-9}$	$5,11 \cdot 10^8$	$9,70 \cdot 10^{-1}$
^{206}Po	8,8 j	$1,3 \cdot 10^{-7}$	$2,66 \cdot 10^9$	$3,46 \cdot 10^2$
^{208}Po	2,898 a	$7,7 \cdot 10^{-7}$	$2,20 \cdot 10^7$	$1,69 \cdot 10^1$
^{210}Po	138,38 j	$2,40 \cdot 10^{-7}$	$1,66 \cdot 10^8$	$3,99 \cdot 10^1$
^{211}At	7,214 h	$1,10 \cdot 10^{-8}$	$7,61 \cdot 10^{10}$	$8,38 \cdot 10^2$

TAB. 1.6 – Liste de quelques isotopes produits par spallation dans les cibles d'ADS avec leur période (a : année, j : jour, h : heure), leur coefficient de dose efficace engagée par ingestion C_i en Sv/Bq, leur activité en Bq/ μg et leur radiotoxicité en Sv/ μg .

⁶Le coefficient de dose efficace engagée par ingestion est la mesure des dommages faits aux tissus vivants par les rayonnements associés à la radioactivité de l'isotope.

⁷La radiotoxicité d'un radioisotope est par définition la toxicité induite sur des tissus vivants par ses radiations émises lors d'une exposition interne (inhalation, ingestion) ou d'une exposition externe. Elle est déterminée par le produit de l'activité en Bq et du coefficient de la dose efficace engagée en Sv/Bq.

Le tableau 1.6 nous montre qu'il est nécessaire de quantifier l'ensemble des radioisotopes, en particulier les isotopes gazeux ou volatiles, afin de mettre en œuvre les systèmes de sécurité nécessaires qui garantissent une radiotoxicité inférieure à la dose limite légale pour toutes les catégories de personne (personnel classé ou public). Les isotopes à durée de vie courte, influant sur le fonctionnement et les interventions sur site, doivent être gérés efficacement par des systèmes de confinement et d'isolation. Les isotopes à très longue période doivent être pris en compte pour le démantèlement et le stockage.

Le travail de thèse présenté ici porte sur l'expérience IS419 réalisée en prélude à l'irradiation de la cible de MEGAPIE. Elle cherche à fournir des données expérimentales intéressantes sur la production des éléments volatiles, gazeux ou radiotoxiques pour MEGAPIE et au-delà pour toutes les cibles de spallation en particulier pour celles des ADS. Elle s'est déroulée en Suisse dans l'installation ISOLDE au CERN.

Parallèlement, les mesures permettront de tester les modèles de spallation utilisés dans le code de simulation Monte Carlo MCNPX (Monte Carlo N-Particle transport eXtended) [17].

1.5 Etat de l'art

- Mesures de sections efficaces de production de résidus de spallation

Depuis quelques années, plusieurs campagnes de mesures sur les sections efficaces de production de résidus de spallation à partir de cibles minces et solides ont été initiées ou réalisées auprès de l'accélérateur d'ions lourds de GSI-Darmstadt en Allemagne, auprès du synchrotron SATURNE à Saclay en France ou dans les installations ISOLDE au CERN et SINQ au PSI en Suisse. Cet intérêt accru pour la réaction de spallation s'explique d'une part par le développement ou la réalisation de sources de neutrons de spallation très intenses en Europe (ESS [18]), SINQ [19]), aux Etats-Unis (SNS [20]) ou au Japon (NSP [21]) et d'autre part pour une conception sûre des ADS. Ces travaux expérimentaux ont permis d'obtenir des bases de données nucléaires de qualité indispensables pour le développement des ADS, pour une compréhension détaillée du mécanisme de la réaction

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

de spallation et pour la validation des modèles physiques implémentés dans les codes de simulations Monte Carlo MCNPX largement utilisés dans la conception des ADS.

Parmi ces campagnes de mesures, nous pouvons citer par exemple :

- Les expériences inscrites dans un projet initié au GSI-Darmstadt qui vise à déterminer les sections efficaces de production des résidus de spallation jusqu'en dessous de 0,1 mb à partir des réactions de spallation entre des protons de 0,8 GeV ou 1 GeV et des deutons de 2 GeV sur des noyaux massifs d'or, de plomb et d'uranium en utilisant la technique de la cinématique inverse [22, 23, 24, 25].
- Les mesures de taux de production de résidus de spallation par bombardement d'une cible mince de ^{208}Pb avec des protons accélérés à 1 GeV [26]. Les sections efficaces de production de plus de 114 isotopes ont été mesurées par la spectrométrie gamma.
- Les sections efficaces de production de neutrons, d'hydrogène et d'hélium induites par des faisceaux de protons accélérés à 1,2 et 1,8 GeV sur des cibles minces en fer, nickel, argent, tantale, tungstène, or, plomb et uranium ont été mesurées par M. Enke et collaborateurs au centre de recherche nucléaire de Jülich [27]. Les neutrons sont détectés par un scintillateur rempli de Gadolinium (0,3 % par masse) et toutes les particules chargées mesurées avec un ensemble de 162 détecteurs en silicium arrangés sous forme de sphère de diamètre de 20 cm.
- Dans le cadre du projet HINDAS (High and Intermediate Energy Nuclear Data for Accelerator-Driven Systems) et de GEDEPEON, S. Leray et collaborateurs ont mesuré les spectres de neutrons obtenus à l'accélérateur SATURNE de Saclay produits par des protons de 1,2 GeV sur diverses cibles (Al, Fe, Zr, W, Pb et Th) et par des protons de 0,8 et 1,6 GeV sur des cibles de fer et de plomb [28]. Les perspectives de cette étude sur les cibles de spallation se situent dans le sous-projet NUDATRA du projet IP-EUROTRANS. Dans ce cadre, plusieurs expériences sont prévues ou en cours pour la plupart au GSI-Darmstadt pour les hautes énergies et à Uppsala pour les énergies intermédiaires. Ces expériences cherchent à répondre aux besoins de données nucléaires sur la réaction de spallation (mesures des sections efficaces de production de particules chargées légères, de fragments de masse intermédiaire, de produits de fission, de neutrons, ...).

- Plus récemment, une série d'irradiations effectuée dans les installations de l'accélérateur SATURNE de Saclay, d'Uppsala et du PSI a fourni des données nucléaires très intéressantes sur la production des gaz rares (He, Ne, Ar, Kr et Xe) avec des cibles minces en plomb et pour des faisceaux de protons d'énergies comprises entre 70 MeV et 2,6 GeV [29]. La principale motivation de ces mesures est relative à la conception et la sûreté des ADS.

Parallèlement aux activités expérimentales, d'intenses travaux théoriques sont menés sur les modèles de simulations. Des progrès importants tant sur le plan expérimental que théorique ont pu être obtenus sur la production des composites et des fragments de masse intermédiaire, sur l'amélioration des modèles physiques décrivant les phases d'évaporation et de fission de la réaction de spallation.

Au delà de répondre aux questions liées à la production de gaz et d'éléments volatiles dans une cible d'ADS, l'expérience IS419 s'inscrit dans une nouvelle approche expérimentale de mesures de données nucléaires intégrales à partir de cibles épaisses et liquides. Cette approche, plus réaliste pour caractériser les cibles d'ADS, présente plusieurs défis tant sur la procédure de mesures que sur l'analyse et l'extraction des données expérimentales.

Maintenant, nous allons présenter l'état de l'art sur les études relatives au relâchement des éléments volatiles et gazeux à travers des cibles épaisses et liquides.

- Etudes sur le relâchement des volatiles

Plusieurs études ont été réalisées afin de cerner le comportement des éléments volatiles ou gazeux produits dans les cibles épaisses et liquides comme les cibles au Pb ou Pb-Bi liquides. Il est nécessaire de savoir pour une conception sûre des installations d'irradiation ou des ADS si les éléments gazeux ou volatiles restent dans la cible ou diffusent partiellement ou totalement hors de la cible dans des conditions normales d'opération surtout pour les éléments radiotoxiques comme le polonium.

C'est dans ce cadre que J. Neuhausen et collaborateurs ont effectué plusieurs mesures de relâchement en fonction de la température du polonium [30], du mercure et du thallium [31] ainsi que de l'iode [32] dans du plomb-bismuth liquide. Les mesures sont réalisées en plaçant le Pb-Bi liquide dans des environnements gazeux (Ar/H₂, Ar/H₂O) représentatives

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

des cibles irradiées par des faisceaux de protons intenses et énergétiques.

Les résultats des mesures ont montré un faible relâchement du polonium dans les conditions de températures prévues pour la plupart des cibles. Un relâchement mesurable du polonium est obtenu à partir de 700 °C. Le mercure contrairement au polonium est très volatile, à 352 °C plus de 80 % du mercure placé dans la cible est relâché tandis que le thallium présente un relâchement presque nul aux températures de mesures comme le montre la figure 1.3 [31].

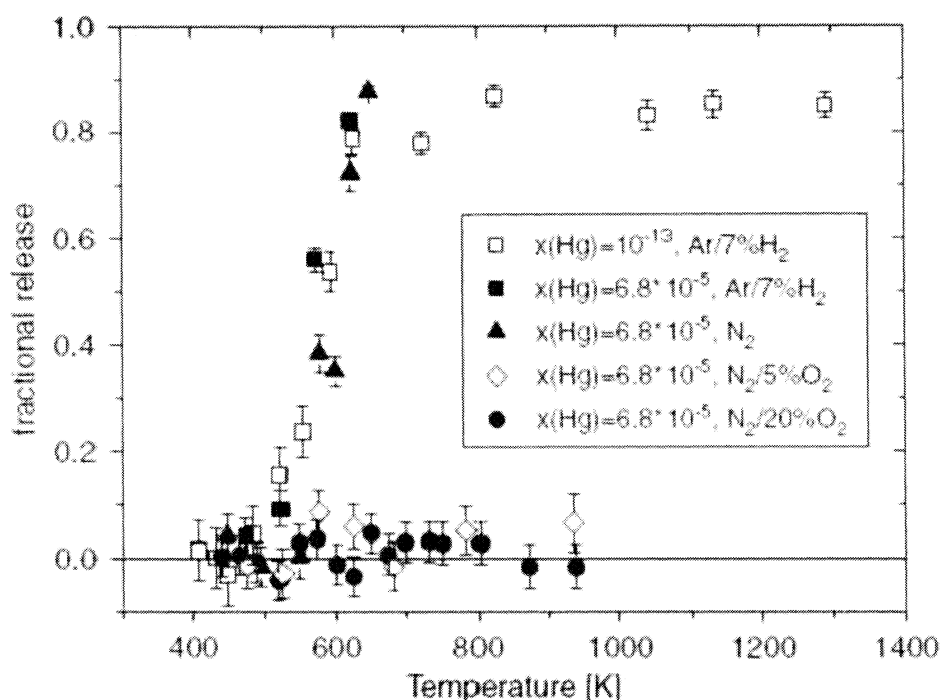


FIG. 1.3 – Taux de relâchement du Hg et du Tl à partir de Pb-Bi eutectique sous différents environnements gazeux et différentes concentrations de Hg.

L'iode est aussi comme l'ensemble des halogènes peu volatile. Dans les mesures effectuées par J. Neuhausen et collaborateurs, l'iode commence à être relâché à partir de 600 °C. Il faut noter que le relâchement des éléments volatiles ou gazeux à partir des cibles épaisses et liquides dépend de plusieurs facteurs physico-chimiques tels que la diffusion, l'effusion, la désorption des surfaces libres des cibles, la formation de couches d'oxyde au dessus de la surface libre et les différentes réactions chimiques possibles entre ces éléments volatiles et gazeux d'une part et avec les éléments de la cible d'autre part. Tous

ces facteurs ont pour conséquence la réduction de la volatilité des éléments.

L'expérience IS419 qui constitue le cadre de la thèse réunit deux aspects fondamentaux : la production des résidus de spallation volatiles et gazeux ainsi que leur relâchement à partir de cibles épaisses et liquides au Pb et Pb-Bi. En ce sens, l'expérience IS419 présente une nouvelle approche de mesures des taux de production de résidus de spallation et répond aux questions relatives à l'accumulation des gaz au dessus des surfaces libres des cibles des ADS. Autre aspect innovant, mis à part la mesure intégrale de taux de production à partir de cible épaisse et liquide, avec cette expérience, le relâchement est étudié avec des éléments produits suite à l'irradiation de la cible contrairement aux précédentes mesures de relâchement effectuées avec des échantillons dopés avec des produits volatiles.

CHAPITRE 1. CONTEXTE ÉNERGÉTIQUE ET NUCLÉAIRE

Chapitre 2

Expérience IS419 : mécanismes physiques et outils de simulations

Nous avons montré dans le chapitre précédent que des mesures précises de production de gaz et d'éléments volatiles dans une cible d'ADS doivent être réalisées. Les deux phénomènes physiques mis en jeu sont la réaction de spallation et le processus de relâchement gazeux. L'expérience IS419 dont le principe schématique est présenté sur la figure 2.1 a permis d'étudier ces mécanismes. La réalisation d'une expérience dédiée à ces deux processus permet de s'affranchir des autres phénomènes présents lors du fonctionnement d'un ADS, et donc d'extraire plus aisément leurs caractéristiques.

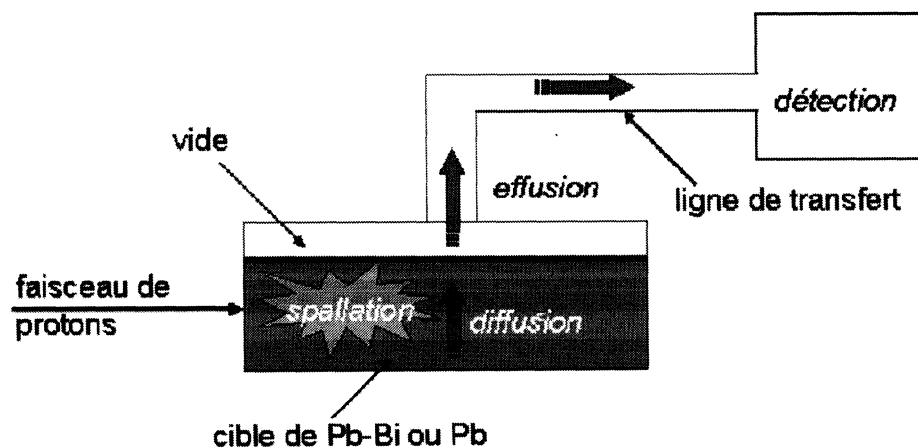


FIG. 2.1 – Principe schématique de l'expérience IS419.

Cette expérience consiste à irradier une cible de Pb-Bi ou Pb liquide par un faisceau de protons de haute énergie. L'interaction des protons avec les noyaux de la cible induit par spallation la production de la quasi-totalité des éléments du tableau périodique de numéro atomique inférieur ou égal à celui de la cible. Parmi les isotopes ainsi créés, les éléments gazeux et volatiles peuvent diffuser jusqu'à la surface libre de la cible liquide puis effuser à travers la ligne de transfert pour être détectés. Les phénomènes de diffusion et d'effusion constituent le mécanisme de relâchement. Les deux sections suivantes décrivent précisément les processus de spallation et de relâchement. La dernière section aborde le code de simulation numérique Monte Carlo MCNPX, les modèles physiques ainsi que le code d'évolution qui ont servi à simuler la production des résidus de spallation.

2.1 La réaction de spallation

La spallation (figure 2.2) est une réaction nucléaire mettant en jeu un noyau cible lourd et un hadron ou un ion léger accéléré à des énergies comprises entre quelques centaines de MeV et quelques GeV. Le mécanisme élémentaire des réactions de spallation peut être

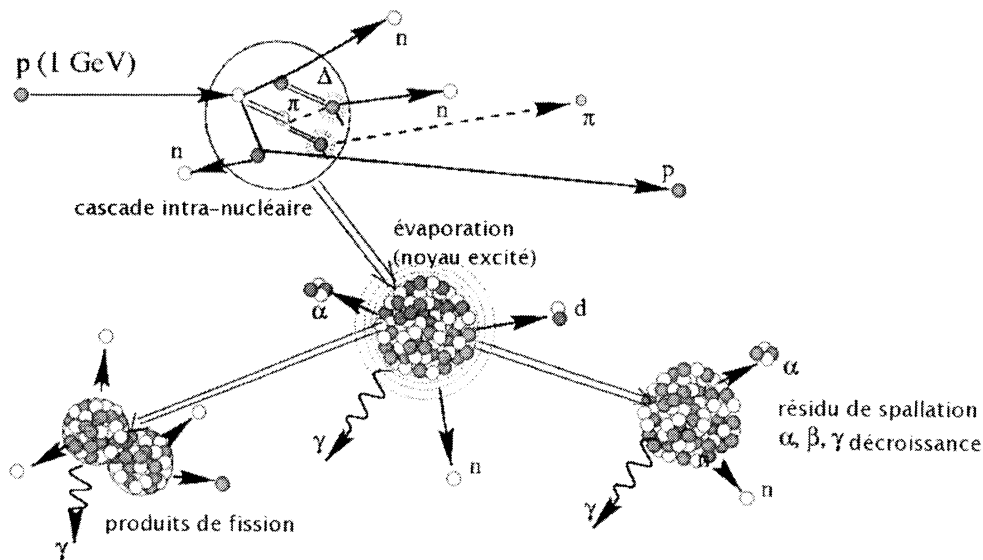


FIG. 2.2 – Représentation schématique du mécanisme de la réaction de spallation.

décrit en deux étapes caractérisées par des temps différents : la cascade intranucléaire,

2.1. LA RÉACTION DE SPALLATION

étape rapide de l'ordre de 10^{-22} à 10^{-23} seconde, et la désexcitation, étape plus lente de durée comprise entre 10^{-18} à 10^{-19} seconde.

Parfois on introduit une étape intermédiaire dite de "pré-équilibre" pour décrire l'évolution vers la thermalisation du noyau chaud. Cette étape supplémentaire est une transition qui assure la continuité entre la première et la seconde étape.

De part son mécanisme, la spallation est une réaction très complexe. Cette complexité s'illustre clairement par la distribution des isotopes produits lors d'une réaction de spallation, distribution qui peut aller des éléments les plus légers tels que l'hydrogène jusqu'aux plus lourds de masse voisine à celle de la cible. En guise d'exemple, nous présentons sur la figure 2.3 les sections efficaces isotopiques expérimentales des noyaux résiduels produits par la réaction de spallation ^{208}Pb (1 A GeV) + H [25].

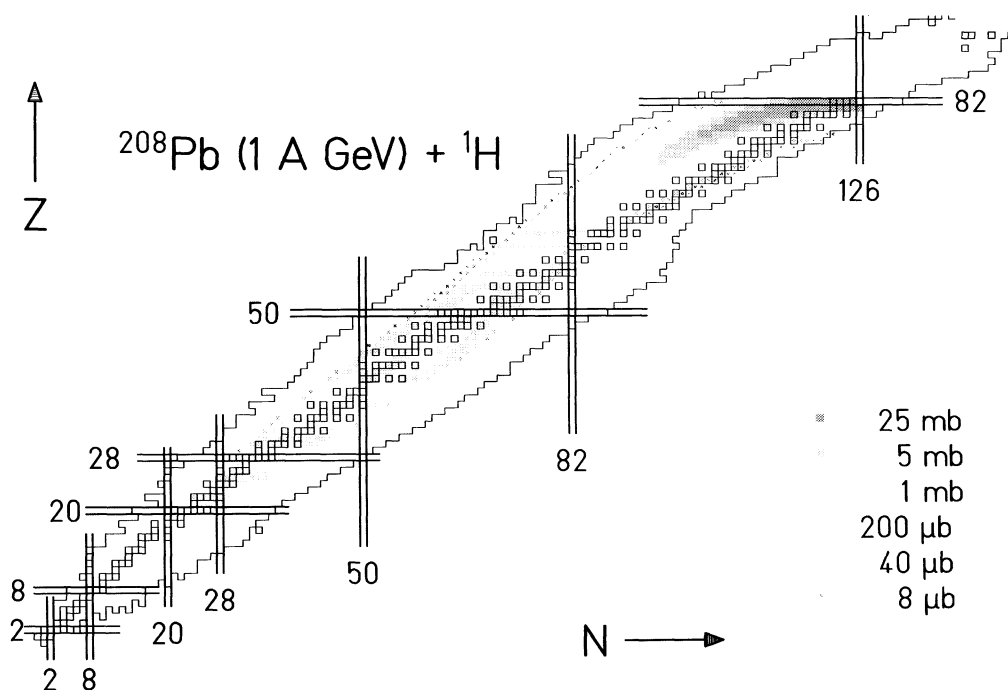


FIG. 2.3 – Sections efficaces isotopiques des noyaux résiduels produits par spallation du ^{208}Pb (1 GeV par nucléon) sur l'hydrogène. Les niveaux représentent les valeurs des sections efficaces.

2.1.1 La cascade intranucléaire

La cascade intranucléaire correspond à une succession de collisions individuelles entre les nucléons de la particule incidente de grande énergie et les nucléons du noyau cible. Les nucléons issus de ces collisions (nucléons de cascade) peuvent à leur tour heurter d'autres nucléons du même noyau. L'ensemble de ces collisions successives entraînent l'échauffement du noyau par transmission d'une partie de l'énergie incidente à l'ensemble des nucléons du noyau et l'éjection de plusieurs nucléons très énergétiques qui laissent un noyau diminué et fortement excité (de l'ordre de quelques centaines de MeV).

Cette approche "individualiste" des collisions à haute énergie (supérieure à 200 MeV par nucléon) a été énoncée pour la première fois par Serber [33]. Elle est justifiée par le fait que la longueur d'onde associée au projectile incident est inférieure à son libre parcours moyen dans le noyau et à la distance moyenne entre deux nucléons voisins en considérant le blocage dû au principe de Pauli lorsque la particule incidente a un moment supérieur à 1 GeV/c. Ceci se traduit par les deux équations suivantes :

$$\lambda = \frac{2\pi\hbar}{p} < \frac{1}{\rho_0 P_B \sigma_{NN}} \quad (2.1)$$

et

$$\lambda = \frac{2\pi\hbar}{p} < d \quad (2.2)$$

avec ρ_0 la densité nucléaire du noyau, σ_{NN} la section efficace d'interaction nucléon - nucléon et P_B le facteur de blocage de Pauli. d est la distance moyenne entre deux nucléons voisins.

Par exemple, pour un proton de 500 MeV, la longueur d'onde λ qui lui est associée est de $1,14 \cdot 10^{-15}$ m donc inférieure au libre parcours moyen du proton dans le noyau de l'ordre 10^{-14} m et à la distance moyenne entre nucléons $d \simeq 2,4 \cdot 10^{-15}$ m. La phase de cascade intranucléaire définit le nombre et l'énergie des particules de hautes énergies émises, elle fixe aussi les conditions initiales pour la seconde phase de désexcitation selon les valeurs de l'énergie d'excitation, la charge, la masse et le moment angulaire du noyau excité.

2.1.2 La désexcitation

La désexcitation se réalise par différents processus en compétition selon la nature, l'énergie et le moment angulaire du noyau excité : l'évaporation par émissions de plusieurs particules légères (neutrons, protons, deutons, $\alpha...$), la fission.

L'évaporation de particules légères

Lorsque l'énergie d'excitation est plus grande que l'énergie de liaison des nucléons, alors nucléons et fragments légers (α , d, t, ^3He) sont émis. Cette émission peut être décrite par le modèle statistique de Weisskopf [34] qui est une application du principe de la balance détaillée. Ce principe s'appuie sur l'invariance par renversement du temps illustrée par la relation suivante entre l'état final et l'état initial :

$$P_{i \rightarrow f} \rho(i) = P_{f \rightarrow i} \rho(f) \quad (2.3)$$

$\rho(i)$ et $\rho(f)$ sont respectivement les densités d'état de l'état initial i et de l'état final f . $P_{i \rightarrow f}$ est la probabilité par unité de temps de la transition de l'état initial à l'état final et $P_{f \rightarrow i}$ la probabilité par unité de temps de la capture d'une particule par le noyau excité pour former un noyau composé. $P_{f \rightarrow i}$ est donnée par :

$$P_{f \rightarrow i} = \sigma_{inv} \frac{v}{V} \quad (2.4)$$

où v est la vitesse de la particule incidente, V le volume dans l'espace de phase et σ_{inv} la section efficace du processus inverse à l'émission de particules, c'est à dire la section efficace de capture de particules par le noyau excité. Le principe de la balance détaillée permet donc d'établir une équivalence entre les processus d'émission et de capture. La probabilité d'évaporation d'une particule j de masse m_j , de spin $s_j \cdot \hbar$ et d'énergie cinétique E est définie par la relation suivante :

$$P_j(E) dE = \frac{(2s_j + 1)m_j}{\pi^2 \hbar^3} \sigma_{inv} \frac{\rho_f(U_f)}{\rho_i(U_i)} E dE \quad (2.5)$$

avec $\rho_f(U_f)$ et $\rho_i(U_i)$ les densités nucléaires de niveau à l'état initial et final du

noyau. U_i est l'énergie d'excitation du noyau qui s'évapore, U_f celle du noyau à l'état final ($U_f = U_i - E - Q_j$, Q_j l'énergie de réaction de l'émission de la particule j par le noyau composé). La largeur d'émission de toute particule j s'obtient par intégration de la probabilité d'évaporation $P_j(E)$ sur toutes les énergies. Elle est donnée par :

$$\Gamma_j = \int_{\epsilon_{min}}^{\epsilon_{max}} P_j(\epsilon) d\epsilon \quad (2.6)$$

où ϵ_{min} est l'énergie seuil pour l'émission d'une particule donnée. Cette énergie seuil vaut zéro pour les neutrons et est égale à la barrière coulombienne B_c pour les particules chargées. ϵ_{max} est l'énergie maximale disponible, elle est déterminée par $\epsilon_{max} = E_0^* - B_c - S_j$, où E_0^* l'énergie d'excitation initiale et S_j l'énergie de séparation de la particule de type j .

La fission

Le processus d'évaporation est en compétition avec la fission [35]. Cette dernière est surtout accentuée dans le cas des noyaux suffisamment lourds. L'énergie d'excitation entraîne à la fin de la cascade intranucléaire une déformation collective du noyau. Cette déformation se poursuit rapidement jusqu'à atteindre le point selle. Une fois le point selle dépassé, la fission se produit de façon irréversible et le noyau se sépare le plus souvent en deux fragments de masses voisines. La probabilité de fission est aussi décrite par la théorie statistique de Weisskopf [34, 36]. Elle est égale à la probabilité d'obtention du point selle puisque ce point conduit inexorablement à la fission. Bohr et Wheeler [36] développèrent un formalisme statistique permettant d'estimer la largeur de fission (Γ_F) associée à un état donné du noyau composé et définie par la relation suivante :

$$\Gamma_F = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\rho_i(U)} \int_0^{(U-B_F)} \rho_F(U - B_F - E) dE \quad (2.7)$$

L'énergie d'excitation U avant la fission sera partagée entre l'énergie cinétique relative E des deux fragments et une énergie d'excitation résiduelle. B_F la barrière de fission représente la différence d'énergie entre l'état fondamental et le point selle, elle peut être calculée au premier ordre par le modèle de la goutte liquide mais des effets de couches doivent

2.1. LA RÉACTION DE SPALLATION

être pris en compte en même temps. ρ_F est la densité de niveau du noyau fissionnant au point selle. La barrière de fission varie avec le paramètre de fissilité défini par $\frac{Z^2}{A}$. Pour les paramètres de fissilité inférieurs à 34, la barrière de fission varie de 5 à 30 MeV par contre elle reste constante et égale environ à 6 MeV pour $\frac{Z^2}{A} \geq 34$ comme le montre la figure 2.4. La fission des noyaux à $Z < 70$ est négligée dans la plupart des cas, pour les autres noyaux, la largeur de fission doit être comparée à celle de l'évaporation pour déterminer l'importance relative de chacun de ces deux processus.

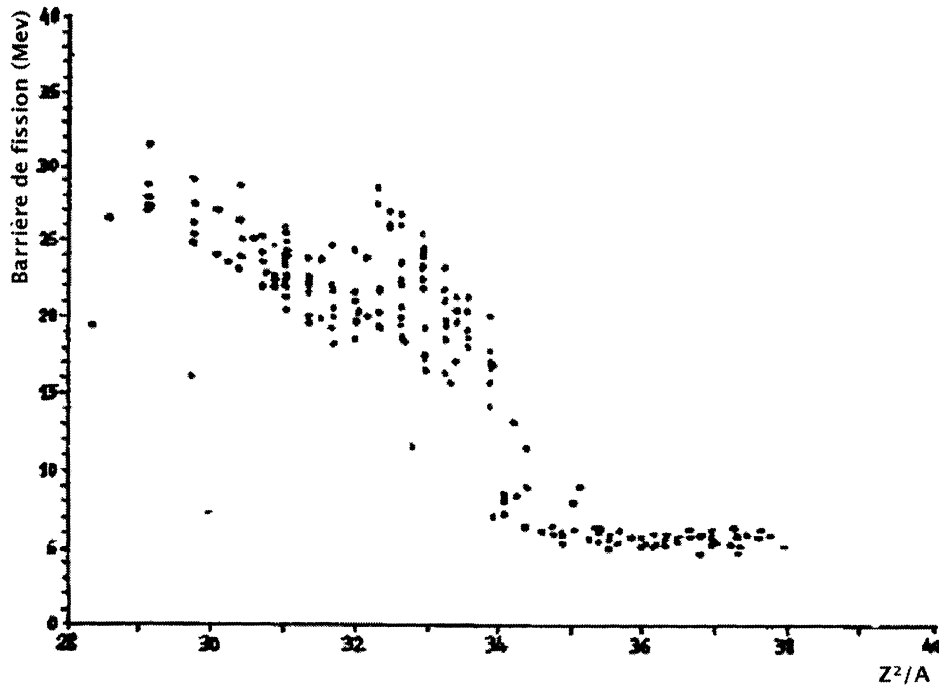


FIG. 2.4 – Evolution de la barrière de fission B_f en fonction de la fissilité.

Cependant, le formalisme de Bohr-Wheeler ne tient pas compte de l'aspect dynamique de la fission. Il est basé sur des considérations purement statistiques. En 1940, Kramers [37] décrit la fission comme une évolution des degrés de liberté collectifs en interaction avec le bain thermique formé par les nucléons individuels. Ceci introduit le concept de la dissipation, qui représente la transformation du mouvement collectif en chaleur à cause du mécanisme d'atténuation. La description de Kramers a été tirée de la solution quasi-stationnaire de l'équation de Fokker-Planck [38]. Cette description dynamique de la fission entraîne d'une part la diminution de la largeur de Bohr-Wheeler d'un facteur K appelé

facteur de Kramers, qui dépend de la dissipation β . Et d'autre part, elle entraîne aussi la dépendance en fonction du temps de la largeur de fission : le noyau a besoin d'un certain temps pour se déformer et franchir la barrière de fission. Ainsi, selon ces deux conditions, la largeur de fission s'écrit par la relation suivante :

$$\Gamma_F(t) = \Gamma^{BW} \cdot K \cdot f_\beta(t) \quad (2.8)$$

avec $\Gamma_F(t)$ la nouvelle largeur de fission, Γ^{BW} celle de Bohr-Wheeler et K le facteur de Kramers. La fonction croissante $f_\beta(t)$ introduit la dépendance en fonction du temps de la fission.

2.2 Le relâchement des gaz et éléments volatiles

Les produits volatiles générés par spallation sont d'abord dissous comme impureté dans la cible liquide. Ensuite, ils peuvent migrer par diffusion ou par convection à travers la cible. La diffusion dans un liquide est une migration de particule d'une zone à une autre sous l'effet d'un gradient de concentration ou de température dans le liquide, ou d'une force par exemple électrostatique lorsque les particules sont chargées. La diffusion est décrite par les deux lois de Fick [39]. La première loi stipule que le flux de diffusion des particules i données dans un milieu est proportionnel au gradient de leur concentration C_i (nombre d'atomes par unité de volume) dans le volume considéré. Cette loi s'exprime dans le cas d'une diffusion isotrope par la relation suivante :

$$\vec{J}_i = -D_i \cdot \overrightarrow{grad}(C_i) \quad (2.9)$$

où \vec{J}_i est le vecteur "densité de courant" des particules i (exprimé en nombre de particules par seconde et par m^2), D_i le coefficient de diffusion (en $m^2 \cdot s^{-1}$) dans le milieu. Le coefficient de diffusion D_i est définie par :

$$D_i = D_{i0} e^{-\frac{E_{ai}}{kT}} \quad (2.10)$$

avec D_{i0} le coefficient de diffusion maximale des particules i , E_{ai} leur énergie d'ac-

2.2. LE RELÂCHEMENT DES GAZ ET ÉLÉMENTS VOLATILES

tivation (en eV), K la constante de Boltzmann ($\text{eV}\cdot\text{K}^{-1}$) et T la température (en K). Donc, le coefficient de diffusion introduit une dépendance en fonction de la température. En effet, la diffusion augmente quand la température (l'agitation thermique) augmente.

A partir de la première loi et en appliquant la conservation des espèces, nous obtenons la deuxième loi de Fick :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \text{div} \vec{J}_i = 0 \quad (2.11)$$

La deuxième loi permet de lier la variation temporelle et spatiale de la concentration. La résolution analytique de ce système d'équations, possible seulement dans quelques cas particuliers, donne la concentration des espèces en fonction du temps et de leur position.

Dans le cas de l'expérience IS419, la diffusion est un processus assez complexe où les produits volatiles et gazeux dissous dans la cible peuvent réagir chimiquement avec l'hydrogène généré massivement par spallation, avec l'oxygène également dissous dans la cible pour former des oxydes, avec les éléments de la cible (Pb, Bi), avec les constituants des matériaux de structure ou se déposer sur des surfaces froides. Par exemple, le polonium forme des combinaisons moléculaires gazeuses dans les conditions expérimentales (températures comprises entre 400 et 600 °C) selon les équations bilans suivantes :



Le polonium peut aussi s'oxyder pour donner de l'oxyde de polonium PoO_2 ou former des polonides PbPo avec le plomb de la cible. Actuellement, diverses études sont en cours pour investiguer le comportement chimique des composés du polonium (PbPo , PoO_2 , ...), leur décomposition avec la température et leur enthalpie de diffusion parce que la sûreté des installations d'irradiation est largement affectée par la production d'isotopes de polonium. La volatilité de l'iode est très fortement limitée par le fait qu'il peut se

combiner en I_2 dans la cible et aussi par son affinité avec les éléments de la cible liquide (Pb et Bi) avec lesquels il forme du PbI_2 ou du BiI_3 [40].

Après la diffusion, la seconde étape fondamentale dans le relâchement des isotopes volatiles ou gazeux est l'effusion. Cette étape intervient depuis leur sortie de la cible liquide au niveau de la surface libre jusqu'à la source d'ionisation. Les isotopes effusent en suivant des trajectoires rectilignes entrecoupées de collisions avec les parois du cylindre contenant la cible, de la ligne de transfert et de la source. A chaque collision, l'isotope pénètre dans les couches atomiques superficielles de la paroi, avant d'être émis et de repartir à nouveau en ligne droite jusqu'au prochain obstacle. De ce processus d'effusion ressortent plusieurs paramètres fondamentaux :

- Le nombre moyen de collisions, χ , entre la sortie de la cible et l'entrée de la source d'ions. Il dépend de la configuration géométrique de l'ensemble cible-source utilisé.

- Le temps de vol moyen, τ_{vol} (en seconde), entre deux collages successifs sur des parois. Il est défini par la distance moyenne parcourue entre deux collages, D_{vol} (en mètre), et par la vitesse thermique de l'élément effusant. Il s'exprime pour des éléments monoatomiques par :

$$\tau_{vol} = D_{vol} \sqrt{\frac{m}{3KT}} \quad (2.16)$$

où m représente la masse de l'élément effusant (en kg), et T la température à laquelle il est thermalisé.

- Le temps de collage moyen, $\tau_{collage}$, représente le temps moyen mis par l'atome pour ressortir de la paroi. Il est donné par l'équation de Frenkel [41]

$$\tau_{collage} = \tau_0 \exp \frac{\Delta H_a}{KT} \quad (2.17)$$

avec ΔH_a , l'enthalpie d'adsorption (en Joule). Elle représente l'énergie d'activation pour la désorption de l'élément adsorbé et τ_0 une constante qui, comme l'enthalpie, dépend de la nature de l'élément adsorbé et de celle de l'élément adsorbant. Cependant, pour le même élément adsorbant, la valeur τ_0 est constante quel que soit l'élément adsorbé [42].

2.3. OUTILS DE SIMULATIONS

Tous ces facteurs permettent de déterminer le temps d'effusion $\tau_{effusion}$ des éléments. Ce temps d'effusion est lié au temps de vol, au temps de collage et au nombre de collisions :

$$\tau_{effusion} \cdot \chi \cdot (\tau_{vol} + \tau_{collage}) = \frac{1}{v} \quad (2.18)$$

avec v une constante caractéristique d'effusion (s^{-1}). Le temps d'effusion intervient dans le calcul de la probabilité d'effusion à un instant t déterminée par Kirchner [43]. Cette probabilité s'exprime par :

$$P_{effusion}(t) = v e^{-vt} \quad (2.19)$$

En regardant les relations 2.16 et 2.17, nous voyons que plus la température augmente, plus le temps de vol et de collage diminuent. Or, le facteur v est inversement proportionnel à la contribution de ces deux facteurs. Donc, le facteur v augmente avec la température ce qui a pour conséquence directe de favoriser l'effusion des éléments volatiles ou gazeux (ref. équation 2.19).

Dans cette section sur la diffusion et l'effusion, nous pouvons retenir une conclusion essentielle : pour relâcher efficacement des éléments volatiles ou gazeux, il faut augmenter la température du système cible-source et en même temps éviter des points froids localisés qui pourront empêcher l'effusion de certains isotopes.

2.3 Outils de simulations

Dans cette section, nous présentons les codes de simulation utilisés pour estimer la production des éléments gazeux et volatiles dans la cible de spallation de l'expérience IS419.

2.3.1 Le code de transport MCNPX

Le code de simulation MCNPX [17] est développé au Los-Alamos National Laboratory, États-Unis d'Amérique. Il est basé sur la méthode statistique de Monte Carlo. Ce

code permet de simuler le transport des protons et des neutrons pour des énergies qui s'étendent de 10^{-5} eV jusqu'à plusieurs GeV. D'autres particules (électrons, photons, deutons, alpha...) sont traités aussi par ce code. Pour des énergies inférieures à 200 MeV, presque l'ensemble des sections efficaces des réactions nucléaires est disponible pour la plupart des isotopes sous forme de bibliothèques évaluées. Parmi ces bibliothèques, on peut citer ENDF (américaine), JENDL (japonaise) et JEFF (européenne), elles sont régulièrement actualisées. Pour des énergies plus grandes que 200 MeV, les sections efficaces nécessaires pour traiter les problèmes de transport doivent être calculées en utilisant des modèles physiques implémentés dans le code MCNPX. Ces modèles physiques permettent de simuler les différentes étapes impliquées dans la réaction de spallation : la cascade intranucléaire, l'évaporation et la fission. Nous présentons ici les modèles que nous avons utilisé dans notre travail.

2.3.2 Les modèles de cascade intranucléaire.

Le modèle de Bertini

Le modèle de cascade intranucléaire de Bertini [44, 45] a été développé par H. W. Bertini en 1963 au laboratoire d'Oak Ridge (ORNL, Etats-Unis d'Amerique). Il est basé sur les travaux de Metropolis [46]. Dans le modèle de Bertini, le noyau est décrit de manière totalement continue suivant trois sphères concentriques (une sphère centrale entourée de deux anneaux sphériques) qui définissent des zones de densité et de potentiel différentes. Cette description s'appuie sur les distributions de charges continues établies expérimentalement par diffusion d'électrons par Hofstadter [47] et paramétrées par une fonction de type Woods-Saxon.

Nous pouvons voir un exemple de distribution continue de densité de nucléons de type Hofstadter pour le noyau de ^{65}Cu sur la figure 2.5 accompagnée de la distribution en trois régions différentes adoptée par Bertini et une distribution uniforme en une seule région.

Dans le modèle de Bertini, la densité de nucléon ρ_i de chaque région i est constante et proportionnelle à la densité centrale ρ_0 :

$$\rho_i = \alpha_i \rho_0 \tag{2.20}$$

2.3. OUTILS DE SIMULATIONS

où les coefficients α_i dont les valeurs standard sont 0,9, 0,2 et 0,01 définissent le rayon extérieur des sphères.

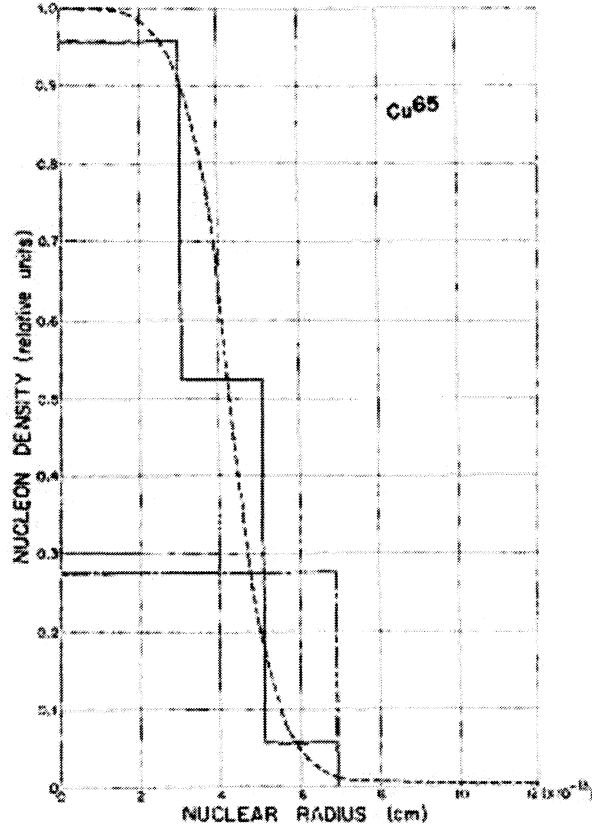


FIG. 2.5 – Comparaison entre trois distributions de densité de nucléons dans le noyau ^{65}Cu : distribution déterminée expérimentalement par Hofstadter (pointillé), distribution suivant trois régions, adoptée dans le modèle de Bertini (ligne pleine) et distribution de la densité nucléaire en une seule région (tirets).

Le rapport des densités de protons et de neutrons est conservé d'une région à l'autre et est égal au rapport du nombre de protons Z et de neutrons N dans le noyau :

$$\frac{\rho_{pi}}{\rho_{ni}} = \frac{\rho_p}{\rho_n} = \frac{Z}{N} \quad (2.21)$$

avec ρ_{ni} et ρ_{pi} représentent les densités respectivement de neutrons et de protons dans la région i , ρ_n (resp. ρ_p) la densité globale en neutrons (resp. en protons). Le système nucléaire est assimilé dans ce modèle à un gaz de Fermi à température nulle (0 K), les nucléons sont contenus dans un puits de potentiel constant pour chaque région du noyau.

Leur potentiel s'écrit par :

$$V(R_i) = -(E_{f_i} + E_l) \quad (2.22)$$

L'énergie de liaison du nucléon le moins lié E_l est supposée égale à 7 MeV pour toutes les régions et pour tous les noyaux. Le potentiel à l'intérieur d'un noyau pour chaque type de nucléons dans chaque région est prise supérieure de 7 MeV à l'énergie de Fermi E_{f_i} à la température 0 K. L'énergie potentielle des pions est arbitrairement prise égale à celle du nucléon avec lequel il interagit ; de ce fait la même valeur de potentiel est utilisée pour les pions et les nucléons. Le principe d'exclusion de Pauli est traité de telle sorte que les nucléons produits et diffusés sont ceux avec une énergie plus grande que l'énergie de Fermi associée à une zone donnée. La diffusion est interdite dans le cas contraire : on fait l'hypothèse que tout niveau d'énergie inférieure à l'énergie de Fermi est occupé. A la fin de la cascade, l'énergie d'excitation du noyau résiduel est donnée par :

$$E^* = T_i - T_0 - 7(n - 1) \quad (2.23)$$

avec T_i l'énergie cinétique de la particule incidente, T_0 la somme des énergies cinétiques des particules émises lors de la cascade, n le nombre de particules émises (le facteur $(n - 1)$ tient compte de la particule incidente) et 7 MeV correspond à l'énergie de liaison qui a été prise constante pour tous les nucléons. Le libre parcours moyen d'un nucléon est déterminé à partir des sections efficaces totales nucléon-nucléon (ou pion-nucléon) selon la relation suivante :

$$\lambda_i(E) = \frac{1}{\rho_i \sigma_t(E)}. \quad (2.24)$$

L'évolution de chaque particule mise en jeu dans la cascade est calculée jusqu'à ce que soit la particule s'échappe du noyau ou soit son énergie devienne inférieure à une énergie seuil dite énergie de coupure. Si l'énergie de la particule est plus faible que le seuil, elle reste alors bloquée dans le noyau. La cascade est stoppée lorsque tous les nucléons possèdent une énergie inférieure à l'énergie de coupure ou sont éjectés hors du noyau : le critère d'arrêt de la cascade de Bertini est purement énergétique.

Le modèle de Cugnon

Le modèle de cascade intranucléaire de Cugnon [48, 49], à l'origine du code de cascade INCL4 [50], est développé à l'Université de Liège en Belgique. L'approche de Cugnon, plus récente, est complètement différente de celle de Bertini. A l'opposé de Bertini, Cugnon n'assimile pas le noyau comme un milieu continu mais comme un paquet de nucléons individuels se déplaçant dans un puits de potentiel. Le mouvement des nucléons est décrit par le modèle du gaz de Fermi à 0 K, les nucléons suivent des trajectoires rectilignes jusqu'à ce que deux d'entre eux atteignent leur distance minimum d'approche d_{min} . Si $d_{min} \leq \sqrt{\frac{\sigma_{tot}}{\pi}}$, σ_{tot} étant la section efficace totale d'interaction, les deux particules interagissent obligatoirement de façon élastique ou inélastique en accord avec les lois de conservation d'énergie et d'impulsion. L'état final est choisi aléatoirement selon les valeurs expérimentales des sections efficaces différentielles mises en jeu (voir Ref. [51]). A la suite d'une interaction, des pions sont produits et les particules Δ sont excitées selon les deux mécanismes suivants :

$$NN \rightleftharpoons N\Delta \quad (2.25)$$

et

$$\Delta \rightleftharpoons \pi N \quad (2.26)$$

Dans le modèle de Cugnon, les sections efficaces utilisées sont paramétrées suivant une distribution angulaire ($\frac{d\sigma}{d\Omega}$) (voir Ref. [52]) sans cesse améliorée dans les versions successives du modèle grâce à l'amélioration des mesures expérimentales.

Parmi les améliorations apportées sur la cascade de Cugnon, celle concernant le traitement du principe d'exclusion de Pauli est parmi les plus importantes. Le blocage de Pauli est appliqué selon le principe suivant : si deux nucléons i et j vont interagir à la position $\vec{r}_{i(j)}$ en conduisant à l'état final d'impulsion $\vec{p}_{i(j)}$, la probabilité f_i d'occupation de l'espace de phase sera évaluée en comptant les nucléons voisins dans un petit volume d'espace de phase. f_i est donnée par la relation suivante :

$$f_i = \frac{1}{2} \frac{(2\pi\hbar)^3}{\frac{4\pi}{3} r_{PB}^3 \frac{4\pi}{3} p_{PB}^3} \sum_{k \neq i} \theta(r_{PB} - |\vec{r}_k - \vec{r}_i|) \times \theta(p_{PB} - |\vec{p}_k - \vec{p}_i|) \quad (2.27)$$

où θ est la fonction de Heavyside. Seuls sont pris en compte dans la somme les nucléons de même isospin que la particule i (ou j) considérée. Le facteur $\frac{1}{2}$ correspond à la non prise en compte du spin. Les collisions sont interdites quand l'état final du nucléon présumé est déjà occupé. En fait cela est réalisé en comparant le produit $P_{ij} = (1 - f_i)(1 - f_j)$ avec un nombre aléatoire compris entre 0 et 1. La collision est bloquée lorsque le produit P_{ij} est supérieur au nombre aléatoire et est autorisée dans le cas contraire. Le blocage n'est pas appliqué aux particules Δ à cause de leur faible densité par contre il l'est pour les nucléons résultant de la décroissance des Δ . En pratique, les paramètres de position et d'impulsion de l'espace de phase r_{PB} et p_{PB} sont choisis assez grands pour assurer une stabilité des résultats face aux petites variations de ces paramètres. Leurs valeurs de référence sont respectivement pour r_{PB} et p_{PB} 3,18 fm et 200 MeV/c. L'implémentation stochastique du blocage de Pauli et la fluctuation de l'occupation de l'espace de phase dans l'état initial peut conduire à des résultats irréalistes. Pour remédier à cela, dans la version de la cascade de Cugnon INCL4 il est introduit une condition supplémentaire aux collisions : seules sont autorisées les collisions qui conduisent à une augmentation nette de l'énergie de l'ensemble des nucléons contenus dans la mer de Fermi afin d'éviter la formation de noyaux dont l'énergie d'excitation est négative.

En prenant en compte le principe de Pauli, la cascade se poursuit selon une succession de collisions binaires. Lorsque un baryon frappe la barrière du puits de potentiel, il est réfléchi quand son énergie totale (potentielle et cinétique) est inférieure à l'énergie seuil de la barrière. Par contre, si son énergie est plus grande, il peut quitter le noyau avec une certaine probabilité appelé probabilité de transmission. Ainsi, la cascade se poursuit jusqu'à un certain temps appelé temps d'arrêt t_{arr} où la cascade est arrêtée pour faire place à la phase d'évaporation. Le critère d'arrêt alors temporel représente un facteur important dans le modèle de Cugnon. Le choix du temps d'arrêt résulte de l'évolution de l'énergie d'excitation du noyau cible.

Il a été montré que l'énergie d'excitation augmente rapidement lorsque la particule

2.3. OUTILS DE SIMULATIONS

incidente pénètre dans la cible, atteint un maximum après quelques fm/c et décroît ensuite rapidement avec l'émission de particules de hautes énergies. Ensuite, l'énergie d'excitation continue toujours de décroître mais très lentement suivant une pente de telle manière que cette étape peut être apparentée à l'évaporation. Le temps d'arrêt qui correspond à la fin de la cascade intranucléaire et au début de la phase d'évaporation est choisi à l'instant où l'énergie d'excitation amorce la diminution suivant la pente. En plus, ce temps d'arrêt correspond à des changements dans la variation en fonction du temps de plusieurs autres quantités physiques telles que le nombre de nucléons éjectés, l'énergie cinétique emportée par ces nucléons et l'énergie cinétique totale du nucléon incident. Ces observations permettent alors de déterminer le temps d'arrêt plus ou moins précisément avec des incertitudes de l'ordre de 2 à 5 fm/c. Par exemple, il est de l'ordre de 25 fm/c pour la réaction $p(1 \text{ GeV}) + \text{Pb}$ pour une collision centrale.

Une fois la cascade terminée, un modèle d'évaporation prend le relai dans la modélisation de la spallation. Les modèles de désexcitation sont caractérisés par trois importants paramètres du noyau à la fin de la cascade intranucléaire : sa nature, son énergie d'excitation et son moment angulaire.

2.3.3 Les modèles de désexcitation

Le modèle de Dresner

Le modèle de Dresner [53] initialement développé par Dostrovsky [54, 55, 56] utilise la théorie statistique de Weisskopf pour faire l'évaporation des protons, des neutrons, des deutons, des tritons, des hélium 3 et 4. La probabilité d'évaporation des particules légères déterminée à partir du principe de la balance détaillée fait intervenir plusieurs grandeurs physiques telles que la densité de niveaux, le paramètre de densité de niveaux, le potentiel coulombien et la section efficace de capture. Dresner utilise la formule dite "simplifiée" sans hypothèse sur le modèle nucléaire pour calculer les densités de niveaux selon l'équation suivante :

$$\rho(E^*) = C \cdot e^{2\sqrt{aE^*}} \quad (2.28)$$

où a est le paramètre de densité de niveaux et E^* l'énergie d'excitation du noyau résiduel et C une constante. Il existe plusieurs expressions du paramètre de densité de niveaux a . Dans le code de Dresner, l'expression du paramètre a dépend de l'énergie. A basse énergie, le paramètre par défaut tend vers celui de Gilbert-Cameron-Cook (GCC) [57] et vers celui de Ignatyuk [58] à haute énergie d'excitation selon les relations suivantes :

$$a = A[a_{GCC}f(E^*) + \tilde{a}_{Ignatyuk}(1 - f(E^*))] \quad (2.29)$$

avec

$$f(E^*) \longrightarrow \begin{cases} 0 & \text{quand } E^* \longrightarrow \infty \\ 1 & \text{quand } E^* \longrightarrow 0 \end{cases} \quad (2.30)$$

et A la masse du noyau. Le paramètre de Gilbert-Cameron-Cook est donnée par :

$$a_{GCC} = a_0 + 9,17 \cdot 10^{-3}[S_Z(N) + S_N(N)] \quad (2.31)$$

$S_Z(N)$ et $S_N(N)$ sont des fonctions qui dépendent du nombre de neutrons ; elles permettent la prise en compte des effets de couches. a_0 varie suivant que le noyau est déformé ou non.

Le paramètre de densité de niveaux d'Ignatyuk utilisé dans le code de Dresner est :

$$\tilde{a} = 0.1375 - 8,36 \cdot 10^{-5}A \quad (2.32)$$

\tilde{a} représente la valeur asymptotique de a à hautes énergies et A la masse du noyau.

Dans le traitement de l'évaporation, Dresner utilise des sections efficaces de capture obtenues expérimentalement et paramétrées par Dostrovsky [54].

Au delà de prédire l'évaporation, le modèle de Dresner traite aussi la fission dans la réaction de spallation en s'appuyant sur le formalisme d'Atchison [59]. Selon ce formalisme, la fission n'est en compétition qu'avec l'émission de neutrons tout au long de la chaîne de désexcitation. Ceci se traduit par une probabilité de fission donnée par :

$$P_F \simeq \frac{\Gamma_F}{\Gamma_F + \Gamma_n} \quad (2.33)$$

2.3. OUTILS DE SIMULATIONS

avec Γ_n et Γ_F les largeurs totales d'émission d'un neutron et de fission respectivement. La largeur de fission est donnée par le modèle d'Atchison selon deux formulations distinctes suivant la valeur du numéro atomique Z du noyau considéré. Ceci est dû à l'évolution de la barrière de fission avec la fissilité des noyaux comme l'illustre la figure 2.4. Pour des noyaux de charge comprise dans l'intervalle $88 < Z < 101$, la largeur de fission est donnée par l'expression semi-empirique de Vandenbosch et Huizenga [60] :

$$\log\left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma_F}\right) = \phi(Z)(A - \psi(Z)) \quad (2.34)$$

où ϕ et ψ sont tabulés en fonction de la charge du système fissionnant. Il est à noter, que la largeur de fission est indépendante de l'énergie d'excitation.

Pour les noyaux plus légers, entre $Z = 70$ et $Z = 88$, les largeurs d'émission de neutrons et de fission sont calculées séparément. La largeur de fission utilisée est celle calculée par Bohr et Wheeler [36]. Elle dépend du paramètre de densité de niveaux a_f et de la barrière de fission B_f au point selle. La barrière de fission B_f et le paramètre de densité de niveaux a_f sont déterminés expérimentalement et ajustés par les fonctions paramétriques suivantes [61] :

$$B_f = E_{ln} + p_1 + p_2\left(p_3 - \frac{Z^2}{A}\right)^2 \quad (2.35)$$

et

$$\frac{a_f}{a_n} = p_4 + p_5(Z^2 - p_6)^2 \quad (2.36)$$

avec p_i , $i = 1$ à 6 , les paramètres obtenus lors de l'ajustement. E_{ln} est l'énergie de liaison du neutron le moins lié et a_n le paramètre de densité de niveau dans l'état fondamental. La largeur de l'émission de neutrons n'est fonction que du paramètre a_n dont la valeur est fixée à $\frac{A-1}{8}$ dans les ajustements par les fonctions paramétriques présentées ci-dessus. Actuellement le modèle de Dresner est en cours d'amélioration sur sa partie évaporation et fission. Par exemple, le modèle GEM [62] est une forme réactualisée du modèle de Dresner.

Le modèle ABLA

Le modèle ABLA [63] a été développé au début des années 80 par K. H. Schmidt et ses collaborateurs. Comme le modèle de Dresner, le code ABLA traite l'évaporation par la théorie de Weisskopf mais seulement les protons, les neutrons et les particules α peuvent être évaporés (dans la version implémentée dans le code de calcul MCNPX). ABLA traite l'évaporation en utilisant le modèle du gaz de Fermi, modèle plus réaliste, pour déterminer la densité de niveaux $\rho(E^*)$. Ceci est en opposition avec le modèle de Dresner qui se contente du modèle simplifié pour l'expression de la densité de niveaux. Cette dernière est implémentée dans ABLA par la relation suivante :

$$\rho(E^*) = \frac{\pi^{\frac{1}{2}} e^{2\sqrt{aE^*}}}{12 a^{\frac{1}{4}} (E^*)^{\frac{5}{4}}} \quad (2.37)$$

avec a le paramètre de la densité de niveaux. Le paramètre a de densité est celui donné par Ignatyuk [58] et est exprimé dans le cas d'une grande énergie d'excitation par la relation suivante :

$$a = \alpha_v A + \alpha_s A^{2/3} B_s + \alpha_k A^{1/3} B + k \quad (2.38)$$

où $\alpha_v = 0,073 \text{ MeV}^{-1}$, $\alpha_s = 0,095 \text{ MeV}^{-1}$ et $\alpha_k = 0 \text{ MeV}^{-1}$ sont les coefficients de volume, de surface et de courbure de la densité de niveaux de particules indépendantes. Le facteur B_s correspond à la surface d'un noyau déformé et normalisé à celle d'une configuration sphérique ou non déformée. B_k est la courbure intégrée du noyau fissionnant normalisée aussi à celle d'une configuration de noyau non déformé. Les paramètres de densité de Ignatyuk à haute énergie d'excitation utilisés dans Dresner et ABLA diffèrent, leurs valeurs asymptotiques tendent respectivement pour Dresner et ABLA vers $A/8$ et $A/12$. ABLA ne tient pas compte des sections efficaces de capture puisqu'elles disparaissent lors du calcul de la probabilité d'évaporation des particules légères.

Contrairement au modèle de fission d'Atchison implémenté dans Dresner qui considère que la fission n'est en compétition qu'avec l'émission de neutrons, la fission d'ABLA quant à elle prend en compte toutes les voies d'évaporation possibles (évaporation de neutrons, protons et α) en même temps que la fission. La probabilité de fission P_F est donnée alors

par :

$$P_F(t) = \frac{\Gamma_F(t)}{\Gamma_F(t) + \sum_i \Gamma_i} \quad (2.39)$$

La probabilité de la fission dépend du temps puisque la largeur de fission utilisée ici prend en compte le caractère dynamique de la fission. Ce caractère dynamique ou diffus de la fission est décrit par l'équation de Fokker-Planck dont la solution introduit une dépendance temporelle dans la largeur de fission. Donc ABLA traite la fission comme un phénomène diffus au dessus de la barrière de fission. Les barrières de fission sont obtenues à partir de celles déterminées par A. J. Sierk [64].

Le code ABLA est en constante amélioration (évaporation étendue, multifragmentation, fission dynamique), il bénéficie aussi des récents travaux expérimentaux réalisés au GSI en Allemagne qui fournissent des données expérimentales importantes et de qualité qui permettent d'obtenir des versions de plus en plus réalistes et affinées.

2.3.4 Le code d'évolution CINDER'90

CINDER'90 [65] est un programme FORTRAN, un code de calcul, associé à une base de données qui permet de calculer la composition isotopique d'un système irradié au cours du temps, développé essentiellement par W.B. Wilson et ses collaborateurs.

C'est à partir de 1960 au Betis Atomic Power Laboratory, BAPL, que le développement du code CINDER commence pour répondre aux besoins de simulations liés à l'essor des réacteurs nucléaires thermiques. Il est alors utilisé au BAPL et au Los Alamos National Laboratory, LANL, pour plusieurs calculs sur les combustibles de réacteurs. De nombreuses versions se succèdent au rythme des améliorations des bases de données et du codage mais toujours en conservant le même algorithme. On peut citer d'abord CINDER, EPRI-CINDER, CINDER-2 puis CINDER-7 et CINDER-10 possédant une gamme complète de sections efficaces relative aux produits de fissions et des propriétés de décroissance tirées de la base de données ENDF/B.

Toutes les versions de CINDER utilisent les chaînes de Markov pour déterminer les

densités de noyaux en fonction du temps. La procédure de formation de la chaîne requiert la comparaison des différentes probabilités de transmutation en compétition. Par exemple, il est nécessaire de comparer la constante de décroissance radioactive λ_i avec la probabilité $\phi\sigma_j$ pour chaque schéma de décroissance i et voie de réaction j . Les choix adoptés pour limiter la longueur et le nombre des chaînes reflètent l'importance de chaque $\phi\sigma_j$, de chaque section efficace et du flux caractéristique du problème.

Les versions précédentes du code étaient plus ou moins dédiées et limitées aux calculs sur les combustibles car leurs bibliothèques de données n'incluaient seulement que des noyaux dans la région des produits de fission ($66 \leq A \leq 172$) et des actinides ($90 \leq Z \leq 96$). Avant 1990, les problèmes de transmutation avec un accélérateur de particules étaient étudiés au LANL avec le code REAC [66] de F. Mann puisqu'il possédait une base de données regroupant tous les éléments avec un $Z \leq 84$ et un algorithme capable de prendre en compte de façon formelle la capture neutronique des noyaux et leurs décroissances radioactives sur plusieurs générations. Les limitations du code REAC, sur la qualité de ses bases de données et de son algorithme, ainsi que la volonté d'introduire de nouvelles bases de données, disponibles pour des énergies plus élevées, ont conduit à partir de 1990 à un gros effort de développement autour de la version CINDER'90.

L'algorithme est alors étendu pour intégrer des variables d'entrée supplémentaires comme les taux de production et de destruction associés à des réactions impliquant des particules et des énergies dépassant la capacités du code. En conjonction avec d'autres codes simulant l'évolution de systèmes irradiés au cours du temps, CINDER'90 a été utilisé pour produire l'inventaire des noyaux produits dans de nombreux types d'application. La bibliothèque de données nucléaires, constamment étoffée en qualité et en énergie grâce à l'action des programmes expérimentaux internationaux, décrit maintenant plus de 3400 noyaux dans la gamme $1 \leq Z \leq 103$.

Le champs d'application du programme a encore été largement accru en ajoutant des bases de données et en développant le code pour décrire la transmutation des noyaux de Z encore plus élevé, la fission spontanée et la fission induite par neutron des actinides. Dans CINDER'90, plutôt que l'utilisation de structure de chaîne prédéfinie, chaque voie à partir de chaque noyau, défini par l'ensemble des données nucléaires disponibles, est

2.3. OUTILS DE SIMULATIONS

suivie. Une observable clef, extraite de la solution analytique donnant le poids du i^e noyau dans la chaîne, est la valeur liée à la transmutation intégrée sur le temps de ce noyau. Cette quantité, appelée "passby", donne la somme des poids de tous les noyaux produits dans chaque voie possible pour le i^e noyau. Une valeur élevée du "passby" est un critère prépondérant pour décider de la continuation de l'histoire du noyau par cette voie.

Les principaux paramètres d'entrée pour effectuer une simulations s'appuient sur les caractéristiques statiques du système dans son état initial, à savoir :

- le flux de neutrons par particule source incidente d'énergie inférieure à 25 MeV
- le taux de production isotopique par particule source induit par réaction de spallation
- la composition isotopique initiale
- le coefficient de normalisation temporelle correspondant au nombre de particules source par seconde

Chapitre 3

Expérience IS419 : dispositif et procédure de détection

L'expérience IS419 a été réalisée auprès de l'installation ISOLDE [67] du CERN (Centre Européen de la Recherche Nucléaire) en Suisse dans le cadre d'une collaboration regroupant le PSI, SUBATECH et le CERN.

Ce chapitre détaille dans sa première section le dispositif expérimental. La deuxième section est consacrée à la procédure expérimentale appliquée pour obtenir les taux de production des éléments volatiles et gazeux.

3.1 Dispositif expérimental

ISOLDE est l'une des plus grandes installations scientifiques utilisant la technique de la séparation de masse en ligne des faisceaux d'ions radioactifs, technique appelée ISOL (Isotope Separation On-Line). ISOLDE offre une grande diversité de faisceaux d'ions radioactifs permettant par la même occasion la recherche sur des domaines aussi variés que la physique nucléaire et atomique, l'astrophysique, les sciences de la vie. Plus de 1000 isotopes d'environ 70 éléments ont déjà été produits. La figure 3.1 donne une représentation schématique de l'installation ISOLDE sur laquelle on peut localiser l'arrivée du faisceau de protons, la cible de spallation et le système de détection. Nous allons détailler les principaux éléments constitutifs de l'installation ISOLDE impliqués dans l'expérience

IS419.

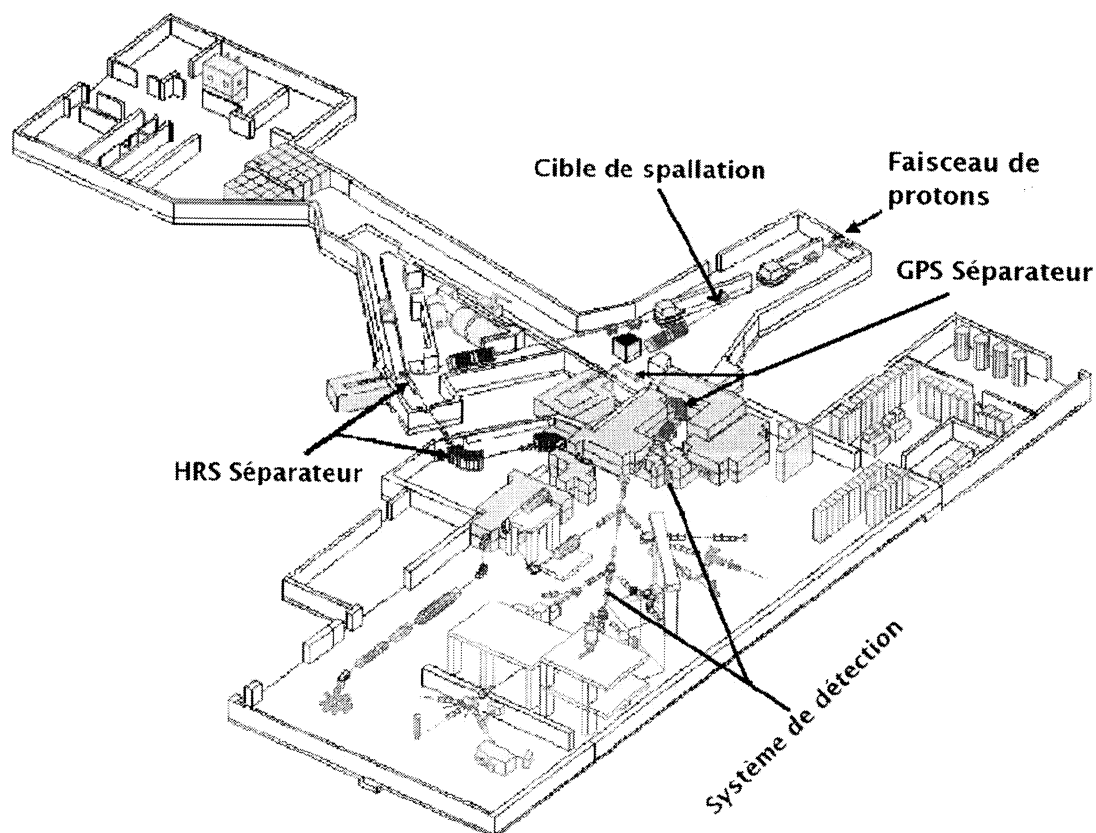


FIG. 3.1 – Vue schématique de l'installation ISOLDE.

3.1.1 Le faisceau de protons

L'accélérateur linéaire, LINAC II, délivre un premier faisceau de protons à 50 MeV au PSB Proton Synchrotron Booster (PSB). Le PSB, formé d'un assemblage de quatre synchrotrons montés en parallèle, accélère le faisceau de protons jusqu'à des énergies de 1 ou 1,4 GeV.

Le faisceau possède alors une structure pulsée d'une intensité comprise entre 10^{10} et 10^{13} protons toutes les 1,2 secondes. Une impulsion est constituée de quatre paquets de protons de durée de 230 ns pour chaque paquet, deux paquets étant séparés temporellement de 120 ns. Un "supercycle" est composé de 12 ou 14 impulsions successives, la durée

3.1. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

d'un supercycle est de 14,4 ou 16,8 secondes. La figure 3.2 illustre la structure temporelle des impulsions et des supercycles délivrés par le PSB.

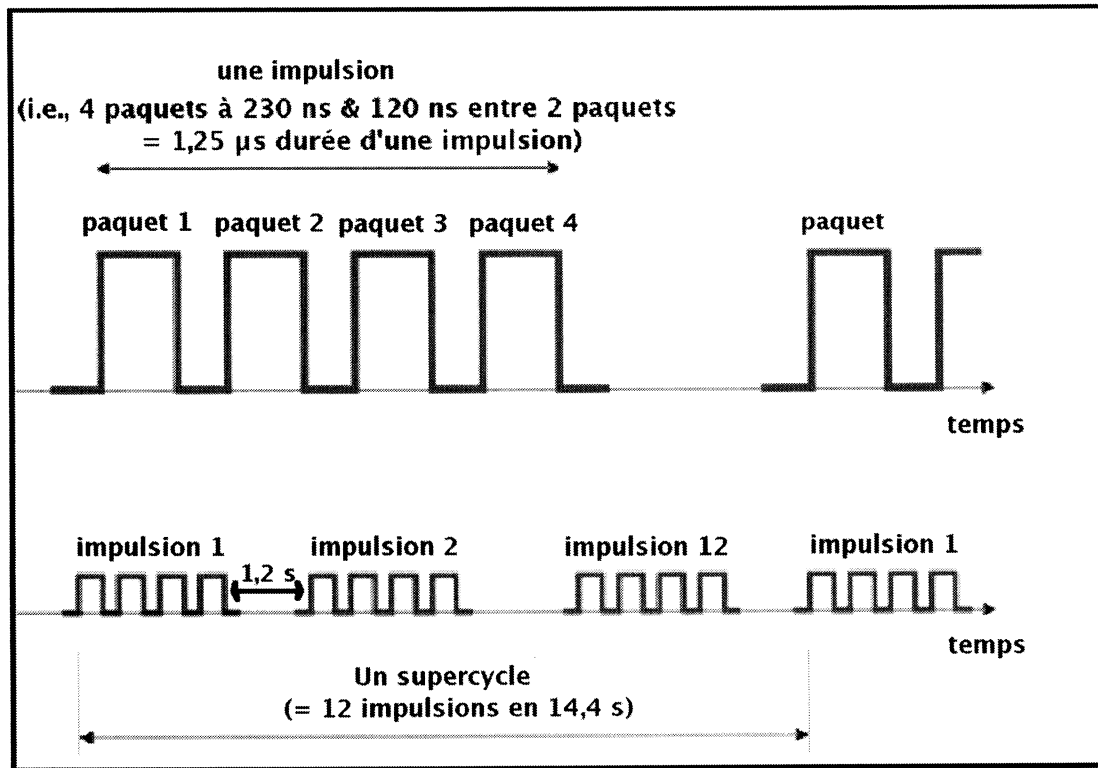


FIG. 3.2 – Structure temporelle du faisceau de protons délivré par le PSB.

Le caractère pulsé du faisceau de protons combiné à une intensité de courant élevée accroît les contraintes thermiques sur la cible et accélère le relâchement des isotopes et améliore en même tant la production hors cible des isotopes à durée de vie courte [68]. Cette condition de relâchement rapide a l'avantage de permettre la détection des faisceaux d'ions radioactifs à durée de vie courte.

3.1.2 La cible de spallation

La cible est le cœur du dispositif ISOLDE où se déroulent les réactions de spallation. Dans l'expérience IS419, la cible de spallation choisie est une cible au Pb-Bi liquide en référence à la cible de MEGAPIE. Cependant, un problème technique sur la cible de Pb-Bi nous obligea à réaliser une partie des mesures avec une cible en Pb liquide, seule cible de

numéro atomique comparable et disponible à ce moment là. Ceci nous a permis d'obtenir des données expérimentales pour deux types de cible.

La cible est contenue, comme le montre la figure 3.3, dans un cylindre en tantale de 20 cm de longueur et de 1 cm de rayon. Le cylindre est rempli à 75 % de son volume pour permettre aux produits volatiles formés par spallation de diffuser au dessus de la surface libre de la cible.

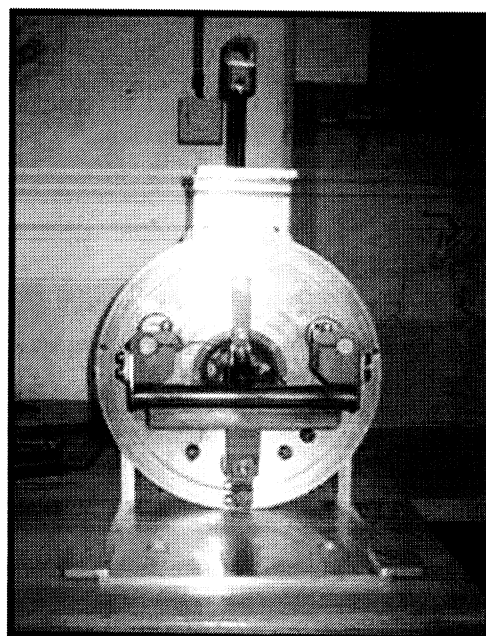
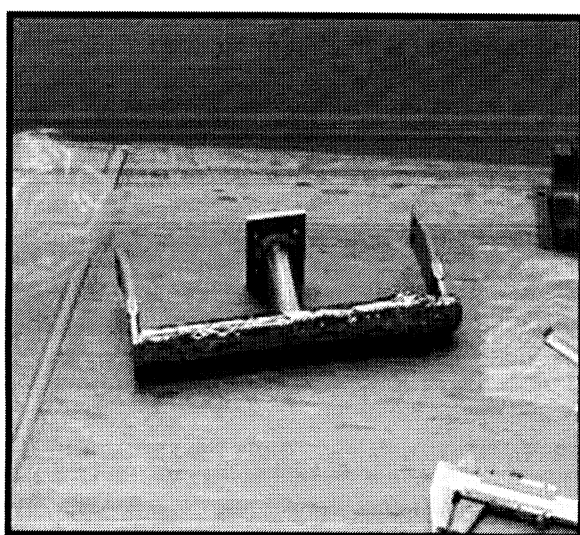


FIG. 3.3 – La cible ISOLDE. A gauche, le cylindre en tantale, conteneur de la cible liquide. A droite, le cylindre est placé sur son support et connecté à la source d'ionisation. L'axe du faisceau correspond à celui du cylindre.

Un changement de cible requiert une procédure assez complexe impliquant plusieurs étapes, à savoir le refroidissement de l'ancienne cible, la mise en zone d'irradiation de la nouvelle cible et le remplacement de l'ancienne cible à l'aide d'un système robotisé. Après la mise en place de la nouvelle cible, cette dernière va être chauffée progressivement et un courant de gaz va circuler à l'intérieur afin de dégager tous les gaz résiduels présents. Le changement de la cible peut durer alors plusieurs jours. Afin d'assurer l'intégrité de la cible, il convient d'être attentifs à deux phénomènes principaux :

- l'augmentation rapide et localisée de la température peut engendrer l'éjection de

3.1. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

goutellettes de métal liquide au dessus de la surface libre. Elles peuvent créer un contact électrique néfaste entre le métal liquide et les électrodes de la source d'ionisation. Ainsi, pour éviter d'introduire la cible liquide dans la source d'ionisation, des écrans ont été installés sur la ligne de transfert.

- le faisceau pulsé de protons soumet le conteneur de la cible à des contraintes thermiques cycliques [69] pouvant entraîner sa rupture.

3.1.3 La source d'ions

Au delà des caractéristiques de la cible comme sa température, de l'énergie et du type de particules incidentes, le type de source d'ions joue un rôle de premier plan dans l'extraction des résidus volatiles. La source d'ions utilisée pendant l'expérience est une source à plasma de type FEBIAD (Forced Electron Beam Ion Arc Discharge) [42, 70]. La figure 3.4 donne une représentation de la source d'ions à plasma utilisée.

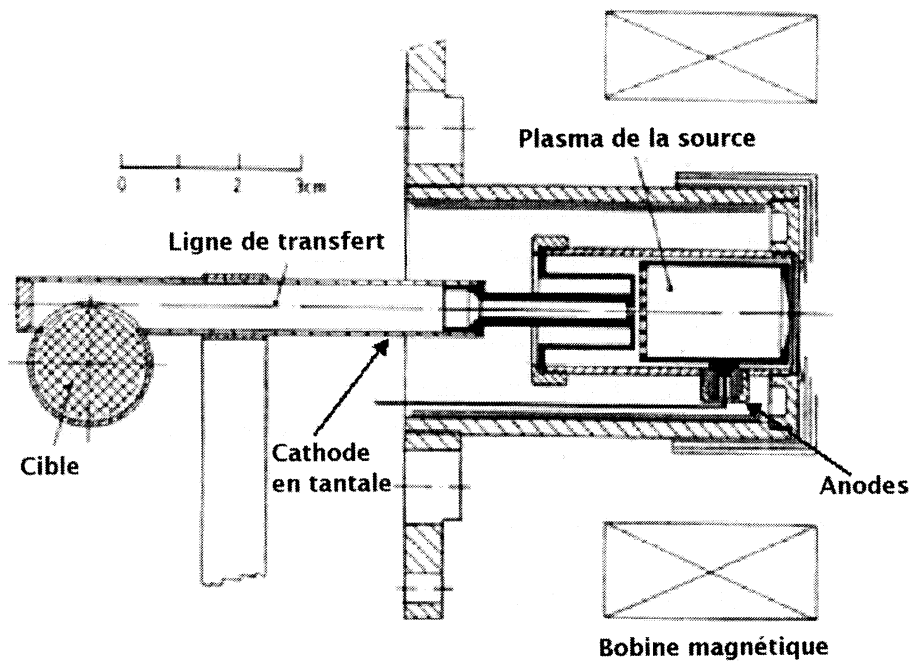


FIG. 3.4 – Vue schématique de la source d'ionisation à plasma connectée à la cible par la ligne de transfert.

IS419 : DISPOSITIF ET PROCÉDURE DE DÉTECTION

Elle est formée principalement de deux anodes et d'une cathode. La cathode en tantale est chauffée par pertes ohmiques. Cette cathode est fabriquée de telle manière qu'elle s'échauffe en surface et perde progressivement des électrons. Ces derniers vont être accélérés vers les deux anodes. Entre les deux anodes, constituées d'une grille de carbone dans une matrice de nitrure de bore (BN), ces électrons vont créer un plasma à partir du mélange de gaz préalablement introduit (du xénon et de l'argon) par ionisations directes ou échanges de charges. Un champ magnétique est appliqué à la source d'ions pour entraîner les électrons dans une trajectoire en spirale dans le but d'accroître la probabilité ou l'efficacité d'ionisation. Ce type de source est très pratique dans le cas des cibles liquides et épaisses car elle présente l'avantage d'ioniser un grand nombre d'éléments. Cependant ce mode n'ayant pas de sélectivité chimique, une contamination isobarique demeure après la séparation en masse. La cible de spallation est connectée au plasma de la source d'ions par le biais de la ligne de transfert. Au cours de l'expérience, la ligne de transfert est maintenue à des températures (comprises entre 300 - 400 °C) inférieures à celles de la cible pour limiter le transfert des éléments moins volatiles dans la source d'ions et ainsi améliorer la pureté du faisceaux d'ions radioactifs. En plus, l'utilisation d'une ligne de transfert moins chaude réduit aussi la transmission de vapeurs de la cible liquide dans la source d'ionisation, ces vapeurs pouvant empêcher le bon fonctionnement de la source d'ions. Après ionisation, les ions sont envoyés aux séparateurs de masse GPS (General Purpose Separator) ou HRS (High Resolution Separator).

3.1.4 Le séparateur de masse GPS

ISOLDE dispose de deux séparateurs électromagnétiques de masses (cf. figure 3.1) connectés chacun à son système cible-source : le GPS (cf. figure 3.5) et le HRS. Dans l'expérience IS419, seul le séparateur GPS est utilisé (le HRS étant utilisé par une autre expérience en parallèle). La figure 3.5 montre une représentation schématique du GPS.

Le GPS est conçu de telle manière qu'il est capable de sélectionner trois faisceaux de masses différentes et de les fournir simultanément dans le hall expérimental via trois lignes de transmission en parallèle appelées central mass ou ligne centrale, GLM (General Low Mass) et GHM (General High Mass). Le séparateur GPS utilise un aimant de courbure

3.2. DÉTECTION DES FAISCEAUX D'IONS RADIOACTIFS

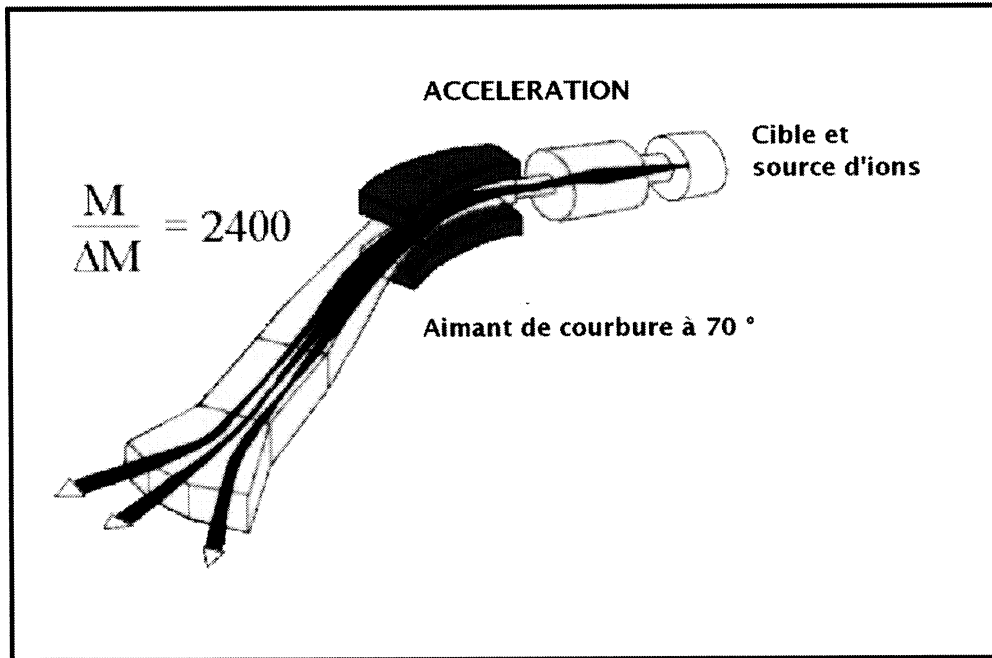


FIG. 3.5 – Vue schématique du séparateur GPS.

de 70° et présente une résolution en masse d'environ $\frac{m}{\Delta m} = 2400$. À titre d'information, le HRS, équipé de deux aimants de recourbement, possède une plus grande résolution en masse ($\frac{m}{\Delta m} = 5000$) mais ne peut fournir qu'un seul faisceau à la fois. À l'extrémité des lignes de transmission se situent les dispositifs de détection des faisceaux d'ions radioactifs.

3.2 Détection des faisceaux d'ions radioactifs

La détection des éléments volatiles produits par l'irradiation de la cible au Pb ou Pb-Bi liquide s'est faite suivant deux manières : une détection hors ligne de faisceaux d'ions radioactifs et une détection en ligne. Le choix de la méthode de détection est basé sur la durée de vie de l'isotope concerné. Ainsi, il est préférable de mesurer en ligne les isotopes à courte durée de vie pour minimiser les pertes par décroissance radioactive et hors ligne les isotopes à durée de vie plus ou moins longue. Les mesures expérimentales sont réalisées dans des conditions de faisceaux de protons stables et en essayant d'obtenir l'équilibre des radioisotopes mesurés avec leurs parents. À l'équilibre, nous avons une contribution

régulière et constante des parents dans les mesures pour les isotopes dont la production résulte de la somme de la production directe par spallation et de la contribution des parents.

3.2.1 Détection hors ligne

La détection hors ligne concerne essentiellement des isotopes dont la durée de vie peut varier de la minute à quelques jours. Le choix concernant cette gamme de durée de vie se justifie par la procédure de détection qui est présentée maintenant. Une feuille d'aluminium est insérée sur la ligne GLM (voir la figure 3.6).

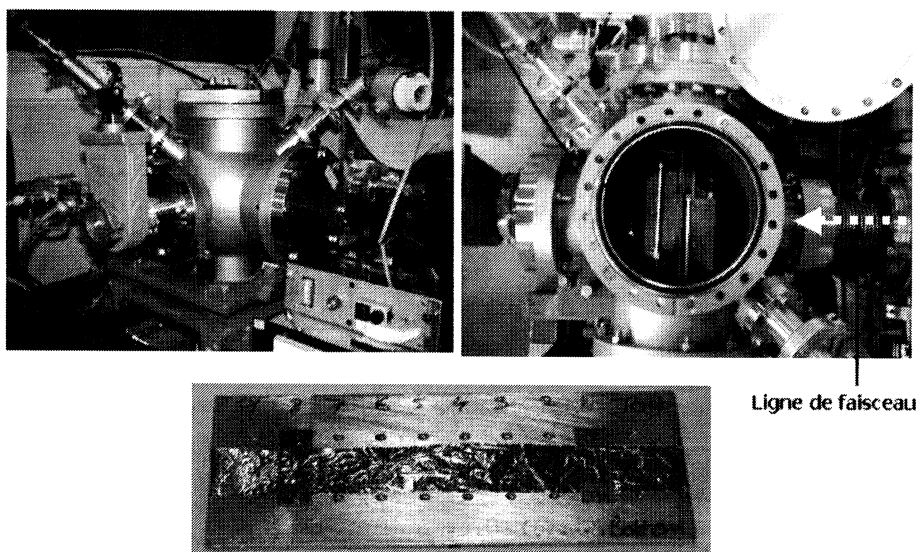


FIG. 3.6 – Implantation des radioisotopes sur feuille d'aluminium. En haut à gauche : extrémité de la ligne GLM où sont placées les feuilles d'aluminium pour la collection de faisceaux d'ions radioactifs. En haut à droite : vue de dessus montrant les feuilles d'aluminium insérées dans la ligne GLM. La flèche indique la direction et le sens des faisceaux d'ions radioactifs produits. En bas : feuille d'aluminium sur son support prête à être utilisée.

Cette feuille, de longueur 10 cm, de largeur 1 cm et d'épaisseur 0,5 mm, est subdivisée en 8 compartiments. Chaque compartiment est irradié par un faisceau d'ion radioactif émetteur γ produit dans la cible. Après l'implantation successive sur les 8 compartiments, la feuille d'aluminium est sortie de la ligne, puis découpée en 8 pièces contenant chacun un

3.2. DÉTECTION DES FAISCEAUX D'IONS RADIOACTIFS

isotope donné. Les 8 échantillons sont enfin placés l'un après l'autre à côté du détecteur germanium en vue d'une γ -spectrométrie hors ligne. Au vu du nombre d'opérations à effectuer (découpage de la feuille, transport jusqu'au détecteur germanium et mesure proprement dite), il est judicieux de travailler avec des isotopes dont la période est supérieure au temps de préparation, mais pas trop longue pour pouvoir détecter leurs décroissances radioactives. De façon à optimiser la procédure de mesure, nous plaçons un à un les 8 pièces devant le détecteur germanium en commençant par les isotopes à plus courte durée de vie. Cette procédure est répétée plusieurs fois pour réduire les erreurs statistiques. L'acquisition et l'analyse des données sont effectuées avec le programme GENIE 2000 [71] développé par CANBERRA.

3.2.2 Détection en ligne

La détection en ligne est réalisée sur la ligne centrale commune aux séparateurs GPS et HRS. Deux systèmes de détection sont utilisés pour effectuer les mesures : un détecteur germanium couplé avec une bande de transport métallisée et des cages de Faraday. La figure 3.7 montre le dispositif de la bande de transport avec le détecteur germanium.

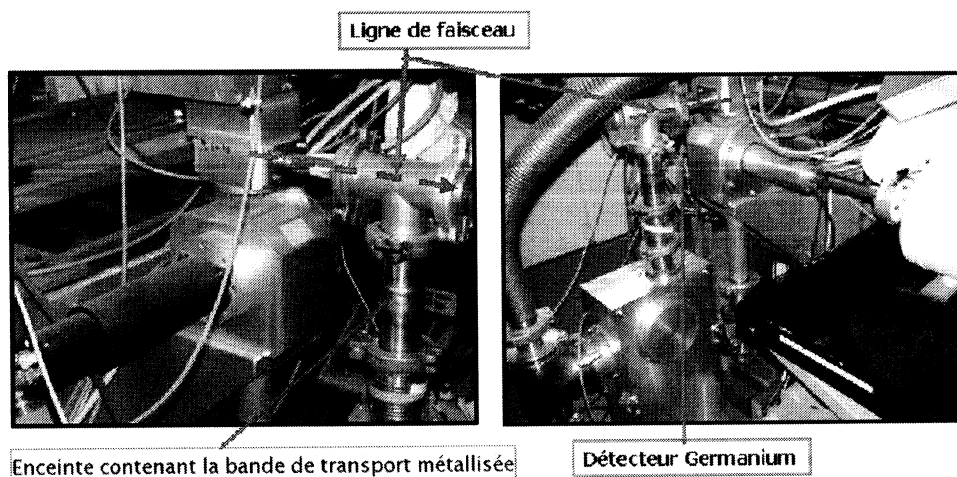


FIG. 3.7 – Dispositif installé sur la ligne centrale constitué d'une bande de transport métallisée et d'un détecteur germanium

La bande de transport permet de collecter efficacement un élément volatile ou ga-

IS419 : DISPOSITIF ET PROCÉDURE DE DÉTECTION

zeux envoyé par le séparateur de masse. Une seconde après la collection, la bande place l'échantillon devant le détecteur germanium, permettant ainsi d'effectuer les mesures en ligne des activités des isotopes relâchés à très courte durée de vie (durée de vie de l'ordre de la seconde à des heures).

Contrairement au détecteur germanium couplé à la bande de transport, les cages de Faraday mesurent l'intensité des faisceaux d'ions en général stables ou radioactifs à période très longue, ces isotopes entraînant une activation nulle ou très faible des cages de Faraday. Les cages de Faraday disposent de plusieurs emplacements sur les trois lignes où elles peuvent être placées exactement sur la trajectoire du faisceau à l'aide de petits vérins pneumatiques. Elles sont reliées par des cables triaxiaux à des pico-ampèremètres qui donnent l'intensité du courant mesuré. Un système d'acquisition développé au PSI permet de déclencher la mesure du courant avec l'arrivée du faisceau de protons sur la cible.

Le tableau 3.1 résume les deux techniques utilisées avec les détecteurs correspondants. Pour chaque technique, la période des isotopes détectés est spécifiée ainsi que quelques exemples d'isotopes.

Méthode de détection	Détecteur	Période des isotopes mesurés	Exemple d' isotopes mesurés
Hors ligne	Germanium	minutes - qq jours	^{105}Cd , ^{205}Hg , ^{203}Hg
En ligne	Germanium Cage de Faraday	secondes - qq heures très longue ou stables	^{184}Hg , ^{204}At , ^{122}Xe ^{194}Hg , ^{196}Hg , ^{124}Xe

TAB. 3.1 – Techniques de détection utilisées dans l'expérience IS419.

3.3 Campagne de mesure

3.3.1 Déroulement des mesures

L'expérience IS419 s'est déroulée suivant trois phases d'irradiation entre 2004 et 2005 :

Première phase

3.3. CAMPAGNE DE MESURE

La première phase a eu lieu en mai 2004 avec un faisceau de protons d'énergie de 1,4 GeV. La cible de spallation en Pb-Bi liquide était chauffée entre 400 ° et 600 °C. Elle a duré environ 60 heures d'irradiation avec un faisceau d'intensité moyenne de $9,45.10^{-5}$ mA.

Seconde phase

La deuxième phase a été réalisée au mois d'août de la même année avec la même énergie de faisceau de protons. Du Pb liquide a été pendant cette phase portée à la température de 500 °. Initialement du Pb-Bi liquide était prévu comme dans la première phase, mais une cassure observée au début des mesures sur la ligne de transfert connectée à la cible, nous obligea alors de prendre une cible en Pb fondu, seule cible disponible à ce moment là. Cette cible fut irradiée par un faisceau de protons d'intensité moyenne $1,5.10^{-5}$ mA.

Troisième phase

Pendant la troisième et dernière phase, effectuée en août 2005, les mesures sont réalisées avec une cible de Pb-Bi liquide dont la température variait de 250 ° à 600 °C.

Date début	Date fin	Durée d'irradiation (heures)	Intensité moyenne (mA)
1 GeV			
15-08 20 :00	16-08 16 :00	20	$1,04.10^{-4}$
16-08 16 :00	18-08 4 :00	36	$2,56.10^{-4}$
18-08 4 :00	18-08 10 :00	6	0
18-08 10 :00	18-08 21 :30	11,5	$2,98.10^{-4}$
18-08 21 :30	19-08 06 :00	5,5	$2,88.10^{-05}$
1,4 GeV			
19-08 06 :00	21-08 14 :00	56	$2,55.10^{-04}$
21-08 14 :00	22-08 07 :00	17	$1,1.10^{-04}$
22-08 07 :00	22-08 12 :00	5	$6,18.10^{-04}$
22-08 12 :00	23-08 14 :00	26	$9,26.10^{-05}$

TAB. 3.2 – Valeurs moyennes de courant de protons sur la cible à différents intervalles de temps pendant la troisième phase d'irradiation.

Dans un premier temps, la cible a été irradiée avec un faisceau de protons d'énergie de 1 GeV puis de 1,4 GeV dans un second temps. L'intensité du faisceau de protons a varié au cours de cette phase d'irradiation comme le montre le tableau 3.2.

Ces trois phases nous ont permis de faire les mesures que nous présentons dans la prochaine section.

3.3.2 Bilan des mesures

Le tableau 3.3 récapitule les principaux paramètres des l'expérience IS419.

Paramètres	Phase 1	Phase 2	Phase 3
Energie	1.4 GeV	1.4 GeV	1-1.4 GeV
Durée du supercycle	16.8 s	16.8 s	14.4 s
Profil faisceau (Gaussien)	$\sigma_x = \sigma_y = 3.5$ mm		
Cible	Pb-Bi	Pb	Pb-Bi
Masse cible	547 g	515 g	547 g
Taille cible (cylindrique)	L = 20 cm, r = 1 cm		
Température cible	400 °C, 600°C	500 °C	250 °C à 600 °C
Température ligne de transfert	environ 300 °C		

TAB. 3.3 – Récapitulation des principaux paramètres de l'expérience.

Nous avons mesuré les activités des isotopes volatiles et gazeux avec les détecteurs germanium. Les cages de Faraday nous ont permis d'avoir accès à l'intensité du courant généré par ces isotopes. La variation de ces deux observables physiques en fonction de la température a finalement été étudiée pour une énergie de 1,4 GeV. Cette dernière étude fournit des informations sur l'influence de la température sur le relâchement d'éléments volatiles et gazeux dans une cible de spallation liquide. Nous présentons dans les tableaux 3.4 et 3.5 l'ensemble des isotopes mesurés avec leurs techniques de détection respectivement pour des faisceaux de protons d'énergie 1 et 1,4 GeV. Le tableau 3.6 donne la liste des isotopes mesurés pour étudier la dépendance du relâchement en fonction de la température.

3.3. CAMPAGNE DE MESURE

Cible : Pb-Bi liquide, $T_{cible} = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1\text{ GeV}$	
Détection en ligne par germanium	
Elément	Nombre de masse
Ar	41, 43, 44
Kr	77, 85, 87, 88, 89, 90
Xe	121, 123, 125
Hg	186, 188, 190, 192, 193, 195, 197, 203, 205, 206
At	204, 208, 210
Détection hors ligne par germanium	
Ar	41
Kr	75, 76, 77, 79, 85, 87, 88
Br	80
Cd	105, 107, 111, 115
Xe	119, 120, 121, 122, 123, 125, 127, 129, 131, 133, 135
I	124, 126, 128, 130
Hg	189, 190, 191, 192, 193, 195, 197, 199, 203, 205
At	201, 202, 203, 204, 206, 207, 208, 209, 210

TAB. 3.4 – Liste des isotopes mesurés avec une cible de Pb-Bi liquide portée à $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et avec un faisceau de protons à 1 GeV .

Cible : Pb-Bi liquide, $T_{cible} = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$	
Détection en ligne par germanium	
Elément	Nombre de masse
Ne	23, 24
Ar	44
Kr	81, 88, 89, 90
Xe	120, 121, 122, 125
Hg	184, 186, 188, 190, 192, 193, 195, 203, 205, 206
At	204, 208, 209, 210
Détection hors ligne par germanium	
Kr	80, 84
Br	80
Cd	105, 111
Xe	122, 123, 125, 127, 129, 131, 133, 135
I	124, 126, 128
Hg	189, 190, 191, 192, 193, 195, 197, 199, 203, 205
At	204, 205, 206, 207, 208, 209, 210, 211
Détection en ligne par cage de Faraday	
He	4
Kr	80, 84
Xe	124
Hg	194, 196

TAB. 3.5 – Liste des isotopes mesurés avec une cible de Pb-Bi liquide portée à $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et avec un faisceau de protons à $1,4\text{ GeV}$.

$E_P = 1,4 \text{ GeV}$	
Détection en ligne par cage de Faraday, Cible : Pb liquide	
$T_{cible} = 520 \text{ }^\circ\text{C}$,	
Elément	Nombre de masse
He	4
Détection hors ligne par germanium, Cible : Pb-Bi liquide	
$T_{cible} = 500 \text{ }^\circ\text{C}$	
Br	80
Cd	111
Xe	123
Hg	203
At	204, 209
$T_{cible} = 400 \text{ }^\circ\text{C}$	
Br	80
Cd	111
Xe	123
Hg	203
At	204, 209, 210
$T_{cible} = 300 \text{ }^\circ\text{C}$	
Br	80
Cd	111
Xe	123
Hg	203
At	208, 209, 210
$T_{cible} = 250 \text{ }^\circ\text{C}$	
Ne	24
Kr	87
Cd	111
Xe	123
Hg	190, 203
At	209

TAB. 3.6 – Liste des isotopes mesurés pour différentes températures de la cible.

Chapitre 4

Analyse des données expérimentales

Le dispositif expérimental et la procédure de détection décrits dans le chapitre précédent, nous ont permis de réaliser des mesures pour plusieurs isotopes gazeux et volatiles. La figure 4.1 donne une vue schématique du dispositif montrant l'emplacement des cages de Faraday ayant servi à déterminer les efficacités d'ionisation et de transmission. Les deux premières sections de ce chapitre sont consacrées à la détermination de ces efficacités. Les deux suivantes présentent l'étalonnage des détecteurs germanium ainsi que l'étude du bruit de fond. La dernière section détaille le calcul de l'activité au dessus de la surface libre à partir de l'activité mesurée.

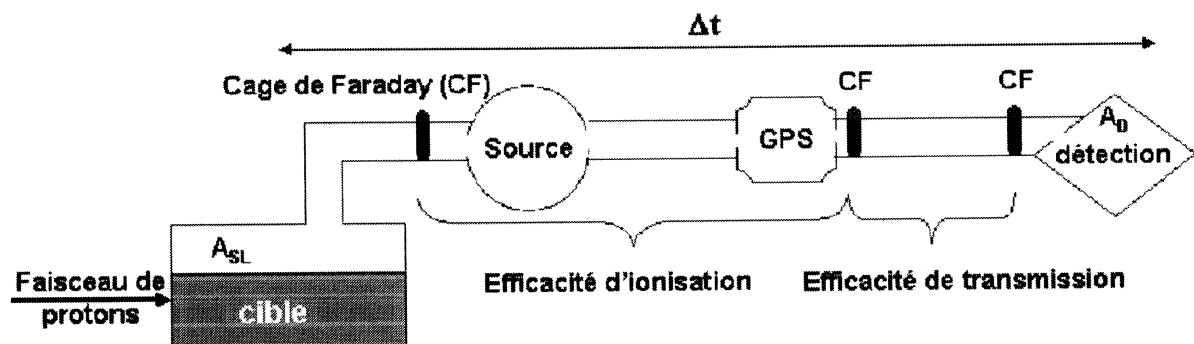


FIG. 4.1 – Vue schématique du dispositif expérimental avec une mise en évidence de la position des cages de Faraday ayant servi à déterminer les efficacités d'ionisation et de transmission.

4.1 Efficacité d'ionisation

L'efficacité d'ionisation de la source à plasma mesure sa capacité à produire des faisceaux d'ions et d'en assurer une extraction rapide et sélective. Cette efficacité dépend principalement du champ magnétique appliqué et des potentiels aux anodes. Afin d'optimiser l'efficacité de la source, nous avons réalisé des mesures en introduisant un débit constant de gaz (constitué de He/Ar/Ne/Kr/Xe) dans la source d'ionisation.

Nous avons cherché, dans un premier temps, à déterminer la valeur de l'intensité du champ magnétique qui maximise le flux de gaz en sortie de la source.

Pour cela, nous avons mesuré avec une cage de Faraday située à la sortie de la source (cf. 4.1), la quantité d'ions de xénon produits en fonction du courant appliqué. Les résultats obtenus sont montrés sur la figure 4.2.

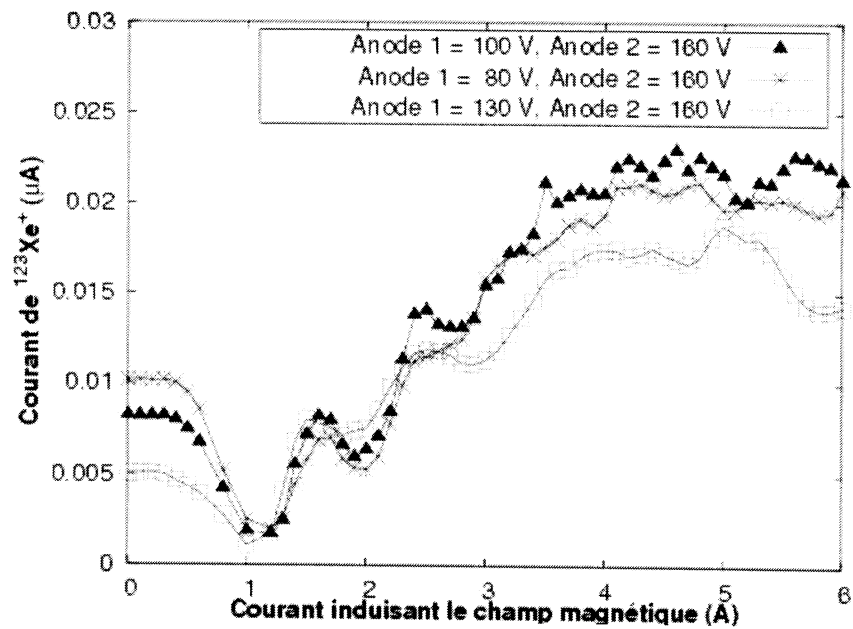


FIG. 4.2 – Courant de $^{132}\text{Xe}^+$ mesuré en fonction du courant appliqué induisant le champ magnétique à l'intérieur de la source, pour trois valeurs de potentiel à l'anode 1.

L'intensité maximale de courant de xénon est obtenue lorsque le courant appliqué induisant le champ magnétique à l'intérieur de la source est de l'ordre de 4,2 A. Autour de cette valeur, le courant détecté par la cage de Faraday est relativement stable. Ceci permet

4.1. EFFICACITÉ D'IONISATION

de nous affranchir d'une légère variation du champs magnétique en cours d'expérience.

L'étape suivante consiste à trouver la valeur optimale de la tension à l'anode 1. Pour cela, les courants d'ions des différents éléments présents dans le gaz sont mesurés avec une tension fixe à l'anode 2 (160 V) et une tension variable à l'anode 1 (de 0 à 180 V). Le courant induisant le champ magnétique est fixé à 4,2 A (valeur choisie lors de l'étape précédente). La figure 4.3 montre les intensités de courant d'ions $^{132}\text{Xe}^+$, $^4\text{He}^+$, $^{40}\text{Ar}^+$ et $^{84}\text{Kr}^+$ en fonction de la tension appliquée à l'anode 1. Les courbes présentées sur cette figure sont obtenues pour différentes quantités de gaz introduites dans la source d'ionisation.

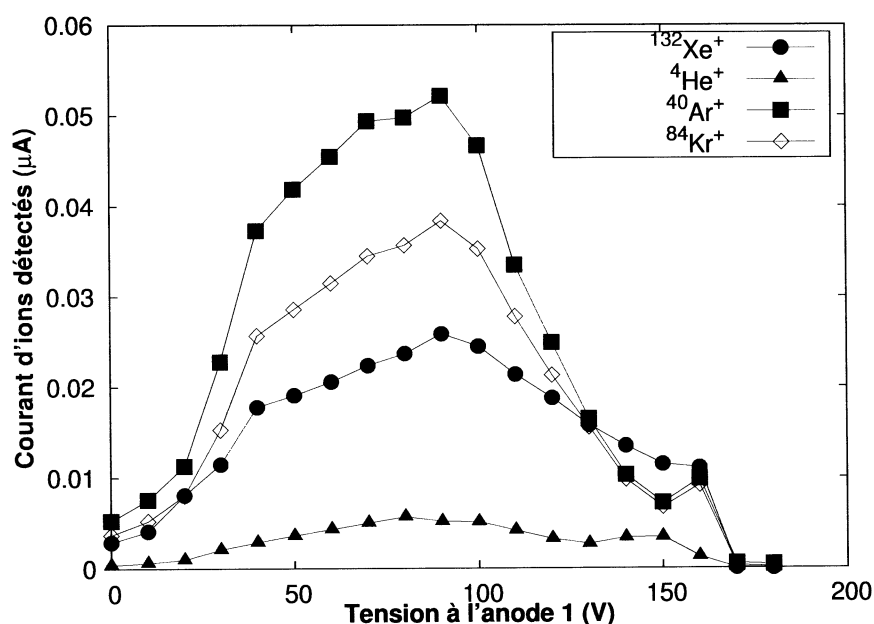


FIG. 4.3 – Courant mesuré pour différents isotopes en fonction du potentiel à l'anode 1.

Les courants détectés sont maximaux pour une tensions de 90 V comme on peut le voir sur la figure 4.3.

S'appuyant sur ces résultats, nous avons fixé pour la source d'ionisation des tensions de 90 et 160 V respectivement pour l'anode 1 et 2 ainsi qu'un courant induisant le champ magnétique de 4,2 A. Ces paramètres sont restés inchangés par la suite au cours de l'expérience.

Une fois la source d'ionisation réglée, les efficacités d'ionisation en fonction de la nature

CHAPITRE 4. ANALYSE DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

des isotopes sont déterminées en calculant le rapport des courant d'ions mesurés par des cages de Faraday situées respectivement après le séparateur et à l'entrée de la source d'ionisation (cf. figure 4.1). L'efficacité d'ionisation est, de ce fait, le produit de trois efficacités différentes : l'efficacité d'ionisation propre de la source, l'efficacité d'extraction et l'efficacité du séparateur. Durant l'expérience IS419, deux techniques de mesure ont été utilisées : la méthode des gaz rares et la méthode d'implantation.

Méthode des gaz rares

Comme précédemment, nous introduisons dans la source d'ions une quantité connue d'un mélange de gaz rares (He/Ar/Ne/Kr/Xe). Connaissant le débit d'entrée (en mbar l/s) et la proportion de chaque isotope dans le mélange, nous pouvons calculer le courant associé à chaque isotope en entrée de source en utilisant la formule de Knudsen (4.1) [72].

$$I_i = \frac{L}{c \cdot R \cdot T} \cdot N_{Av} \cdot e \cdot \frac{A_i}{100} \quad (4.1)$$

où I_i est le courant de l'isotope i introduit dans la source en ampère, L le débit du gaz en mbar l/s, c le facteur de conversion des mbar en atm, $c = 1013 \text{ mbar/atm}$, $R = 8,2057 \cdot 10^{-2} \text{ l atm mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ la constante universelle des gaz, T la température ambiante en Kelvin, N_{Av} le nombre d'Avagadro, e la charge de l'électron et A_i le pourcentage de l'isotope i dans le mélange.

Le tableau 4.1 présente les résultats obtenus pour l'efficacité d'ionisation par la méthode des gaz rares. Les résultats sont des valeurs moyennes prises à partir de plusieurs séries de mesures. Les erreurs sont estimées à partir de la dispersion des résultats autour des valeurs moyennes.

Elément	Efficacité d'ionisation (%)
He	$0,13 \pm 0,01$
Ne	$0,57 \pm 0,03$
Ar	$4,27 \pm 0,16$
Kr	$8,32 \pm 0,57$
Xe	$12,69 \pm 0,97$

TAB. 4.1 – Efficacités d'ionisation de la source à plasma obtenues par la méthode des gaz rares.

4.1. EFFICACITÉ D'IONISATION

Pour les autres éléments volatiles ou gazeux, nous disposons de données bibliographiques [73] et d'une seconde méthode appelée méthode d'implantation ou de dépôt.

Méthode d'implantation ou de dépôt

Elle consiste à déposer, en fines couches sur une mince feuille d'or d' 1 cm^2 , 37 nmol de mercure qui correspondent à un équivalent de $296\text{ nA}\cdot\text{h}$ de $^{202}\text{Hg}^+$. La feuille d'or est alors introduite dans le cylindre de la cible. La cible est chauffée pour permettre le relâchement complet du mercure vers la source d'ionisation. La mesure d'efficacité est effectuée de façon identique à la méthode des gaz rares en utilisant les mêmes cages de Faraday.

Le courant de $^{202}\text{Hg}^+$ mesuré en fonction de la température de la cible est représenté sur la figure 4.4. Nous observons sur cette figure un grand pic de relâchement correspondant à la température d'ébullition du mercure (357°C). Le courant total mesuré est de $66,9\text{ nA}\cdot\text{h}$ soit une efficacité d'ionisation de $22,6\%$ pour les isotopes de mercure. L'incertitude sur les mesures est estimée à 10% .

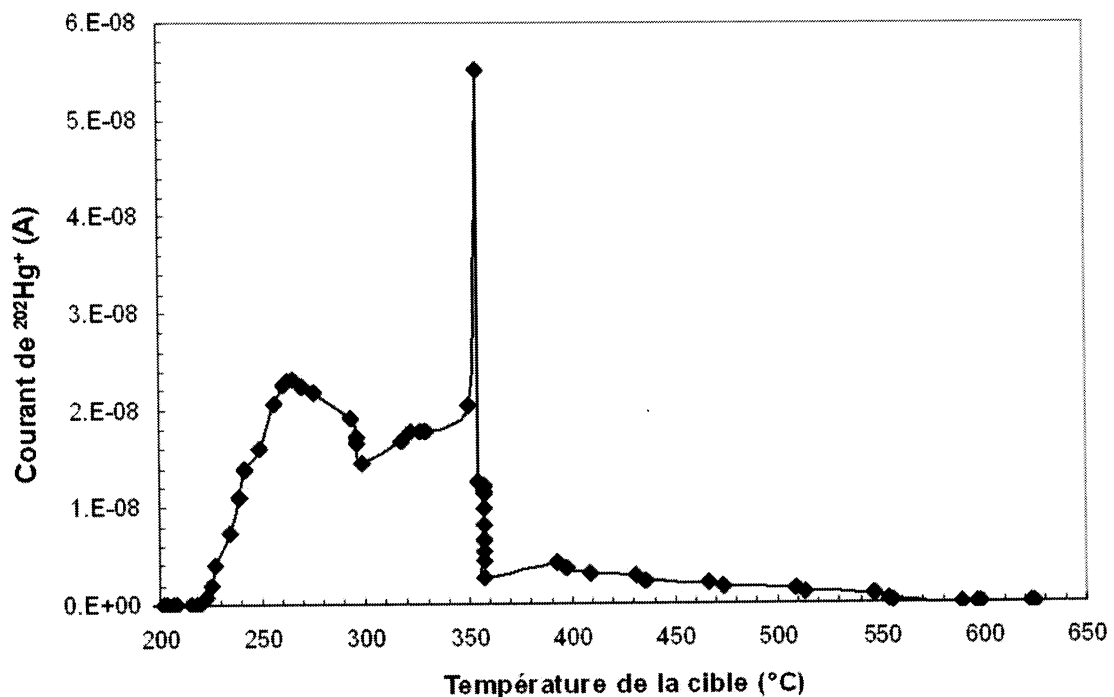


FIG. 4.4 – Courant de $^{202}\text{Hg}^+$ en fonction de la température de la cible.

CHAPITRE 4. ANALYSE DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

Nous avons utilisé la même procédure avec le thallium en déposant sur la feuille d'or 534 nA·h de $^{205}\text{Tl}^+$ correspondant à 28,2 nmol de thallium. Malheureusement, nous ne pouvons pas utiliser des températures supérieures à 600 °C car il y a alors un risque accru de rupture de la cible. Dans cette gamme de température, le thallium n'est pas complètement relâché. Donc seule l'efficacité du $^{202}\text{Hg}^+$ a pu être déterminée par cette méthode.

Estimation de l'efficacité d'ionisation pour les autres éléments volatiles

Les efficacités d'ionisation pour les isotopes d'iode, de brome, de cadmium et d'astate ne pouvant pas être mesurées, elles ont été estimées sur la base des efficacités d'ionisation déjà mesurées et présentées sur le tableau 4.2 et à partir des données bibliographiques [43].

Elément	Potentiel de première ionisation (eV)	Efficacité d'ionisation (%)
He	24,58	$0,13 \pm 0,01$
Ne	21,56	$0,57 \pm 0,03$
Ar	15,75	$4,27 \pm 0,16$
Kr	13,99	$8,32 \pm 0,57$
Xe	12,13	$12,69 \pm 0,97$
Hg	10,43	$22,6 \pm 2,3$

TAB. 4.2 – Efficacités d'ionisation de la source à plasma associées aux valeurs du potentiel de première ionisation des éléments mesurés

Ainsi, nous nous sommes référés à la courbe de l'efficacité d'ionisation des éléments en fonction du potentiel de première ionisation de la figure 4.5.

Au regard de cette figure, nous voyons que l'efficacité d'ionisation augmente lorsque le potentiel de première ionisation diminue. Des mesures précédentes de l'efficacité d'ionisation des sources de type FEBIAD [74] ont aussi montré que l'efficacité d'ionisation pour ce type de source est constante à partir des potentiels de première ionisation inférieurs ou égaux à 10 eV. Ces deux constatations, nous ont permis d'attribuer la même efficacité d'ionisation aux isotopes de mercure, d'iode, de cadmium et d'astate. Aussi, nous avons

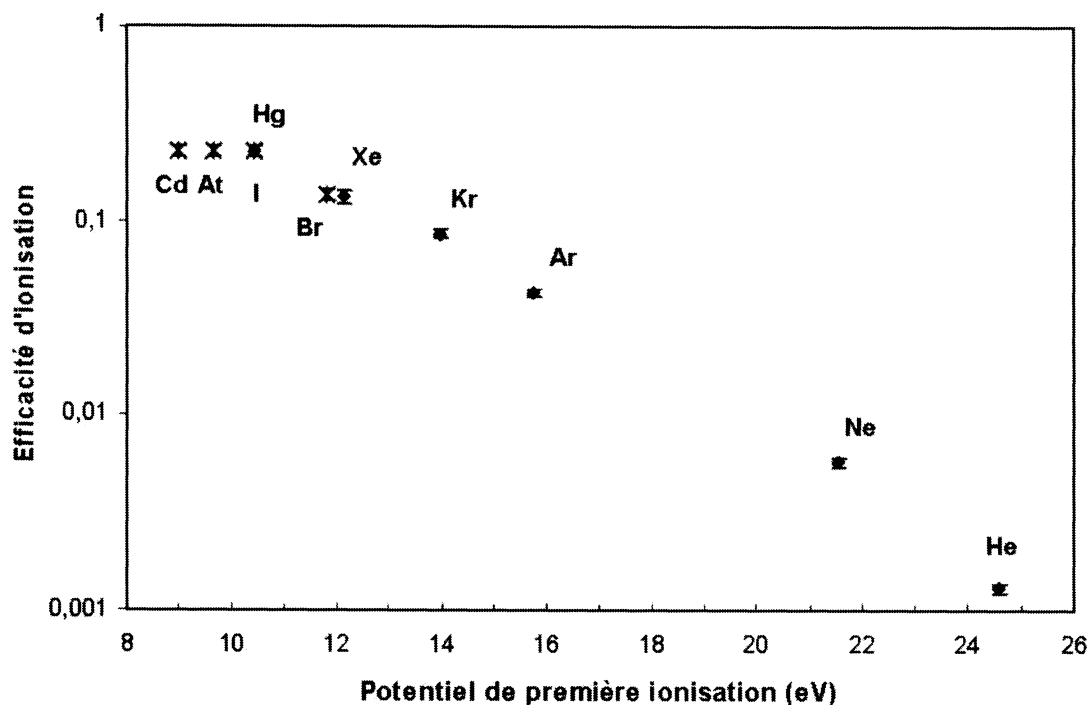


FIG. 4.5 – Efficacité d'ionisation en fonction du potentiel de première ionisation.

choisi la même valeur d'efficacité d'ionisation pour le xénon et le brome.

4.2 Efficacité de transmission

L'efficacité de transmission représente la capacité des lignes à transporter les faisceaux d'ions radioactifs jusqu'aux systèmes de détection. Elle est égale au rapport des courants mesurés par deux cages de Faraday, l'une placée auprès des détecteurs et l'autre située après le séparateur (cf. figure 4.1). Il convient de déterminer cette efficacité pour chaque ligne de détection : celle de la ligne centrale et celle de la ligne GLM.

La figure 4.6 présente les efficacités de transmission pour la ligne centrale en fonction du nombre de masse des isotopes pour les énergies de 1 et 1,4 GeV.

L'efficacité de transmission varie entre 70 % et 85 % ce qui montre que les faisceaux d'ions radioactifs sont relativement bien transmis aux détecteurs. Pour rappel, la ligne centrale a servi aux mesures en ligne et la ligne GLM aux mesures hors ligne.

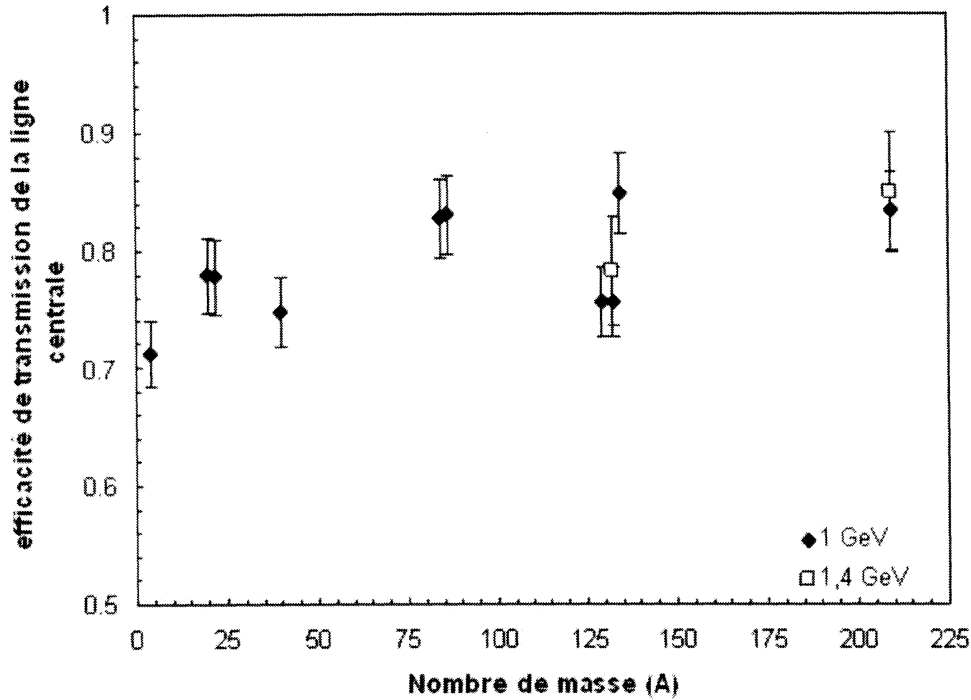


FIG. 4.6 – Efficacité de transmission de la ligne centrale en fonction de la masse atomique des isotopes.

Sur la figure 4.7 sont représentées les efficacités de transmission de la ligne GLM pour les énergies de 1 et 1,4 GeV.

Les efficacités de transmission mesurées pour la ligne GLM sont comprises entre 60 et 75 %. Les incertitudes expérimentales sur les efficacités de transmission des deux lignes sont calculées de la même manière que celles des efficacités d'ionisation en considérant la dispersion des résultats autour des valeurs moyennes. Pour la ligne GLM, les incertitudes expérimentales sont de l'ordre de 5 % des valeurs mesurées (sauf pour l'hélium de l'ordre de 7 %). Pour la ligne centrale, elles sont estimées à 4 % des résultats des mesures.

La transmission de la ligne centrale est plus élevée que celle de la ligne GLM. Cette meilleure transmission sur la ligne centrale peut s'expliquer par une meilleure focalisation du faisceau d'ions sur cette ligne.

Les valeurs d'efficacité obtenues à la fois sur la ligne centrale et sur la ligne GLM, à 1 et 1,4 GeV, varient aussi au cours du temps. Elles ont donc été mesurées régulièrement au cours de l'expérience pour être ensuite utilisées dans l'extraction des résultats.

4.3. ETALONNAGE DES DÉTECTEURS GERMANIUM

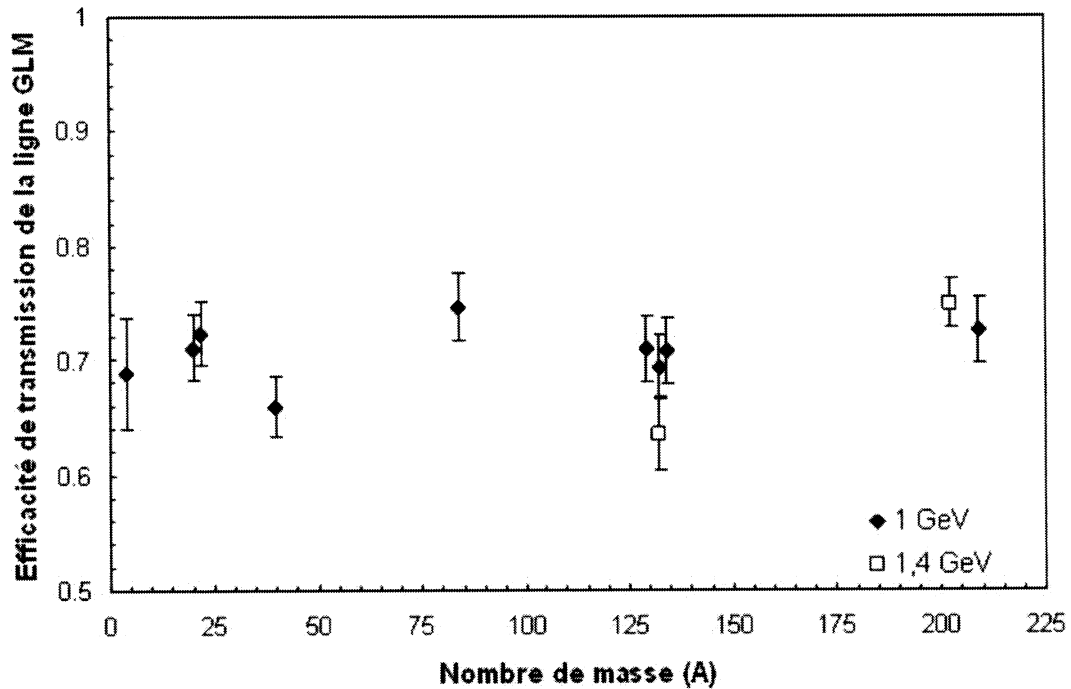


FIG. 4.7 – Efficacité de transmission de la ligne GLM en fonction de la masse atomique des isotopes.

A ce stade, nous avons obtenu les efficacités nécessaires pour corriger les valeurs des courants d'ions radioactifs qui ont successivement traversés la source d'ionisation, le séparateur de masse et les lignes de transmission.

4.3 Etalonnage des détecteurs germanium

Les détecteurs germanium ont été utilisés pour mesurer hors ligne (avec les feuilles de collection en aluminium) et en ligne (détection effectuée sur la bande électromagnétique de transport) l'activité des éléments gazeux ou volatiles. Ce sont des détecteurs à haute résolution intrinsèque et de faibles impuretés.

Pour obtenir une identification des radioisotopes et une mesure correcte de leur activité, les détecteurs doivent être étalonnés aussi bien en énergie qu'en efficacité. Des sources standards d'activités et de spectres connus sont utilisées. Elles sont listées avec les valeurs des principales raies γ dans le tableau 4.3.

CHAPITRE 4. ANALYSE DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

Source	Energie des rayons γ (keV)
^{22}Na	1275
^{24}Na	1369, 2754
^{54}Mn	835
^{57}Co	122, 137
^{60}Co	1332, 1173
^{133}Ba	356, 81, 303, 384, 276
^{152}Eu	122, 344, 1408, 964, 1112, 779, 1086, 245
^{241}Am	60

TAB. 4.3 – Liste des sources utilisées pour l'étalonnage des détecteurs germanium.

Les figures 4.8 et 4.9 montrent respectivement les courbes d'étalonnage en énergie obtenues pour le détecteur hors ligne et pour le détecteur en ligne.

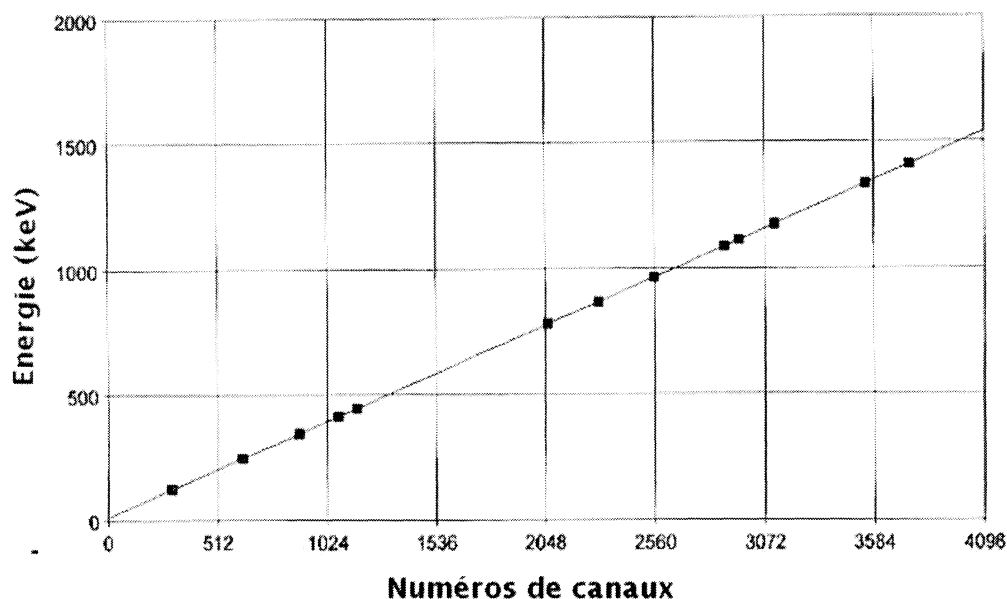


FIG. 4.8 – Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur germanium hors ligne.

Cet étalonnage permet d'attribuer à chaque rayonnement γ détecté son énergie correspondante.

Après l'étalonnage en énergie, il faut déterminer l'efficacité de détection en fonction du rayonnement γ détecté.

Les efficacités des détecteurs germanium utilisés pour les mesures hors et en ligne sont aussi montrées respectivement sur les figure 4.10 et 4.11.

4.3. ETALONNAGE DES DÉTECTEURS GERMANIUM

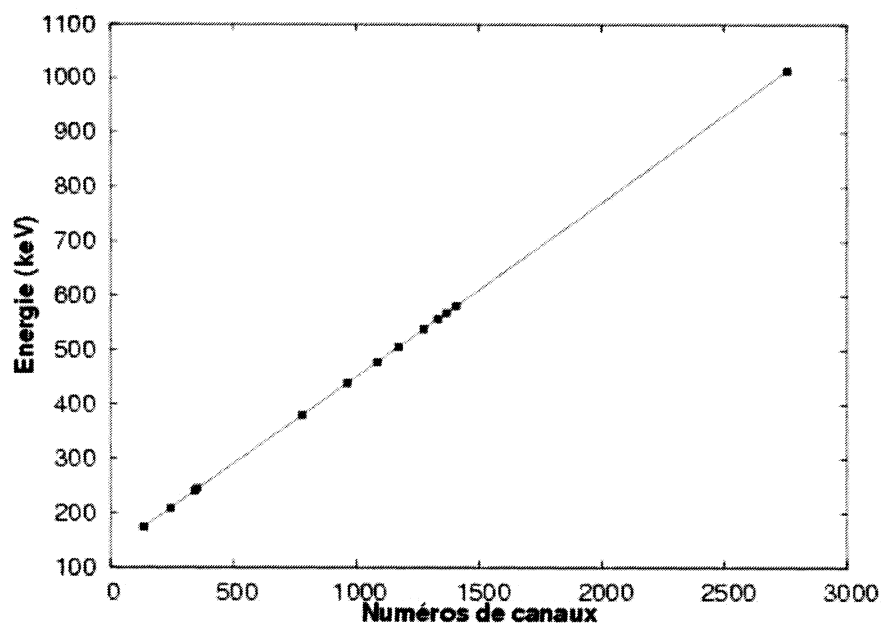


FIG. 4.9 – Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur germanium en ligne.

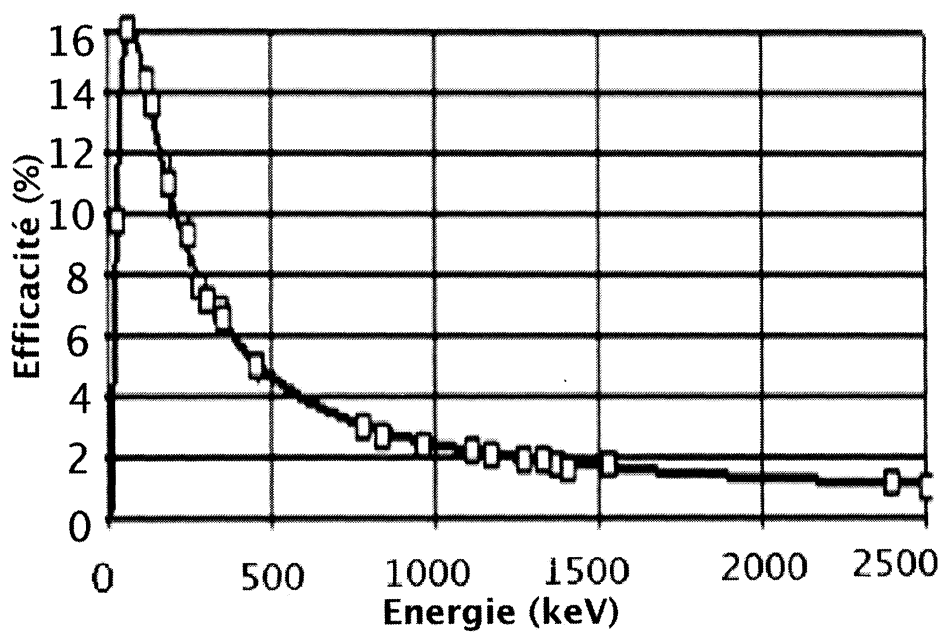


FIG. 4.10 – Efficacité du détecteur germanium hors ligne en fonction de l'énergie.

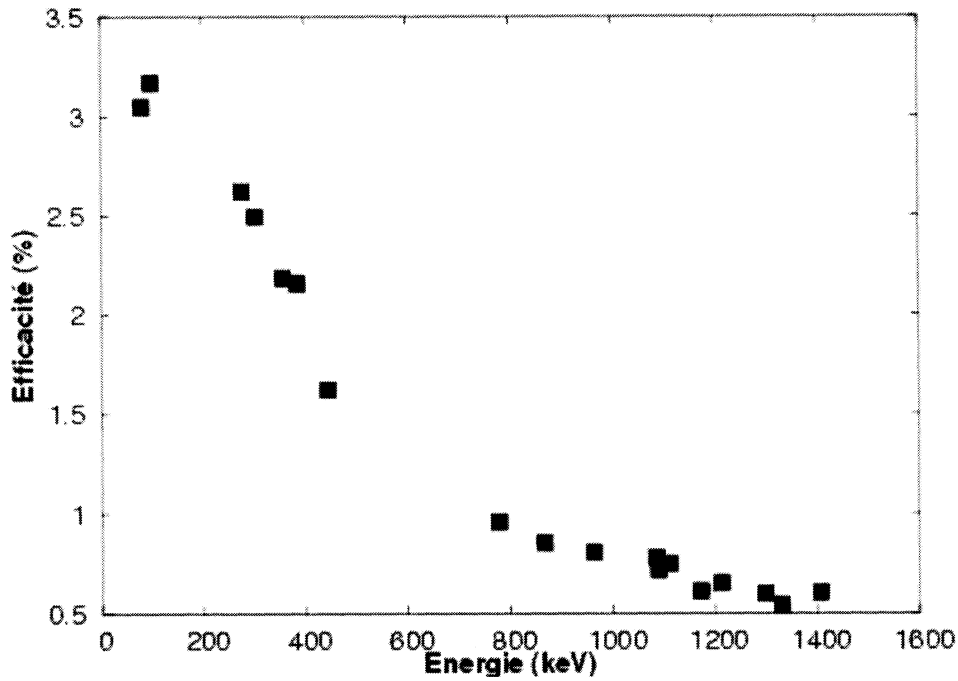


FIG. 4.11 – Efficacité du détecteur germanium en ligne en fonction de l'énergie.

Il nous est donc maintenant possible d'identifier et de quantifier de manière correcte les raies γ détectées. Dans la section suivante, nous nous intéressons à l'étude du bruit de fond.

4.4 Détermination du bruit de fond

4.4.1 Détecteurs germanium

Puisque nos détecteurs germanium sont isolés du faisceau d'ions radioactifs, la seule source de bruit de fond à laquelle ils sont soumis est la radioactivité naturelle. Le logiciel que nous avons utilisé (GENIE 2000) intègre une procédure de soustraction de bruit de fond préalablement mesuré. Cette procédure est appliquée dans notre schéma d'analyse.

4.4.2 Cages de Faraday

Les cages de Faraday nous ont permis de mesurer le courant des isotopes stables ou à durée de vie très élevée. Ces mesures ne sont pas réalisables avec un détecteur germanium, ce qui montre la complémentarité des deux techniques. Nous avons évalué le bruit de fond afin d'estimer sa contribution sur les mesures réalisées.

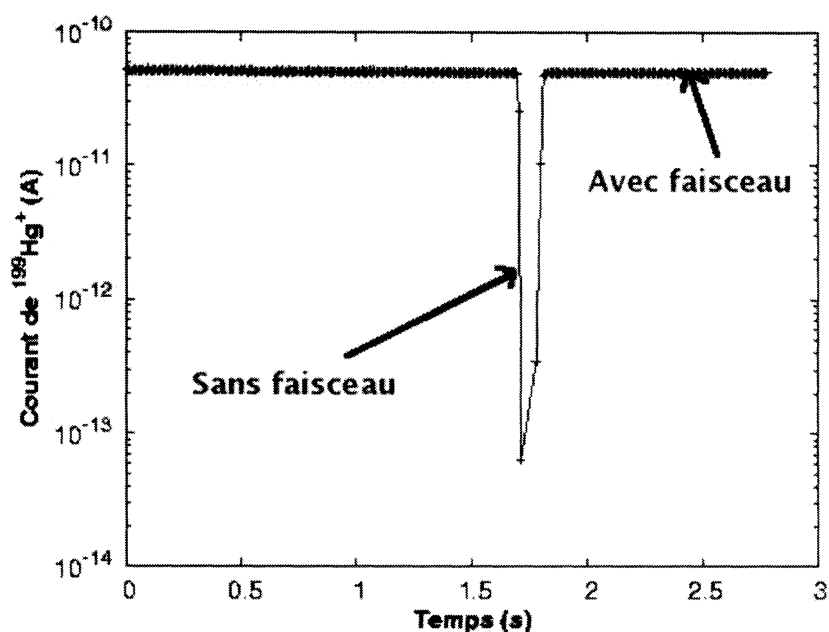


FIG. 4.12 – Mesure du bruit de fond.

Pour ce faire, nous avons enregistré avec une cage de Faraday positionnée à l'extrémité de la ligne centrale pendant quelques secondes le courant d'ions de $^{199}\text{Hg}^+$ produit en présence et en absence de faisceau d'ions sur la ligne de transmission. La figure 4.12 donne l'intensité du courant de $^{199}\text{Hg}^+$ mesurée par la cage de Faraday. Sur la figure, nous voyons que lorsque le séparateur de masse n'envoie pas de faisceaux d'ions radioactifs sur la ligne de transmission, alors la mesure du courant d'ions devient très faible. Le courant mesuré en présence du faisceau d'ions radioactifs est supérieur de 3 ordres de grandeur au courant mesuré en l'absence de faisceaux.

La contribution du bruit de fond, dans les mesures faites avec les cages de Faraday, est par conséquent négligée dans l'extraction de nos résultats.

CHAPITRE 4. ANALYSE DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

A ce stade, nous pouvons calculer l'activité des radioisotopes au dessus de la surface libre.

4.5 Calcul de l'activité au dessus de la surface libre

Pour obtenir les taux de production des isotopes au dessus de la surface libre de la cible, on définit l'efficacité totale ε_T comme le produit des efficacités d'ionisation, de transmission et de détection :

$$\varepsilon_T = \varepsilon_{ion} \cdot \varepsilon_{trans} \cdot \varepsilon_{det} \quad (4.2)$$

avec ε_{ion} , ε_{trans} , ε_{det} les efficacités respectives de la source d'ionisation, de la ligne de transmission et du détecteur utilisé. L'efficacité totale ε_T dépend de l'isotope et des conditions expérimentales.

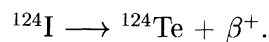
Il reste maintenant à corriger les pertes par décroissances radioactives pendant le temps Δt . Cet intervalle de temps correspond au temps de parcours depuis la source jusqu'à l'appareil de détection. Sa durée est fixée essentiellement par le temps de collection et de mesure des isotopes radioactifs.

Le calcul de l'activité d'un isotope au dessus de la surface libre de la cible, A_{SL} , à partir de celle détectée, A_D , se fait en prenant en compte l'efficacité totale ε_T préalablement déterminée mais aussi les schémas de décroissance radioactive. Pour cela plusieurs cas doivent être considérés en fonction des modes de décroissance.

Première possibilité

L'isotope détecté décroît par émission β vers son noyau fils ou il fait une transition isomérique à partir de son état métastable vers son état fondamental stable.

Nous pouvons citer pour le premier cas, l'exemple de l'isotope ^{124}I dont l'équation et le schéma de désintégration (voir figure 4.13) sont montrés ci-dessous :



Pour le second cas, nous avons l'exemple de l'isotope ^{131}Xe qui passe de son état isomérique à son état fondamental stable par transition isomérique suivant l'équation :

4.5. CALCUL DE L'ACTIVITÉ AU DESSUS DE LA SURFACE LIBRE

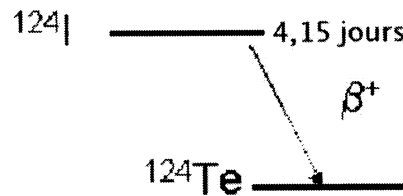
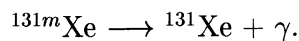


FIG. 4.13 – Schéma de désintégration du ^{124}I



Son schéma de désintégration est représenté sur la figure 4.14 :

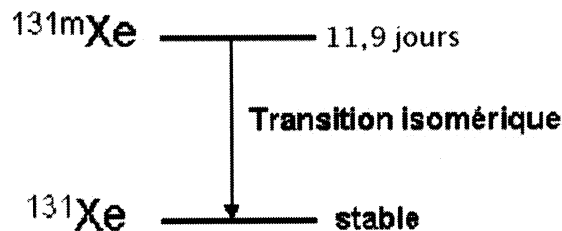


FIG. 4.14 – Schéma de désintégration du ^{131}Xe

Dans ces cas, la relation entre les deux activités s'écrit par :

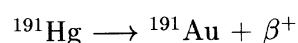
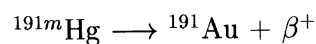
$$A_{SL} = \frac{A_D}{\varepsilon_T} \cdot e^{\lambda \Delta t} \quad (4.3)$$

avec λ la constante de désintégration de l'isotope mesuré.

Deuxième possibilité

L'isotope a un état fondamental et un état métastable. C'est le cas par exemple de l'isotope ^{191}Hg qui peut décroître par émission β soit à partir de son état fondamental ou soit à partir de son état métastable.

Les équations et les schémas de décroissance (voir figure 4.15) sont illustrés par :



Posons respectivement $^m\lambda$ et $^g\lambda$ les constantes radioactives de l'isotope dans son état métastable et dans son état fondamental. L'activité totale au dessus de la surface libre

CHAPITRE 4. ANALYSE DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

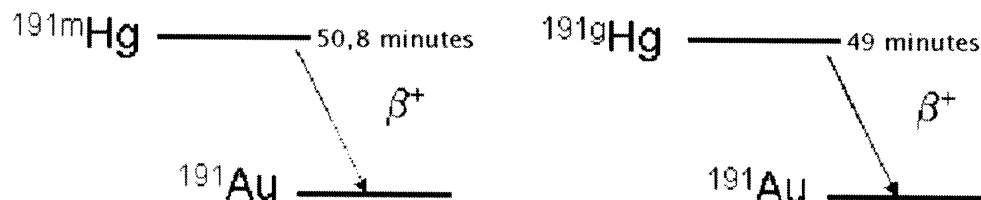


FIG. 4.15 – Schéma de désintégration du ^{191}Hg

A_{SL} s'écrit en fonction des activités détectées de l'isotope dans son état fondamental (gA_D) et dans son état métastable (mA_D) :

$$A_{SL} = \frac{^gA_D}{^g\varepsilon_T} \cdot e^{^g\lambda\Delta t} + \frac{^mA_D}{^m\varepsilon_T} \cdot e^{^m\lambda\Delta t} \quad (4.4)$$

avec $^g\varepsilon_T$ et $^m\varepsilon_T$ les facteurs correctifs respectifs pour l'isotope à l'état fondamental et à l'état métastable.

Troisième possibilité

L'isotope décroît à partir de son état métastable par une transition isomérique vers son état fondamental. De son état fondamental, il fait une décroissance β vers son noyau fils. Nous pouvons citer comme exemple l'isotope ^{79}Kr dont les équations et les schémas de désintégration (cf. figure 4.16) sont donnés par :

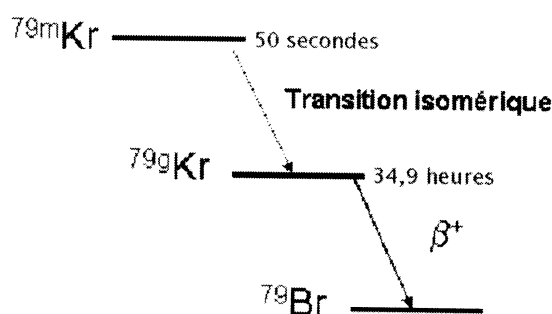
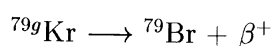
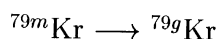


FIG. 4.16 – Schéma de désintégration du ^{79}Kr

La relation entre les activités au dessus de la surface libre de la cible et celle mesurée

4.5. CALCUL DE L'ACTIVITÉ AU DESSUS DE LA SURFACE LIBRE

est plus complexe. Pour ce faire, donnons les équations de décroissance à partir de l'état métastable et l'état fondamental :

$$d {}^m N = - {}^m \lambda {}^m N dt \quad (4.5)$$

et

$$d {}^g N = {}^m \lambda {}^m N dt - {}^g \lambda {}^g N dt \quad (4.6)$$

La résolution du système d'équations donne :

$${}^m A_{SL} = \frac{{}^m A_D}{{}^m \varepsilon_T} \cdot e^{- {}^m \lambda \Delta t} \quad (4.7)$$

et

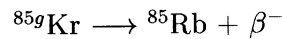
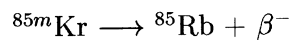
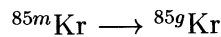
$${}^g A_{SL} = \frac{{}^g A_D}{{}^g \varepsilon_T} \cdot e^{- {}^g \lambda \Delta t} - \frac{{}^g \lambda}{{}^m \varepsilon_T ({}^g \lambda - {}^m \lambda)} {}^m A_D (e^{- {}^g \lambda \Delta t} - e^{- {}^m \lambda \Delta t}) \quad (4.8)$$

avec ${}^m A_{SL}$ et ${}^g A_{SL}$ les activités du métastable et du fondamental au dessus de la surface libre. L'activité totale est la somme de ces deux contributions :

$$A_{SL} = {}^m A_{SL} + {}^g A_{SL} \quad (4.9)$$

Dernière possibilité

Le dernier cas est celui d'un isotope qui peut faire une décroissance à partir de son état métastable de deux façons différentes par transition isomérique vers son état fondamental avec un rapport de branchement $RB_{m \rightarrow g}$ ou par décroissance β avec un rapport de branchement de $1 - RB_{m \rightarrow g}$. Ensuite de son état fondamental, l'isotope fait une décroissance β vers le noyau fils. C'est le cas des isotopes ${}^{85}\text{Kr}$ dont les équations et les schémas de décroissance (voir figure 4.17) sont montrés ci-dessous :



CHAPITRE 4. ANALYSE DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

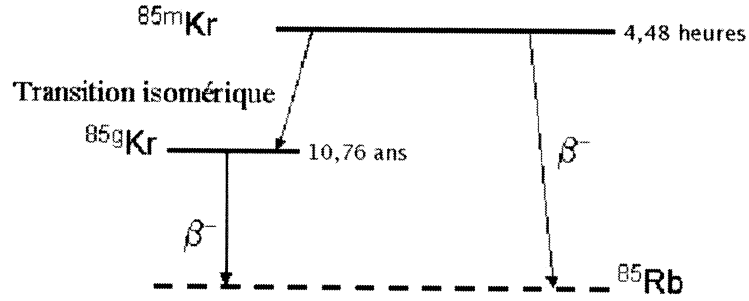


FIG. 4.17 – Schéma de désintégration du ^{85}Kr

Pour le métastable, nous avons

$$^m A_{SL} = \frac{^m A_D}{^m \varepsilon_T} \cdot e^{^m \lambda \Delta t} \quad (4.10)$$

et pour le fondamental,

$$^g A_{SL} = \frac{^g A_D}{^g \varepsilon_T} \cdot e^{^g \lambda \Delta t} - \frac{^g \lambda}{^m \varepsilon_T (^g \lambda - ^m \lambda)} RB_{m \rightarrow g} ^m A_D (e^{^g \lambda \Delta t} - e^{^m \lambda \Delta t}) \quad (4.11)$$

L'activité totale de l'isotope au dessus de la surface est :

$$A_{SL} = ^m A_{SL} + ^g A_{SL} \quad (4.12)$$

Dans le chapitre suivant, nous présentons les résultats obtenus en appliquant la procédure d'analyse de données que nous avons explicitée dans ce chapitre.

Chapitre 5

Résultats expérimentaux

Durant l'expérience IS419, nous avons mesuré les taux de production au dessus de la surface libre des cibles au Pb et Pb-Bi liquides des isotopes d'He, Ne, Ar, Kr, Br, Cd, I, Xe, Hg, et At à des températures variant de 250 ° à 600 °C. Les cibles ont été irradiées par des faisceaux de protons d'énergie 1 et 1,4 GeV¹. Le choix de ces éléments relève de plusieurs facteurs comme la volatilité induisant une augmentation de pression au dessus de la surface libre, les dommages induits sur les matériaux et la radiotoxicité.

Ce chapitre est divisé en trois sections. La première section est consacrée aux résultats des mesures de la dépendance du relâchement en fonction de la température. Dans la seconde section, nous présentons l'étude expérimentale sur les fonctions de relâchement et enfin dans la dernière section, nous exposons tous les résultats sur les taux de production au dessus de la surface libre de la cible au Pb ou Pb-Bi liquide des isotopes volatiles produits par irradiation des cibles par des faisceaux de protons énergétiques.

5.1 Dépendance en température des taux de relâchement

Ces mesures permettent d'estimer la quantité d'ions relâchés en fonction de la température. Cette étude est intéressante, par exemple, en cas d'accident où des températures

¹L'ensemble des résultats que j'ai obtenu en analysant les mesures accumulées au cours de l'expérience IS419 sont regroupés sous forme de tableaux dans l'Annexe B

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

très élevées peuvent être atteintes. Ces températures très élevées favorisent le relâchement d'isotopes moins volatiles à partir de la cible.

Deux techniques de mesures ont été utilisées :

- des mesures hors lignes par γ -spectroscopie en collectant les isotopes sur des feuilles d'aluminium pour des températures de la cible variant de 250 ° à 600 °C
- des mesures en ligne avec des cages de Faraday pour les isotopes stables aux températures de 500 ° et 650 °C.

L'ensemble des mesures ont été faites avec des faisceaux de protons d'énergie 1,4 GeV.

5.1.1 Mesures par γ -spectroscopie

Nous avons mesuré par γ -spectroscopie le relâchement des isotopes ^{123}Xe , ^{111m}Cd , ^{203}Hg et ^{209}At pour différentes températures de la cible au Pb-Bi liquide. Les résultats des mesures sont représentés sur la figure 5.1. Le xénon a été choisi car c'est un gaz rare. La production de gaz rares influe de façon non négligeable sur l'augmentation de pression dans le vase d'expansion. Le mercure est à la fois radioactif et radiotoxique. L'astate a été choisie car elle décroît sur du polonium hautement radiotoxique. Les isotopes de ces éléments ont été sélectionnés en fonction de leur durée de vie compatible avec la technique de spectroscopie gamma.

Sur la figure 5.1, nous voyons que plus la température augmente plus le relâchement des isotopes augmente aussi. L'augmentation est plus rapide pour les isotopes de Cd et d'At dont les diffusions sont très faibles au début des mesures. A partir de 500 °C, le relâchement de tous les isotopes évolue lentement et tend vers une saturation. Ceci nous amène à supposer qu'ils sont entièrement relâchés hors de la cible à cette température. Cette hypothèse reste à confirmer ou à infirmer par l'analyse post irradiation de la cible au PSI en Suisse dans le courant de l'année 2008.

Cependant, le xénon qui est un gaz rare devrait présenter un relâchement constant en fonction de la température. Les résultats sur le xénon contrastent donc avec le relâchement rapide et complet que l'on s'attendait à obtenir dès le début des mesures. C'est pourquoi des mesures supplémentaires avec les cages de Faraday ont été effectuées sur d'autres gaz rares pour essayer de comprendre cette anomalie sur la dépendance en température du

5.1. DÉPENDANCE EN TEMPÉRATURE DES TAUX DE RELÂCHEMENT

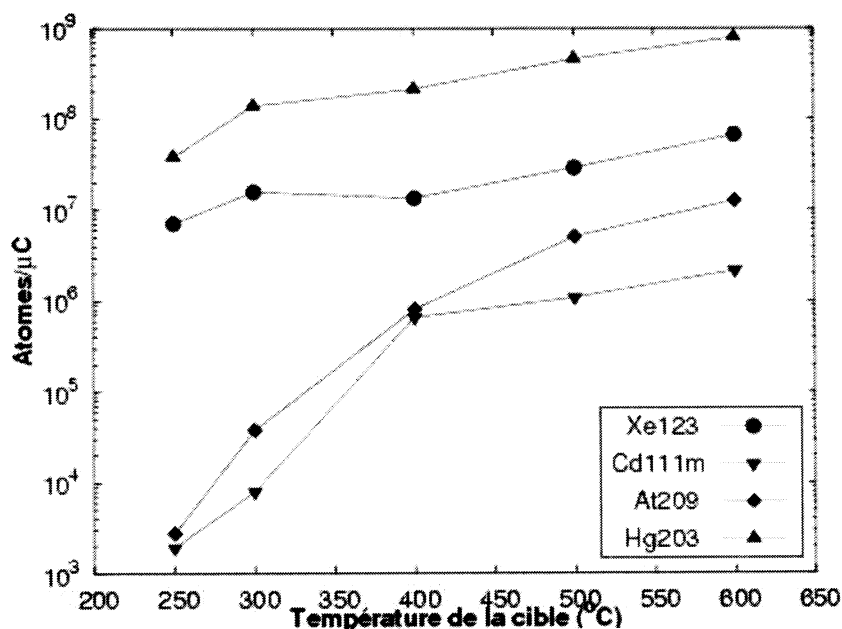


FIG. 5.1 – Dépendance en température des taux de relâchement des isotopes ^{123}Xe , ^{111m}Cd , $^{209,210}\text{At}$ et ^{203}Hg mesurés hors ligne par γ -spectroscopie.

relâchement du xénon.

5.1.2 Mesures par cages de Faraday

Pour essayer de mieux comprendre le cas du xénon, des mesures additionnelles ont été réalisées avec le ^{82}Kr à l'aide d'une cage de Faraday pour des températures de la cible fixées à 500 °C puis à 650 °C. Dans le même temps, nous avons mesuré le ^{204}Hg pour confirmer son complet relâchement à partir de 500 °C. Le choix de ces deux isotopes stables est compatible avec la technique de mesure de courant avec une cage de Faraday.

Pour faire ces mesures, la cible au Pb-Bi reçoit une série de vingt paquets successifs. Chaque paquet contient environ $5 \cdot 10^{12}$ protons. Ensuite, les mesures sont effectuées pendant près d'une heure durant laquelle aucune nouvelle impulsion n'est émise. Ce temps de mesure relativement long s'explique principalement par la nature de la cible épaisse et liquide où la diffusion dans la cible est relativement lente.

Les résultats des mesures pour le krypton et le mercure sont montrés respectivement sur les figures 5.2 et 5.3.

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

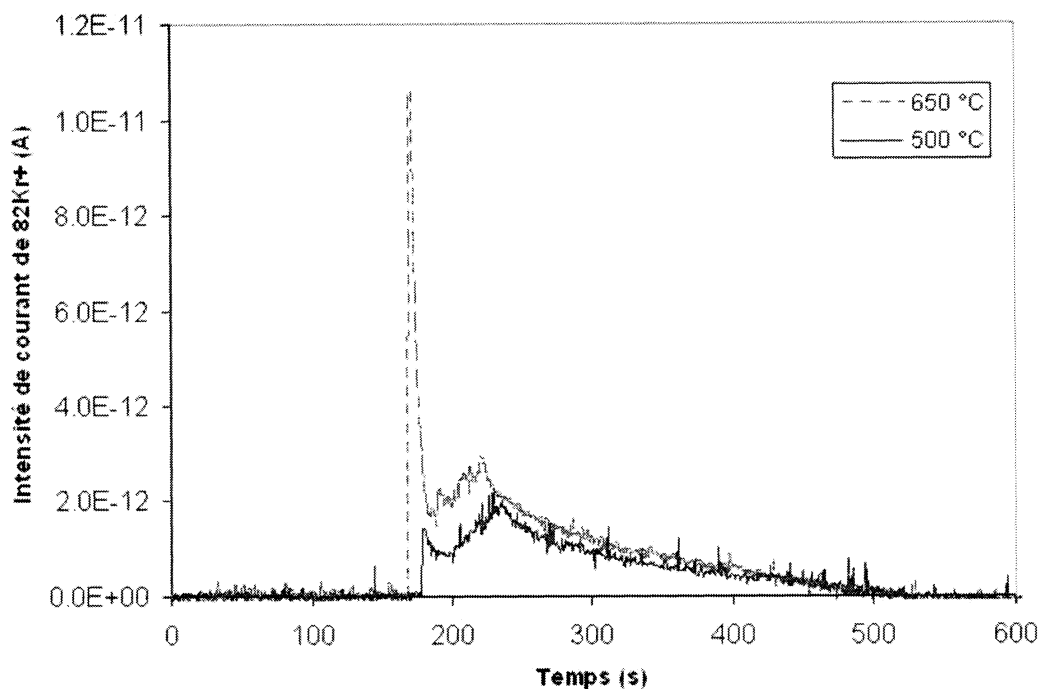


FIG. 5.2 – Courant de $^{82}\text{Kr}^+$ mesuré en fonction du temps aux températures de la cible 500 °C et 650 °C par la cage de Faraday.

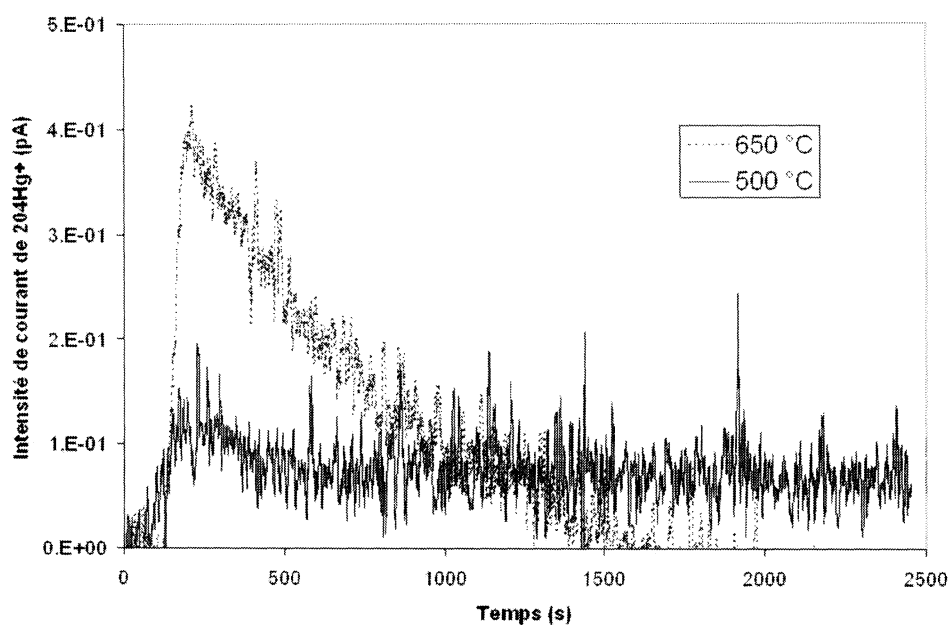


FIG. 5.3 – Courant de $^{204}\text{Hg}^+$ mesuré en fonction du temps aux températures de la cible 500 °C et 650 °C par la cage de Faraday.

5.2. FONCTION DE RELÂCHEMENT

Le krypton garde le même profil de relâchement lorsque la température de la cible varie de 500 ° à 650 °C. Cependant, nous notons une plus grande diffusion mais très brève à 650 °C à l'instant où le faisceau de protons arrive sur la cible. En calculant la production intégrale au cours de ces deux mesures, nous trouvons qu'elle est respectivement égale à $1,06 \cdot 10^8$ et $1,17 \cdot 10^8$ atomes/ μC à 500 °C et 650 °C. Donc le krypton comme tous les gaz rares produits dans la cible liquide est déjà totalement relâché à 500 °C.

Nous observons sur la figure 5.3 que le relâchement du ^{204}Hg est plus rapide à 650 °C qu'à 500 °C. Malgré des vitesses de relâchement différentes, les productions intégrales du mercure dans ces deux mesures donnent des valeurs comparables. Elles sont respectivement égales à $6,04 \cdot 10^7$ atomes/ μC et $6,47 \cdot 10^7$ atomes/ μC aux températures de mesures fixées à 500 °C et 650 °C. Le mercure est aussi totalement relâché à 500 °C, seule sa vitesse de relâchement entre les deux températures change.

Sur les figures 5.2 et 5.3, nous constatons que le krypton diffuse complètement hors de la cible portée à 500 °C au bout de cinq à six minutes après l'arrivée du faisceau de protons sur la cible alors qu'il faut pour le mercure plus d'une demi-heure pour être libéré entièrement hors de la cible à la même température. Les courbes en fonction du temps de mesure contenues dans les figures 5.2 et 5.3 sont caractéristiques des éléments Kr et Hg. On les appelle fonctions de relâchement, la section suivante est consacrée à leur étude expérimentale.

5.2 Fonction de relâchement

Nous avons vu dans le chapitre 2, section 2.2, que le relâchement des produits volatiles dans une cible de spallation liquide est un processus complexe à cause des nombreux phénomènes physiques (diffusion, effusion et désorption) et chimiques (formation d'oxydes, réactions secondaires) impliqués dans le relâchement.

Nous avons mesuré avec des cages de Faraday couplées à un dispositif d'acquisition développé au PSI, les fonctions de relâchement des isotopes d'hélium, de krypton, de xénon et de mercure. Ces fonctions sont représentées sur la figure 5.4. Les mesures ont été réalisées avec des faisceaux de protons d'énergie 1,4 GeV sur une cible de Pb liquide

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

portée à la température de 400 °C.

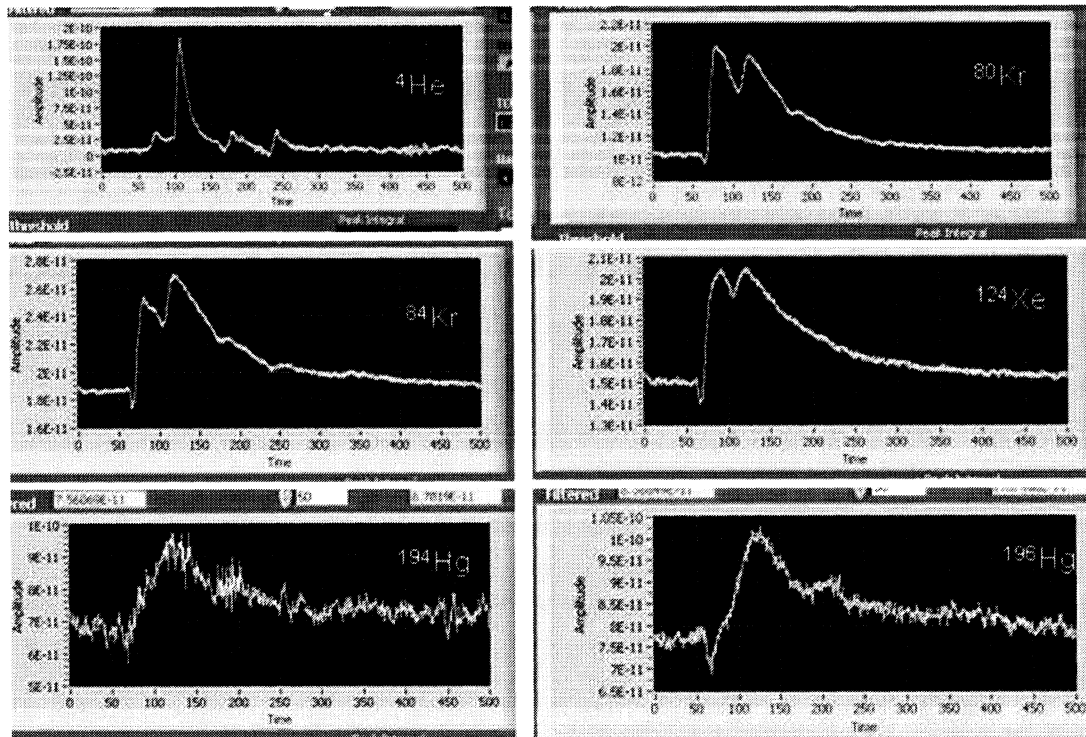


FIG. 5.4 – Fonctions de relâchement mesurées en ligne par une cage de Faraday. Ces mesures ont été réalisées avec une cible de Pb liquide à la température de 600 °C et irradiée avec un faisceau de protons d'énergie 1,4 GeV.

Les mesures sont effectuées quelques secondes après l'arrivée du faisceau de protons sur la cible. Sur la courbe de l'hélium, nous voyons un début de relâchement nul correspondant au temps avant l'arrivée du faisceau de protons et au temps de transport de l'hélium jusqu'à la cage de Faraday. Ensuite, nous avons un pic de production que l'on attribue à l'arrivée du faisceau de protons. Après le pic, la production retombe pour s'annuler lentement sous la forme d'une queue de distribution.

Pour les autres courbes, l'allure est différente. Ces courbes commencent par une production non nulle avant l'arrivée du faisceau de protons sur la cible. Cette production non nulle correspond à la queue de distribution du précédent relâchement. En effet, les mesures sont réalisées pendant la durée d'un supercycle de 14,4 secondes qui ne suffit pas pour suivre entièrement le relâchement des isotopes tels que le mercure, le krypton ou le

5.3. MESURES DES TAUX DE PRODUCTION

xénon. Il faut plusieurs minutes pour mesurer la totalité de la fonction de relâchement dans le cas des cibles liquides et épaisses (cf. 5.1.2).

Dans les courbes des isotopes de krypton, de xénon et de mercure, la diminution de la production est moins brusque que celle de l'hélium puisque pour ces isotopes, les parents peuvent contribuer au relâchement par décroissance radioactive. Les courbes du xénon et du krypton présentent un creux dû aux fluctuations de la source d'ionisation causées par le caractère pulsé du faisceau de protons. L'intégration de ces courbes en fonction du temps donne les quantités produites en atomes par μC présentées sur le tableau 5.2. On remarque que la production d'hélium est plus de cent fois supérieure aux autres productions.

Isotope	Production intégrale (atomes/ μC)
^4He	$4,81 \cdot 10^{12}$
^{80}Kr	$5,33 \cdot 10^{10}$
^{84}Kr	$9,29 \cdot 10^{10}$
^{124}Xe	$3,99 \cdot 10^{10}$
^{194}Hg	$2,58 \cdot 10^{10}$
^{196}Hg	$2,88 \cdot 10^{10}$

TAB. 5.1 – Productions intégrales du ^4He , ^{80}Kr , ^{84}Kr , ^{124}Xe , ^{196}Hg et ^{194}Hg tirées de leur fonction de relâchement.

5.3 Mesures des taux de production

Pendant l'expérience IS419, nous n'avons pas mesuré des sections efficaces de production mais des taux de production au dessus des surfaces libres des cibles épaisses et liquides. Ces taux de production résultent en fait de la somme d'une production directe par spallation et d'une production par décroissances radioactives des parents. Nous appelons taux de production, le nombre d'atomes produits au dessus de la surface libre de la cible par μC de faisceau incident.

Les mesures sont effectuées avec des faisceaux de protons à 1 et 1,4 GeV sur des cibles épaisses et liquides de Pb et Pb-Bi portées respectivement à des températures de 400 °C et 600 °C.

5.3.1 Hélium

La production de l'hélium a été mesurée en 2004 avec la cible de Pb liquide irradiée par un faisceau de protons de 1,4 GeV. La température de la cible était fixée à 400 °C. La prise en charge de la production d'hélium est très importante dans la conception des cibles de spallation car il peut entraîner des dommages aux matériaux de structure par gonflements ou par déplacements d'atomes et augmenter la pression résiduelle au dessus de la surface libre de la cible. L'hélium avec l'hydrogène sont les éléments les plus produits pendant l'irradiation d'une cible de Pb liquide ou de Pb-Bi liquide.

Sa production est obtenue par intégration en fonction du temps de la fonction de relâchement représentée sur la figure 5.4 et après corrections par les différentes efficacités. Elle est de $4,81 \cdot 10^{12}$ atomes/ μ C. Ce taux de production en ^4He mesuré à l'aide d'une cage de Faraday doit être corrigé des contaminations par des combinaisons moléculaires entre hydrogène - tritium (H-T) et deuterium - deuterium (D-D). La contamination est estimée en calculant le nombre de combinaisons moléculaires à partir des résultats de la simulation MCNPX.

Soit N_{ij} le nombre de combinaisons moléculaires entre les isotopes i et j . Les indices i et j renvoient aux isotopes d'hydrogène, de deuterium et de tritium. N_{ij} est donné par :

$$N_{ij} = \frac{N_{tot}}{2} (a_{ij} \cdot \frac{N_i \cdot N_j}{N_{tot}^2}) \quad (5.1)$$

$N_{tot} = \sum_i N_i$ est la somme des atomes d'hydrogène, de deuterium et de tritium. Le facteur a_{ij} est donné par :

$$a_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{si } i = j \\ 2 & \text{si } i \neq j \end{cases}$$

La simulation MCNPX réalisée pour un faisceau de proton de 1,4 GeV sur la cible au Pb liquide donne le nombre d'atomes par proton source :

- d'hydrogène $N_H = 2,39$ atomes/proton
- de deuterium $N_D = 0,67$ atome/proton
- de tritium $N_T = 0,39$ atome/proton
- le nombre total d'atomes de H, D et T $N_{tot} = 3,46$ atomes/proton

5.3. MESURES DES TAUX DE PRODUCTION

– d'hélium $N_{He} = 0,85$ atomes/proton

Seuls les combinaisons entre isotopes conduisant à des molécules de masse moléculaire égale à 4 nous intéressent. Avec la formule 5.1, nous obtenons 0,06 combinaisons entre deux isotopes de deuterium et 0,13 combinaisons entre hydrogène et tritium soit au total 0,19 molécules susceptibles d'être détectés en même temps par la cage de Faraday avec les 0,85 atomes de ^4He . Ceci nous permet d'obtenir une contamination de l'ordre de 18 % par les combinaisons moléculaires (DD et HT). La correction appliquée à la valeur expérimentale nous donne un taux de production en ^4He égal à $3,940 \cdot 10^{12}$ atomes/ μC .

5.3.2 Krypton et xénon

Durant l'expérience, nous avons mesuré les taux de production du xénon et du krypton à 1 et 1,4 GeV avec la cible de Pb-Bi liquide à 600 °C. Le xénon et le krypton sont produits par spallation durant la phase de fission et sont totalement relâchés dans les conditions expérimentales. Les résultats des mesures des taux de production d'isotopes de krypton et de xénon à 1 et 1,4 GeV sont présentés respectivement sur les figures 5.5, 5.6, 5.7 et 5.8.

Les gaz rares représentent les éléments les plus faciles à produire et à extraire par la méthode ISOL parce que étant des gaz relativement non réactifs. Leur relâchement est supposé complet dans les conditions de température de l'expérience. Donc, les données expérimentales obtenues sont directement comparables aux résultats de simulations pour tester les codes.

5.3.3 Mercure

Les figures 5.9 et 5.10 montrent respectivement les taux de production d'isotopes de mercure obtenus par irradiation de la cible au Pb-Bi liquide par des faisceaux de protons d'énergie 1,4 GeV et 1 GeV. Les résultats présentés sur ces figures ont été respectivement obtenus pendant la première phase d'irradiation en 2004 et la dernière phase en 2005 par différentes techniques de mesures. Cependant, la température de la cible est restée fixe à 600 °C pour les mesures données sur les deux figures.

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

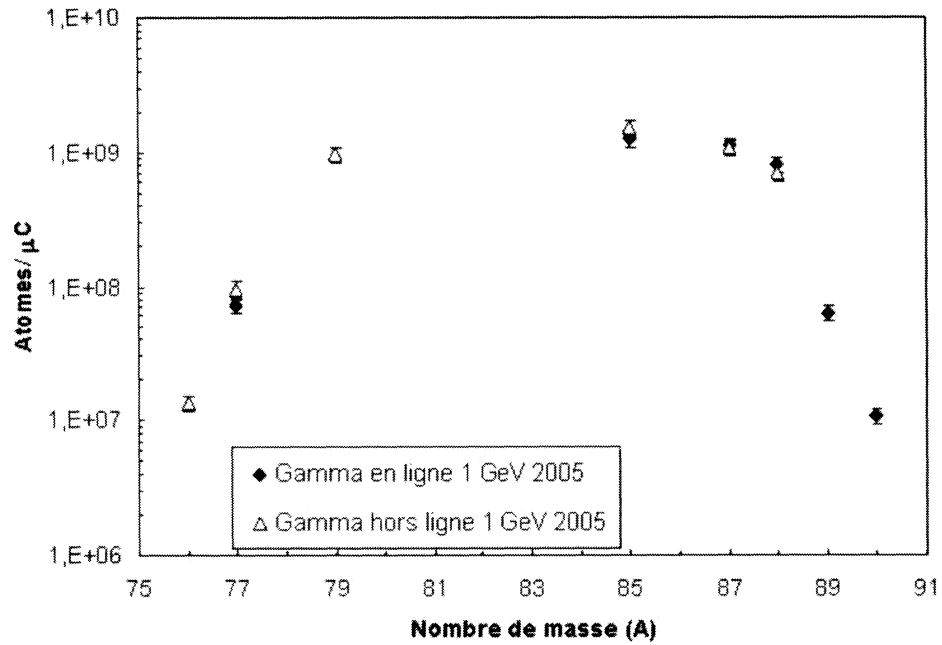


FIG. 5.5 – Taux de production d'isotopes de krypton mesurés pour un faisceau de protons de 1 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C.

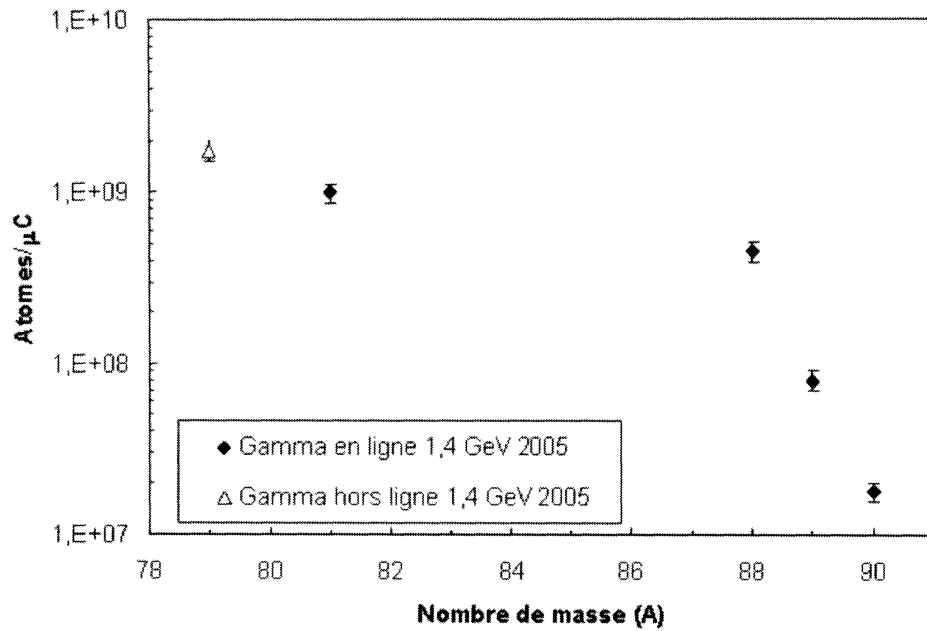


FIG. 5.6 – Taux de production d'isotopes de krypton mesurés pour un faisceau de protons de 1,4 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C.

5.3. MESURES DES TAUX DE PRODUCTION

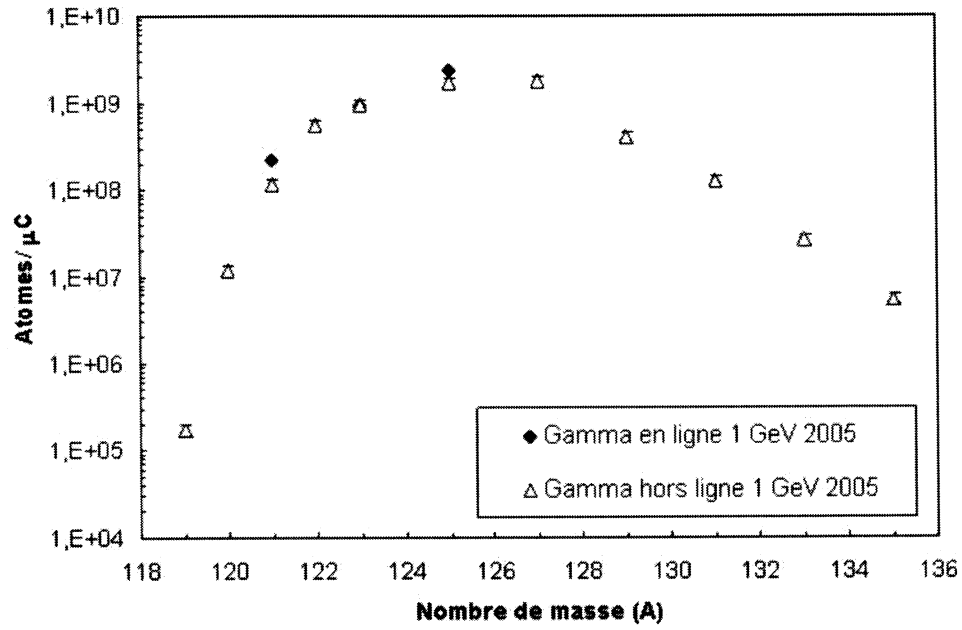


FIG. 5.7 – Taux de production d'isotopes de xénon mesurés pour un faisceau de protons de 1 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C.

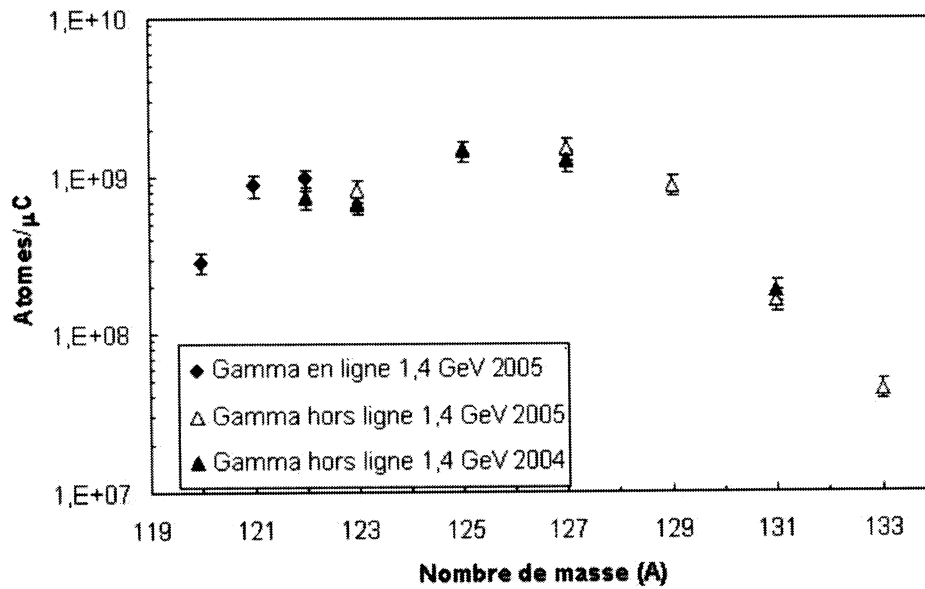


FIG. 5.8 – Taux de production d'isotopes de xénon mesurés pour un faisceau de protons de 1,4 GeV sur une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C.

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Les données expérimentales montrent un bon accord entre elles malgré les méthodes de détection différentes et les différentes phases. Ceci est un bon exemple de la complémentarité des méthodes de détection.

Les isotopes de mercure sont générés par la réaction de spallation par des collisions périphériques où une faible énergie d'excitation est transférée au noyau cible. Les éléments de numéro atomique voisin à la cible, comme le mercure, sont produits en grande quantité dans les réactions de spallation impliquant des protons très énergétiques et des cibles massives telles le Pb ou le Pb-Bi liquide. Dans ces cas, les sections efficaces de production de noyaux lourds sont très élevées [25].

En plus de sa production massive, nous notons que le mercure est totalement relâché hors de la cible dans les conditions de l'expérience. Tous ces facteurs font qu'il est nécessaire de prévoir des dispositifs de condensation ou de séquestration efficaces du mercure dans les cibles de spallation comme MEGAPIE ou dans les ADS. En effet, le mercure avec l'hélium et l'hydrogène constituent les éléments volatiles qui contribuent le plus à l'augmentation de la pression résiduelle au dessus de la surface libre.

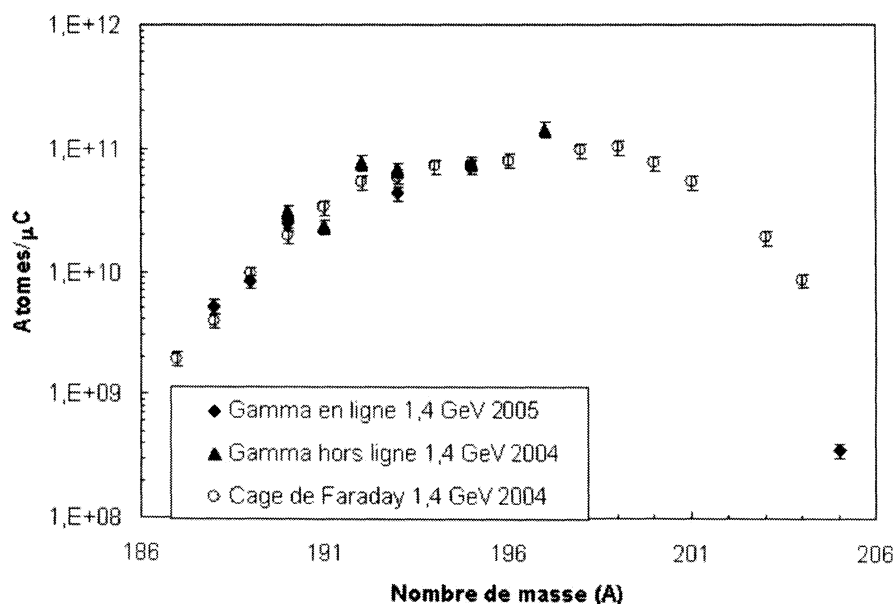


FIG. 5.9 – Taux de production d'isotopes de mercure mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600°C et une énergie faisceau de 1,4 GeV.

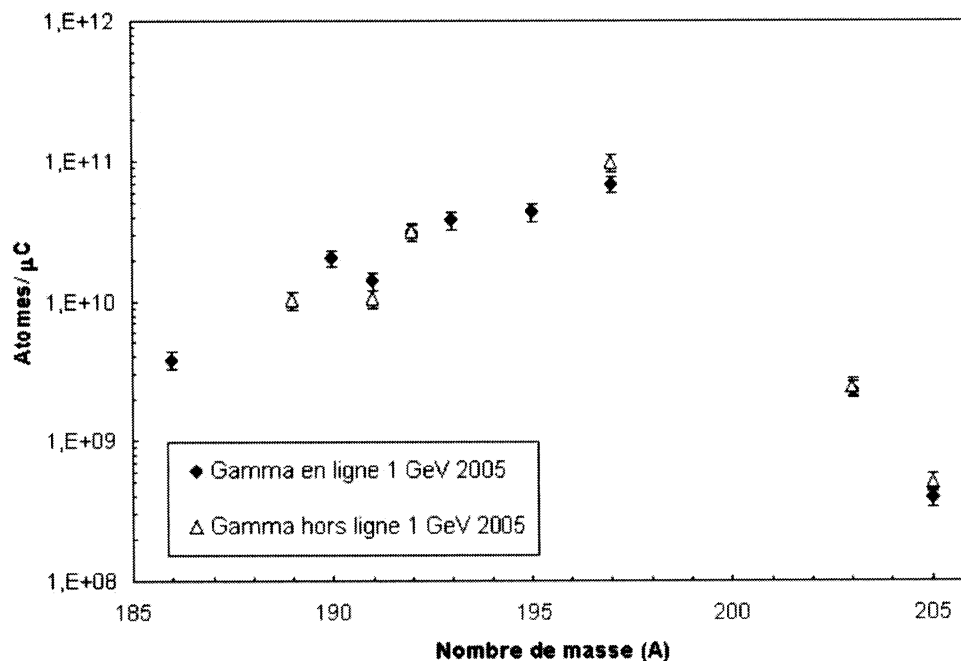


FIG. 5.10 – Taux de production d'isotopes de mercure mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C et une énergie faisceau de 1 GeV.

5.3.4 Astate

Les isotopes d'astate ont des durées de vie assez courtes et donc ils ne constituent pas en soi un problème sur le relâchement des radioéléments volatiles.

Cependant, la décroissance β des isotopes d'astate conduit aux isotopes de polonium qui sont pour la plupart hautement radioactifs. Ils sont émetteurs α et ont des périodes très longues. Par exemple, les isotopes ^{208}Po et ^{209}Po , radioactifs α , ont des durées de vie respectivement égales à 2,9 et 102 années.

Dès lors, il est important de mesurer les taux de relâchement des isotopes d'astate. Les figures 5.11 et 5.12 représentent les taux de production expérimentaux d'isotopes d'astate avec un faisceau de 1 et 1,4 GeV mesurés en ligne et hors ligne par γ -spectroscopie. La température de la cible est fixée à 600 °C.

Les mesures d'astate effectuées durant l'expérience IS419 sont d'une grande importance puisqu'il s'agit de la première observation d'isotopes d'astate par la méthode ISOL à partir de l'irradiation d'une cible épaisse au Pb-Bi liquide par des faisceaux de protons

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

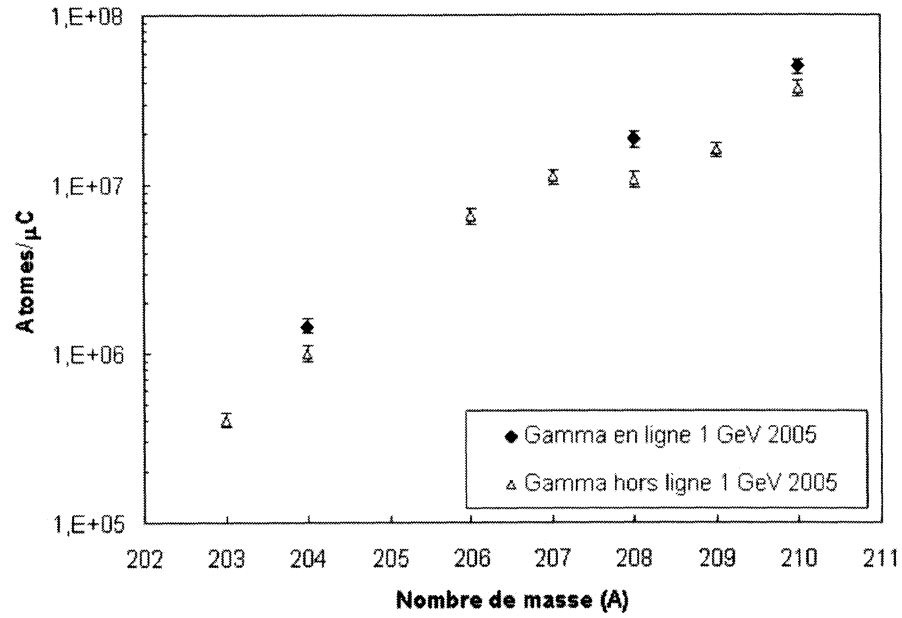


FIG. 5.11 – Taux de production d'isotopes d'astate mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C et une énergie faisceau de protons 1 GeV.

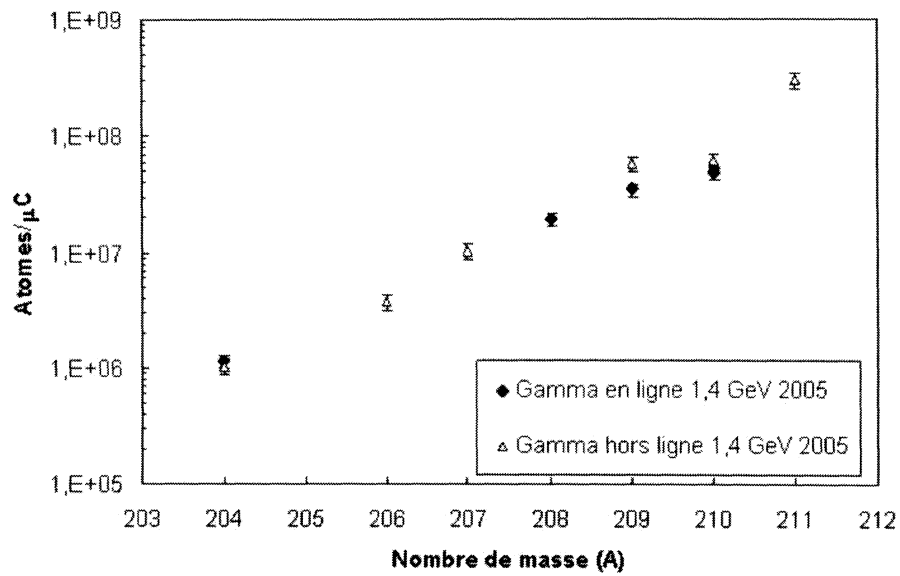


FIG. 5.12 – Taux de production d'isotopes d'astate mesurés pour une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C et une énergie faisceau de protons 1,4 GeV.

5.3. MESURES DES TAUX DE PRODUCTION

énergétiques.

Durant l'expérience, le polonium produit dans la cible n'est pas relâché hors de la cible. Ceci a été vérifié expérimentalement par les mesures sur la dépendance en température du relâchement du polonium à partir d'une cible de Pb-Bi liquide réalisées au PSI par J. Neuhausen [30].

Cette étude est réalisée en s'attachant à reproduire les conditions réelles d'irradiation d'une cible de Pb-Bi liquide par un faisceau de protons énergétiques. Pour ce faire, des échantillons de Pb-Bi dopés des isotopes de polonium sont introduits dans du Pb-Bi liquide. La cible, chauffée de 150° à 1032°C , est alors plongée dans un mélange de gaz Ar/H₂ ou Ar/H₂O. Les résultats des mesures pour deux échantillons de masses différentes sont présentés sur la figure 5.13.

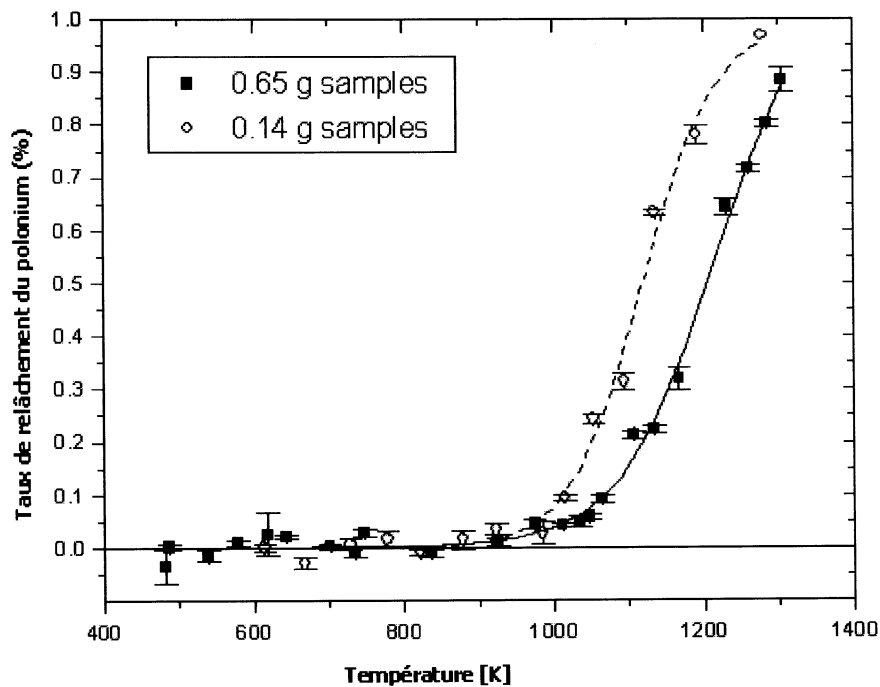


FIG. 5.13 – Dépendance en température du relâchement du polonium à partir de deux échantillons de masses différentes dans du Pb-Bi liquide.

Pour les deux échantillons, une quantité mesurable ne commence à être relâchée qu'à 700°C . Donc, il n'y a pas de relâchement de polonium à partir de la cible au Pb-Bi liquide pendant l'expérience d'irradiation : en cas de détection hors cible de polonium, la

décroissance d'isotopes d'astate en est la seule raison possible.

5.3.5 Iode

La figure 5.14 donne les taux de production des isotopes d'iode mesurés avec des faisceaux de protons d'énergies 1 et 1,4 GeV sur la cible de Pb-Bi liquide pour une température de 600 °C.

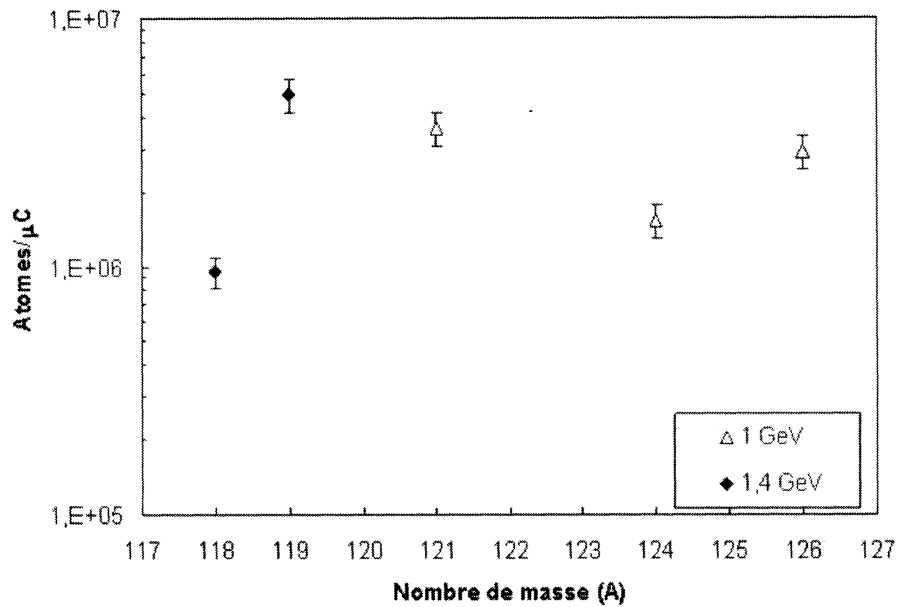


FIG. 5.14 – Taux de production d'iode mesurés à la température de Pb-Bi liquide à 600 °C.

L'iode est très peu volatile, les mesures des taux de production de ses isotopes dans l'expérience IS419 avoisinent 10^7 atomes/μC. Ce faible relâchement de l'iode est confirmé par les mesures de dépendance en température réalisées au PSI par J. Neuhausen [32]. La figure 5.15 représente les résultats des mesures de la dépendance en température du relâchement de l'iode pour des températures variant de 428 à 1223 K.

Le relâchement de l'iode est presque nul pour des températures inférieures à 600 °C. Un relâchement mesurable ne commence à être obtenu qu'à partir de 600 °C. Pour des températures supérieures à 700 °C, nous obtenons un plateau montrant un relâchement constant correspondant à un relâchement de 85 % de l'iode. Le reste de l'iode non relâché est piégé dans le Pb-Bi par la formation de divers oxydes sur la surface libre.

5.3. MESURES DES TAUX DE PRODUCTION

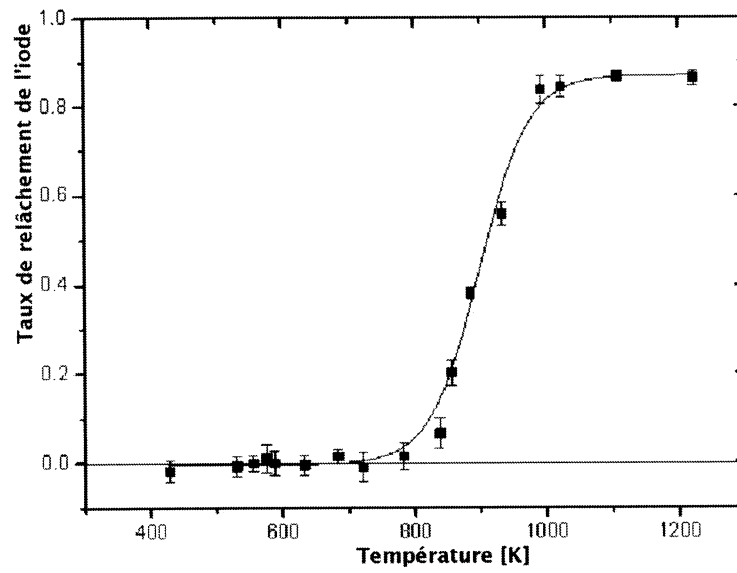


FIG. 5.15 – Dépendance en température du relâchement d'iode dans du Pb-Bi liquide.

CHAPITRE 5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Chapitre 6

Comparaison avec les codes de simulations

Dans ce chapitre, nous comparons les données expérimentales tirées de l'expérience IS419 aux résultats de simulations réalisées avec le code de calcul Monte Carlo MCNPX. Les simulations MCNPX ont été réalisées avec les modèles de cascade intranucléaire de Bertini et celui de Cugnon développé dans le code INCL4 ainsi qu'avec les modèles d'évaporation/fission de Dresner et de Schmidt développé dans ABLA. Le code d'évolution utilisé est CINDER'90.

6.1 Gaz rares

6.1.1 Hélium

Il est particulièrement intéressant de pouvoir simuler correctement les taux de production d'hélium générés dans les cibles d'ADS comme celle de MEGAPIE. En effet, l'hélium est parmi les éléments les plus produits par spallation par un faisceau de protons sur des noyaux lourds tels que le Pb ou le Pb-Bi liquide. Il est produit par spallation essentiellement dans la phase d'évaporation de particules légères chargées dont il fait partie et aussi pendant la cascade intranucléaire.

Pendant l'expérience IS419, la production de l' ^4He est déterminée par intégration de

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

la fonction de relâchement (voir figure 6.1) après l'irradiation de la cible au Pb liquide par un faisceau de protons d'énergie 1,4 GeV. La température de la cible était fixée à 400 °C.

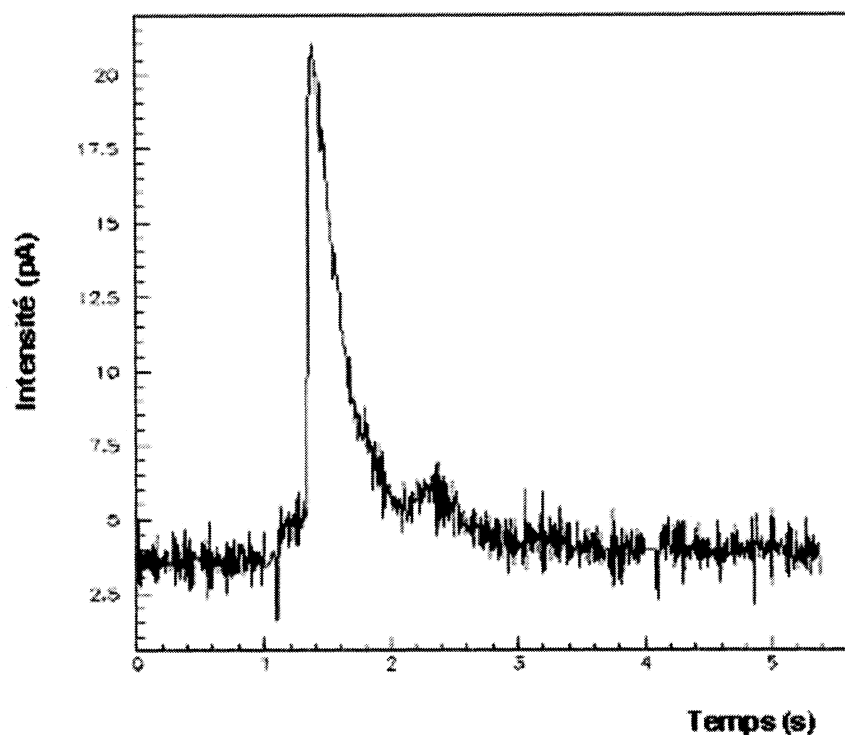


FIG. 6.1 – Fonction de relâchement de l' ^4He généré par un faisceau de protons d'énergie 1,4 GeV sur une cible de Pb liquide portée à la température de 400 °C.

Cette fonction de relâchement est mesurée par une cage de Faraday placée sur la ligne centrale. Expérimentalement, la production intégrale trouvée après corrections par les différentes efficacités et des contaminations isobariques est de $3,940 \cdot 10^{12}$ atomes/ μC . La simulation, réalisée avec MCNPX couplé au modèle de cascade intranucléaire de Bertini et à l'option d'évaporation-fission de Dresner prédit une production de $5,217 \cdot 10^{12}$ atomes/ μC soit une production deux fois plus élevée que celle estimée par la combinaison INCL4/ABLA de l'ordre de $2,675 \cdot 10^{12}$ atomes/ μC . Des études expérimentales sur les sections efficaces de production des résidus de spallation à partir des cibles en fer [75] et en plomb [25] comparées aux simulations faites avec les combinaisons Bertini/Dresner et INCL4/ABLA ont montré que les modèles physiques implémentés dans ces codes n'arrivent pas estimer correctement la production d'hélium. Ce défaut de prédiction peut

être attribué au traitement par ces modèles de l'énergie d'excitation acquise par le noyau chaud à la fin de la cascade intranucléaire et à l'émission de noyaux composites.

6.1.2 Xénon

Comme l'hélium, le xénon doit être relâché totalement hors de la cible aux températures expérimentales donc les taux de production de ses isotopes mesurés peuvent être directement comparés aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX. La figure 6.2 donne les taux de production d'isotopes de xénon pour un faisceau de protons d'énergie 1,4 GeV sur la cible de Pb-Bi liquide portée à 600 °C.

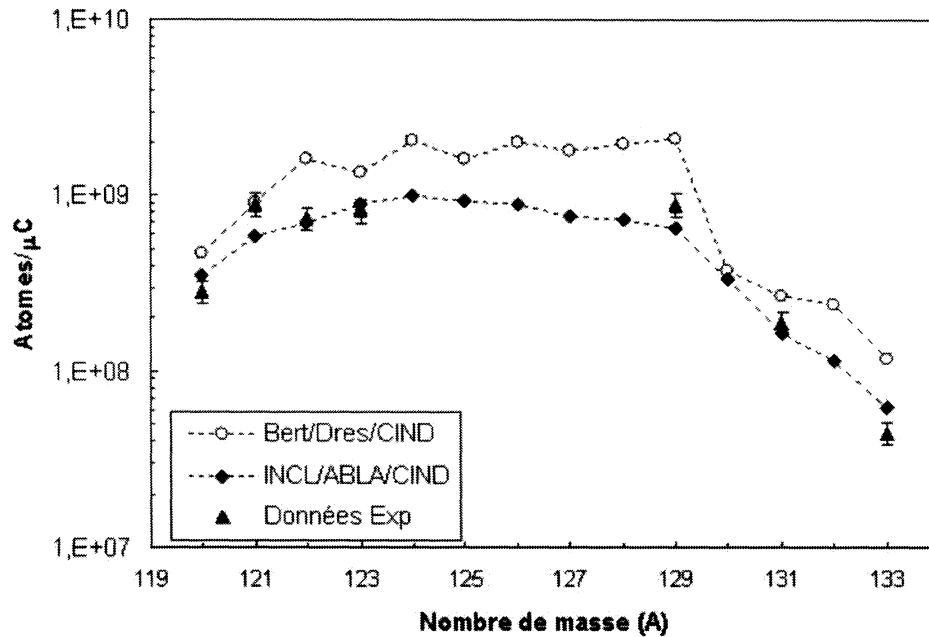


FIG. 6.2 – Taux de production d'isotopes de xénon, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

Nous avons un bon accord entre les données expérimentales et les résultats des simulations lorsque le code MCNPX est associé au modèle de cascade intranucléaire INCL4 et à l'option d'évaporation/fission ABLA. La dernière version du modèle de cascade de Cugnon INCL4 associée avec le modèle d'évaporation/fission de K. H. Schmidt ABLA prédit en général correctement les isotopes produits par spallation-fission.

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

La combinaison Bertini/Dresner surestime les taux de production des isotopes de xénon à cette énergie. Bien que les isotopes de xénon soient produits par spallation durant la phase de fission, il est difficile de distinguer la part du modèle de cascade intranucléaire de Bertini et de celui d'évaporation/fission Dresner sur la surestimation du taux de production. Cette surestimation du taux de production par Bertini/Dresner peut être alors attribuée d'une part à une très grande énergie d'excitation cédée au noyau résiduel à la fin de la cascade intranucléaire décrite par le modèle de Bertini favorisant en conséquence la fission ou la fragmentation du noyau excité surtout dans le cas des cibles de numéro atomique élevé. Ceci est bien illustré par des travaux expérimentaux et de simulations [28, 27] qui montrent que la distribution de l'énergie d'excitation obtenue par Bertini donne des valeurs largement supérieures aux valeurs expérimentales et à celles du code INCL4.

Nous comparons dans le tableau 6.1 les valeurs moyennes d'énergie d'excitation obtenues expérimentalement avec celles obtenues par simulations avec Bertini et INCL4 pour les réactions de spallation $p(1,2 \text{ GeV}) + \text{F}$ et $p(1,8 \text{ GeV}) + \text{Au}$. Ces valeurs sont tirées de la référence [27].

Réaction de spallation	Données expérimentales (MeV)	E^* INCL4 (MeV)	E^* Bertini (MeV)
1,2 GeV $p + \text{F}$	126	129	150
1,8 GeV $p + \text{Au}$	354	296	462

TAB. 6.1 – Comparaison des énergies d'excitation moyennes obtenues expérimentalement et par simulations avec Bertini et INCL4.

Nous observons que les simulations avec le modèle de cascade intranucléaire INCL4 s'accordent bien avec les données expérimentales pour des cibles légères telles que le fer et des cibles massives comme l'or. Le modèle de Bertini attribue plus d'énergie au noyau excité à la fin de la cascade particulièrement pour les cibles massives comme l'or où les différences entre les simulations et les données expérimentales sur l'énergie d'excitation peuvent être supérieures à 100 MeV.

Les différences de traitement de l'énergie d'excitation entre ces deux modèles de cascade résultent de plusieurs facteurs. Le modèle INCL4 prédit plus d'émission de nucléons

que Bertini, chaque nucléon émis emporte avec lui une certaine partie de l'énergie d'excitation.

Aussi, le traitement du blocage de Pauli contribue à la diminution de l'énergie d'excitation du noyau résiduel. Le blocage de Pauli tel qu'il est dans INCL4 est moins contraignant entraînant par la même occasion plus de cascades et plus de particules émises par rapport à une application stricte du principe de Pauli comme dans le cas du modèle de Bertini. La figure 6.3 illustre bien cette diminution de l'énergie d'excitation lorsqu'on passe d'une application stricte du blocage à l'application standard présente dans la version INCL4.

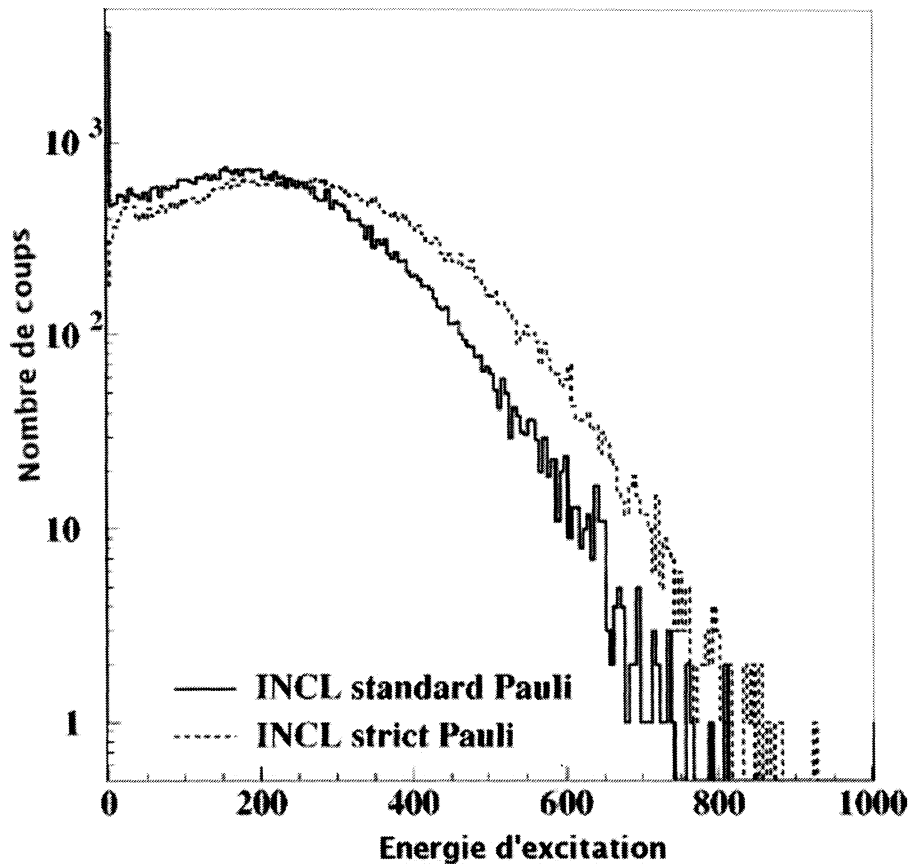


FIG. 6.3 – Distribution de l'énergie d'excitation dans la réaction de spallation p (1 GeV) + Pb calculée avec le modèle de cascade de Cugnon INCL.

Cette surestimation des taux de production des isotopes de xénon peut être d'autre part due aux défauts de prédiction que présente Dresner sur la compétition entre évaporation de neutrons et particules légères chargées [24].

A 1 GeV, les simulations MCNPX avec INCL4/ABLA et Bertini/Dresner reproduisent bien les données expérimentales (voir figure 6.4). La dépendance en énergie de la combinaison INCL4/ABLA semble meilleure que celle de Bertini/Dresner au vu du bon accord entre résultats et simulations offert par INCL4/ABLA pour les deux énergies 1 et 1,4 GeV.

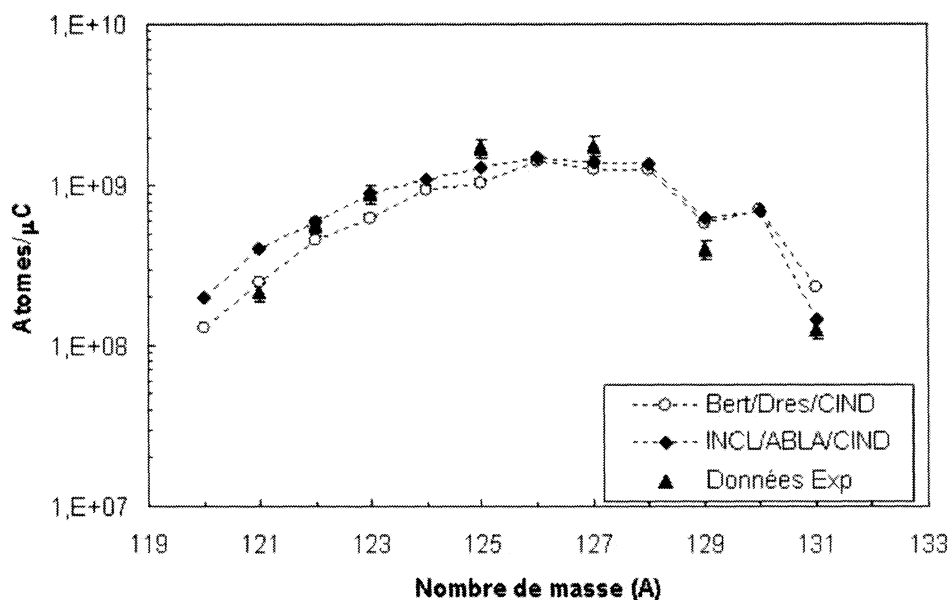


FIG. 6.4 – Taux de production d’isotopes de xénon, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

6.1.3 Krypton

Sur la figure 6.5, nous observons que l’ensemble des simulations reproduit assez bien les données expérimentales obtenues avec un faisceau de protons à 1 GeV et pour une température pour la cible égale à 600 °C. A 1,4 GeV, les données expérimentales (voir figure 6.6) sont plus faibles que les résultats des simulations.

Puisque le krypton est totalement relâché hors de la cible et que INCL4/ABLA estime relativement bien les produits de spallation issus de la phase fission (le krypton comme le xénon sont produits par spallation/fission), le désaccord entre expérience et simulations

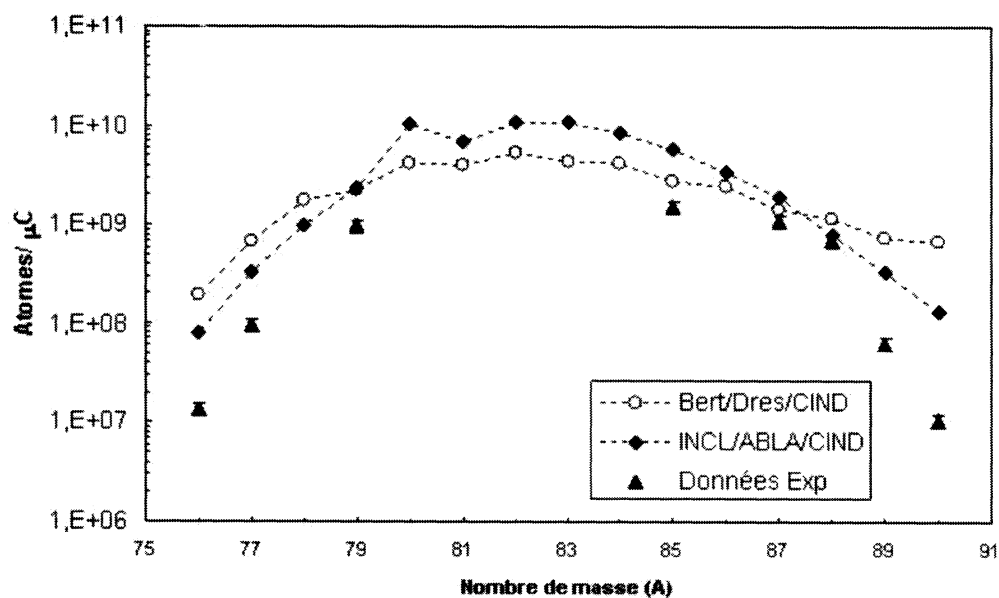


FIG. 6.5 – Taux de production d'isotopes de krypton, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600°C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

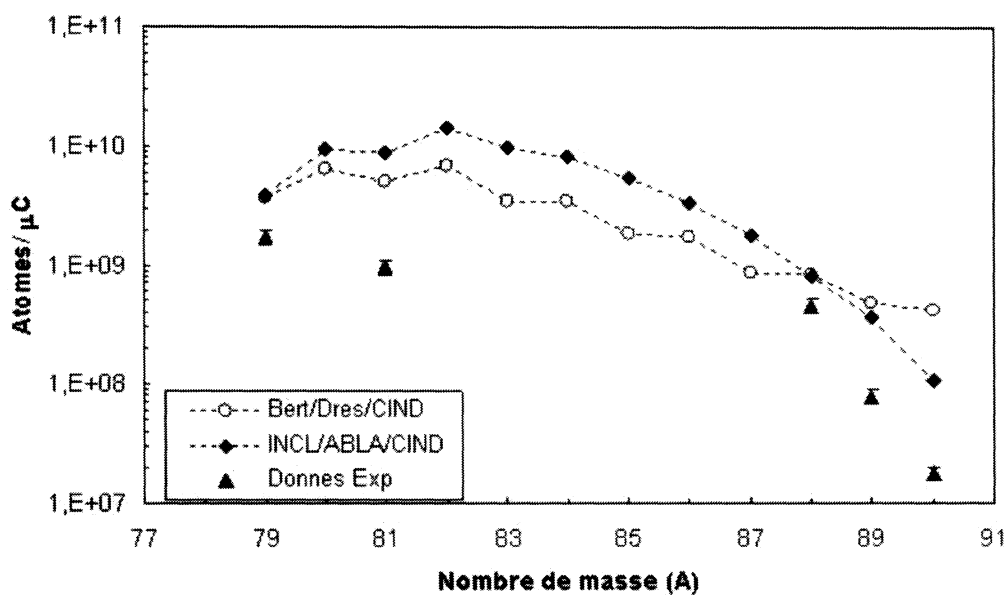


FIG. 6.6 – Taux de production d'isotopes de krypton, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600°C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

sur la figure 6.6 ne peut être attribué qu'à la nature des données expérimentales obtenues à 1,4 GeV. Donc, les données expérimentales sur la production d'isotopes de krypton à cette énergie doivent être prises avec précaution.

A cette même énergie, nous notons également une différence de prédiction entre INCL4/ABLA et Bertini/Dresner. Bertini/Dresner donne des valeurs plus faibles par rapport à INCL4/ABLA pour les isotopes de krypton dont la masse varie entre 80 et 87.

6.1.4 Néon et argon

Nous présentons dans ce paragraphe les isotopes d'argon et de néon mesurés respectivement à 1 et 1,4 GeV à partir de la cible au Pb-Bi liquide portée à 600 °C.

Le tableau 6.2 regroupe les mesures expérimentales des isotopes de néon et d'argon comparées aux simulations INCL4/ABLA et Bertini/Dresner. Ces isotopes sont produits par multifragmentation durant la réaction de spallation. La multifragmentation intervient dans la spallation lorsque l'énergie d'excitation par nucléon (E^*/A) du noyau résiduel est supérieure à 3 MeV. Une énergie d'excitation élevée entraîne la multifragmentation du noyau en plusieurs noyaux de masses intermédiaires.

Isotopes	Données exp. (atomes/ μC)	INCL4-ABLA (atomes/ μC)	INCL4/Exp.	Bertini-Dresner (atomes/ μC)	Bert/Exp.
²³ Ne	$1,38 \cdot 10^8$	$1,50 \cdot 10^7$	0,11	$1,35 \cdot 10^8$	0.98
²⁴ Ne	$1,19 \cdot 10^8$	$6,25 \cdot 10^6$	0,05	$1,30 \cdot 10^8$	1.09
⁴¹ Ar	$1,69 \cdot 10^8$	$1,94 \cdot 10^8$	1,15	$4,47 \cdot 10^8$	2,64
⁴³ Ar	$3,08 \cdot 10^7$	$6,60 \cdot 10^7$	2,14	$3,66 \cdot 10^8$	11,88
⁴⁴ Ar	$1,43 \cdot 10^7$	$1,63 \cdot 10^7$	1.14	$2,96 \cdot 10^8$	20,7

TAB. 6.2 – Taux de productions des isotopes de néon à 1,4 GeV et d'argon à 1 GeV comparés aux simulations Monte Carlo.

Nous avons déjà remarqué que le modèle Bertini à l'opposé du modèle INCL4 surestime l'énergie d'excitation conférée au noyau résiduel à la fin de la cascade intranucléaire. Ceci a pour conséquence directe une surproduction par Bertini de noyaux de masse intermédiaire.

Sur le tableau 6.2, le rapport entre les résultats obtenus avec Bertini/Dresner et les données expérimentales est très grand pour les isotopes d'argon. Par exemple, Bertini prédit une production de l'isotope ⁴⁴Ar environ vingt fois plus grande que l'expérience.

Par contre, INCL4/ABLA présente des valeurs comparables ou même plus faibles aux données expérimentales. Le rapport entre expérience et INCL4 est proche de l'unité pour les isotopes d'argon sauf pour le cas de l' ^{43}Ar .

6.2 Mercure

Les figures 6.7 et 6.8 donnent les taux de production des isotopes de mercure respectivement pour des énergies de protons de 1 et 1,4 GeV.

Sur ces figures, on peut constater que le mercure est produit en très grande quantité : la production pour certains de ses isotopes peut atteindre 10^{11} atomes/ μC . Le mercure, élément de numéro atomique voisin de la cible, est généré principalement suite à des collisions périphériques où une faible énergie d'excitation est transférée au noyau cible par le proton. Dans sa production, l'évaporation joue un rôle limité puisqu'un petit nombre de nucléons est évaporé. La presque totalité du mercure est produite durant la phase de cascade intranucléaire par émissions de nucléons et c'est dans cette phase de cascade que les sections efficaces sont plus élevées [25].

Les données expérimentales présentent un bon accord avec les simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA). Les modèles de cascade intranucléaire utilisés estiment correctement l'énergie d'excitation faible mise en jeu dans le cas de la formation des résidus de masse voisine de la cible, d'où leur bonne prédiction des taux de production dans la zone de masse proche de la cible. Précédentes mesures et simulations donnent la même conclusion sur le bon accord de prédiction des simulations MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA) pour les taux de production des isotopes voisins en masses des cibles massives telles que le plomb [75] et fines comme le fer [24].

6.3 Astate

Nous comparons sur les figures 6.9 et 6.10 les taux de production des isotopes d'astate obtenus expérimentalement respectivement aux énergies de faisceaux de protons à 1 et 1,4 GeV avec les simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

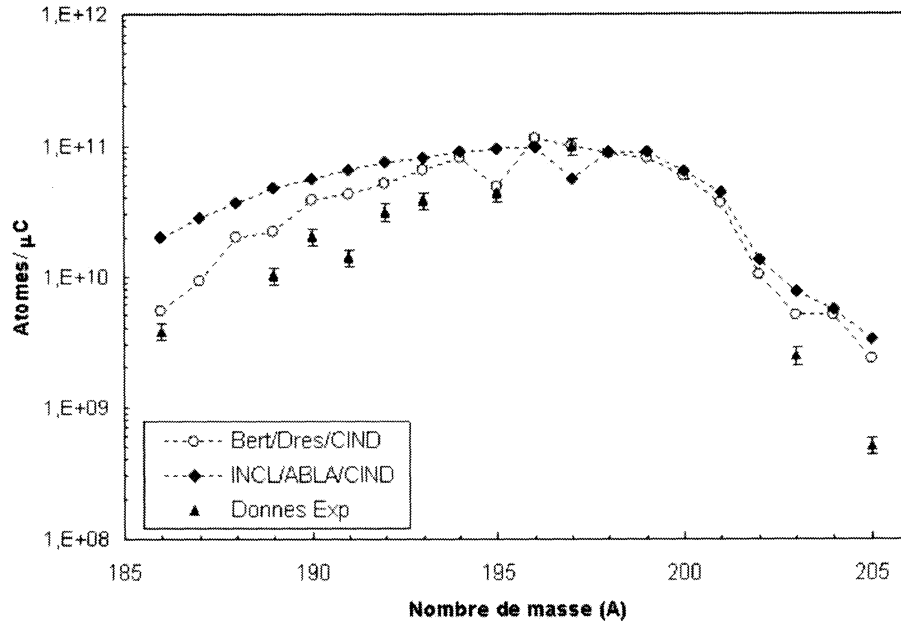


FIG. 6.7 – Taux de production d'isotopes de mercure, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600°C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

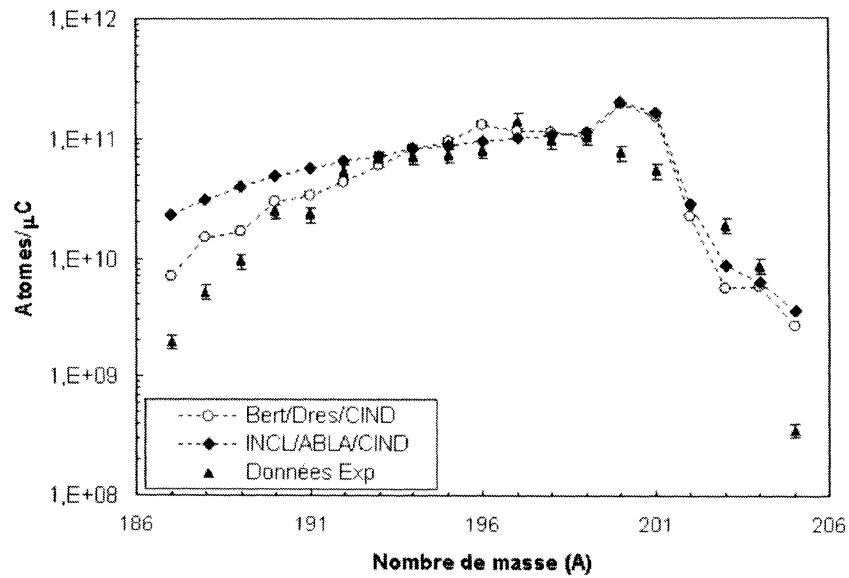


FIG. 6.8 – Taux de production d'isotopes de mercure, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600°C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

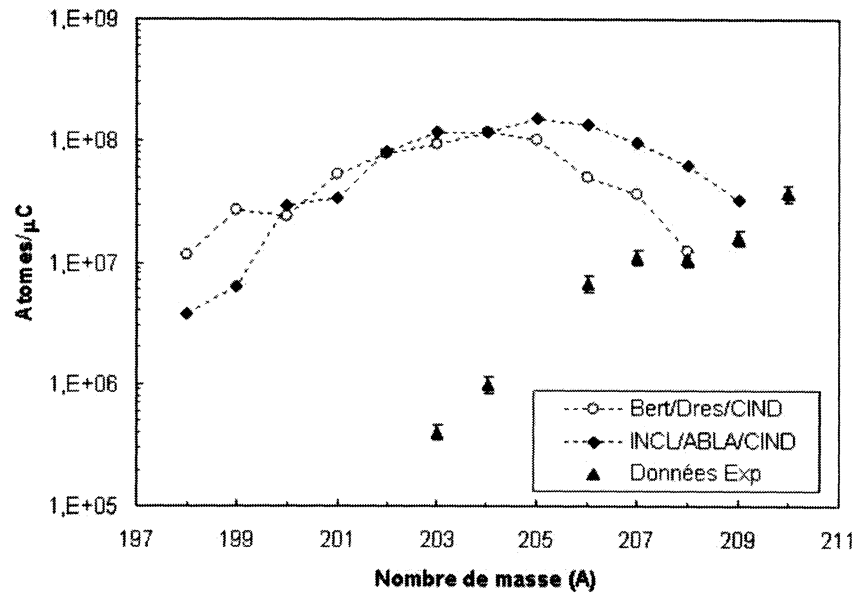


FIG. 6.9 – Taux de production d'isotopes d'astate, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

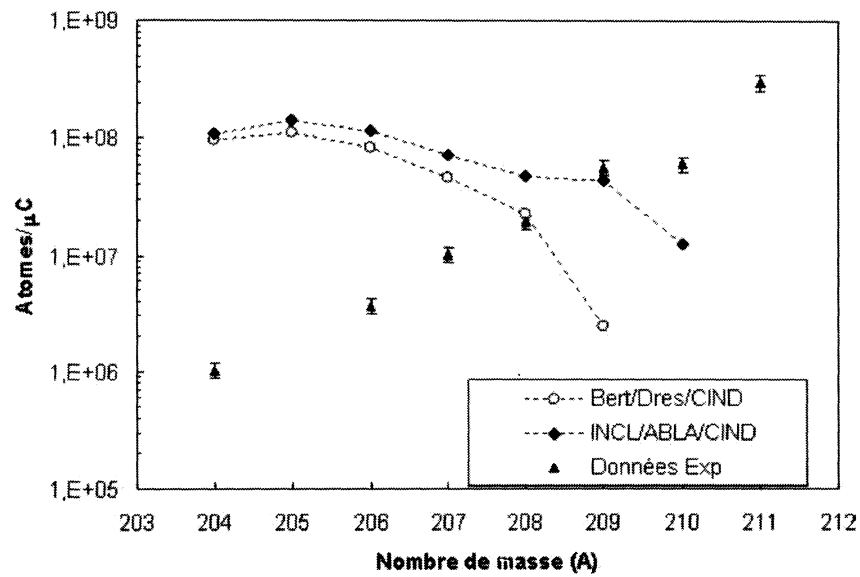


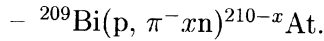
FIG. 6.10 – Taux de production d'isotopes d'astate, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

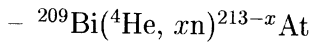
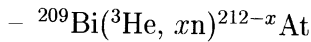
La cible au Pb-Bi liquide est portée à 600 °C.

Les taux de production expérimentaux présentés sur les deux figures augmentent avec la masse des isotopes d'astate. Les simulations présentent par contre une allure tout à fait différente et en plus elles surestiment largement la production des isotopes d'astate.

Cette surestimation est probablement due à la physique implémentée dans les codes de calcul Monte Carlo MCNPX. Ces codes de calcul restent incomplets dans le traitement du transport des particules légères telles que les particules α , ^3He et les pions. Ces particules légères jouent un rôle important dans la production des isotopes d'astate [76, 77]. La production d'astate peut se faire par le biais de la réaction directe du faisceau de protons sur le bismuth :



Cependant, pour des cibles épaisses comme celle utilisée dans cette expérience, les réactions secondaires sont essentielles et doivent être prises en compte. Ils s'agissent principalement de réactions induites par des isotopes d'hélium produits par spallation :



Même si ces réactions sont incluses dans la physique des codes de calcul Monte Carlo MCNPX, des améliorations sont nécessaires au vu des écarts observés sur les figures 6.9 et 6.10 entre données expérimentales et résultats de simulations.

6.4 Iode, brome et cadmium

Nous présentons ici les taux de relâchement des isotopes d'iode, de brome et de cadmium pour des faisceaux de protons à 1 et 1,4 GeV et pour une cible au Pb-Bi liquide à 600 °C. Ces halogènes (brome et iode) et metal (cadmium) font partie des éléments les moins volatiles.

L'iode

Le taux de relâchement de l'iode à 1 GeV comparé aux résultats des simulations est montré sur la figure 6.11.

6.4. IODE, BROME ET CADMIUM

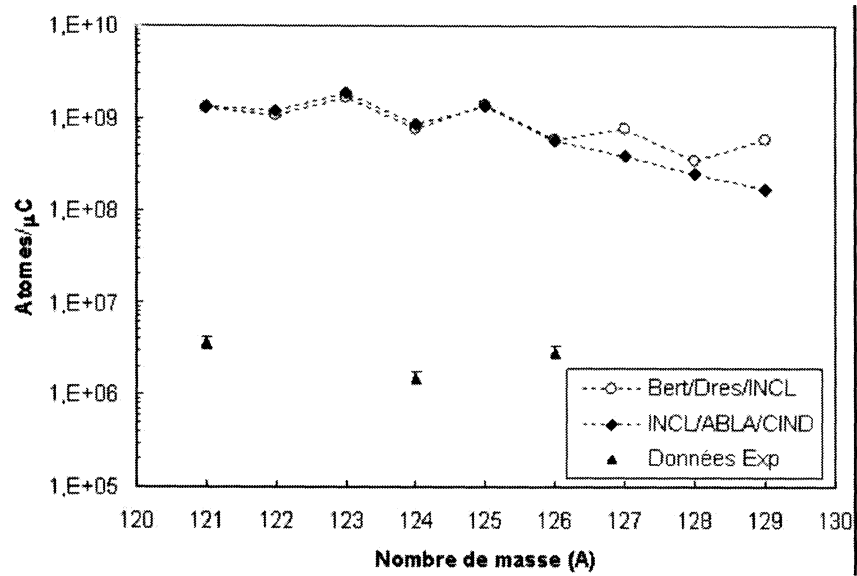


FIG. 6.11 – Taux de production d'isotopes d'iode, pour une énergie de 1 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

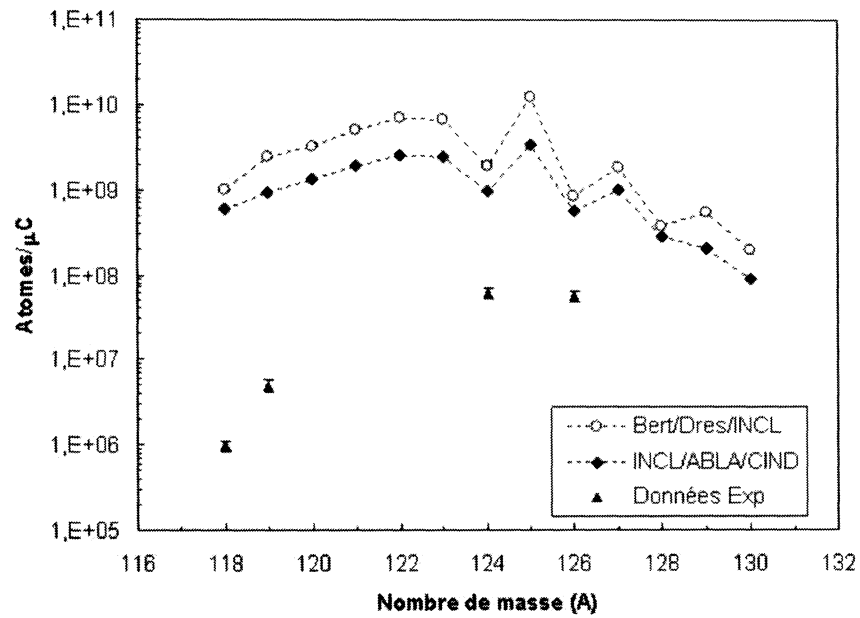


FIG. 6.12 – Taux de production d'isotopes d'iode, pour une énergie de 1,4 GeV et une température de 600 °C, comparés aux résultats des simulations Monte Carlo (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

Les simulations Monte Carlo présentent un bon accord entre elles et prédisent des résultats plus élevés que les données expérimentales dans le cas des isotopes d'iode. En considérant que les simulations estiment toute la production d'iode dans la cible, on peut alors conclure que le relâchement n'est pas complet. Une grande partie des isotopes d'iode est restée piégée dans la cible liquide à la température de 600 °C. Ce résultat est confirmé par les travaux de Neuhausen et collaborateurs [31] sur la dépendance en température du relâchement d'iode à partir d'une cible au Pb-Bi liquide. Ces travaux indiquent que le relâchement d'iode à partir d'une cible de Pb-Bi liquide à 600 °C est très faible et se situe aux alentours de 10 %.

A 1,4 GeV, la comparaison entre données expérimentales et résultats de simulations sur la production d'isotopes d'iode présentée sur la figure 6.12 montre que les simulations avec Bertini/Dresner donne des taux de production plus élevés par rapport à ceux de INCL4/ABLA. Cette surestimation d'isotopes d'iode comme dans le cas du xénon par Bertini/Dresner s'explique d'une part par le traitement de l'énergie d'excitation à la fin de la cascade intranucléaire par Bertini et d'autre part par le traitement par Dresner de la compétition entre évaporation et fission. En fait, les isotopes de xénon et d'iode sont semblables : ils sont générés de la même manière par spallation-fission et ont des masses du même ordre de grandeur.

Le brome et le cadmium.

Seuls quelques isotopes de brome et de cadmium ont été mesurés par γ -spectroscopie hors ligne durant l'expérience IS419.

Isotopes	Données Exp (atomes/ μC)	Bertini/Dresner (atomes/ μC)	INCL4/ABLA (atomes/ μC)	FLUKA (atomes/ μC)
^{80}Br	$1,16 \cdot 10^6$	$2,55 \cdot 10^9$	$7,15 \cdot 10^9$	$5,29 \cdot 10^9$
^{107}Cd	$6,59 \cdot 10^7$	$1,34 \cdot 10^9$	$1,39 \cdot 10^9$	$1,62 \cdot 10^9$
^{105}Cd	$4,27 \cdot 10^5$	$8,63 \cdot 10^8$	$5,36 \cdot 10^8$	$2,58 \cdot 10^8$

TAB. 6.3 – Taux de relâchement d'isotopes de brome et de cadmium obtenus par γ -spectroscopie hors ligne et comparés aux résultats de simulations MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

Il s'agit du ^{80}Br mesuré avec un faisceau de protons à 1,4 GeV et des isotopes ^{107}Cd

6.4. IODE, BROME ET CADMIUM

et ^{105}Cd mesurés respectivement avec des faisceaux de protons à 1 et 1,4 GeV et pour une cible à la température de 600 °C. Les résultats des mesures et des simulations correspondant sont montrés au tableau 6.3.

Les résultats des simulations sont largement supérieures aux données expérimentales. Car, en fait, le brome et le cadmium sont très faiblement volatiles : leur taux de relâchement avoisine 0,3 %.

En conclusion, ses données expérimentales sur les taux de production ont permis de tester le code de simulations Monte Carlo MCNPX lorsqu'il est associé avec les modèles de cascade intranucléaire de Bertini et INCL4 et aux options d'évaporation-fission de Dresner et ABLA.

Globalement, la combinaison INCL4/ABLA estime relativement mieux les taux de production des isotopes mesurés dans l'expérience IS419 surtout dans le cas des isotopes issus de la phase de fission. Par contre, pour la production des isotopes légers tels que l'hélium, les simulations avec INCL4/ABLA sousestiment les taux de production. Pour les isotopes lourds de masse voisine à la cible comme les isotopes de mercure, leurs taux de production sont correctement prédits aussi bien par INCL4/ABLA que par Bertini/Dresner. L'observation des isotopes d'astate et la comparaison de leurs taux de production avec les simulations ont montré la nécessité d'améliorer les modèles physiques implémentés dans les codes surtout dans le cas du transport des particules légères (les pions, les α , les ^3He ...)

La confrontation entre données expérimentales et résultats des simulations a permis aussi de caractériser les isotopes suivant leur volatilité. L'examen post-irradiation de la cible constitue une perspective intéressante pour tester les codes de simulations Monte Carlo pour l'ensemble des isotopes produits par spallation volatiles ou non.

CHAPITRE 6. COMPARAISON AVEC LES CODES DE SIMULATIONS

Conclusion

Durant l'expérience IS419, nous avons mesuré l'activité et le courant des isotopes d'He, Ne, Ar, Kr, Br, Cd, I, Xe, Hg et At à des températures variant de 250 ° à 600 °C, produits dans une cible épaisse de Pb liquide ou de Pb-Bi liquide irradiée par des faisceaux de protons de 1 et 1,4 GeV.

Nous avons extrait des résultats concernant la dépendance du relâchement en fonction de la température, les fonctions de relâchement et les taux de production des isotopes volatiles.

Les comparaisons réalisées avec le code de transport Monte Carlo MCNPX, nous permettent de conclure que le comportement des isotopes de Kr, Xe, Hg est correctement reproduit. C'est peut-être aussi le cas pour le Ne et l'Ar. De plus, il est clair que les autres éléments ne sont pas complètement relâchés. C'est particulièrement vrai pour les isotopes à courte durée de vie qui décroissent en partie dans la cible.

Dans cette expérience, contrairement aux expériences en cinématique inverse du GSI, nous utilisons des cibles épaisses. Nous sommes donc sensibles aux réactions secondaires en plus des réactions primaires. Cela nous permet aussi de pouvoir étudier la dépendance en température du relâchement. Un avantage frappant de l'utilisation d'une cible épaisse est celui de l'astate. Les prédictions des codes sont en désaccord avec les mesures car la production d'astate dans notre cas est dominée par les réactions secondaires induites par les particules alpha. Nous pensons avoir mis en évidence un défaut des codes implémentés dans MCNPX. Ceci peut avoir des implications fortes sur la sûreté en cas d'accident puisque l'astate décroît sur le polonium.

Au cours de cette expérience, nous avons essayé pour la première fois sur l'installation

CONCLUSION

ISOLDE de mesurer des taux de production de manière absolue. Les résultats sont très sensibles aux différentes efficacités du dispositif expérimental et aux erreurs systématiques. Nous sommes, de plus, sensibles à la température. Les mesures qui seront réalisées sur cible épaisse dans le futur devront si possible étudier de façon plus approfondie cette dépendance en température. Pour conforter nos conclusions sur le Xe, le Kr et le Hg ainsi que sur les autres éléments, la collaboration IS419 va procéder dans le courant de l'année 2008 à l'analyse post irradiation de la cible de plomb-bismuth.

Cette expérience nous a permis de valider le code de calcul Monte Carlo MCNPX utilisé au cours du projet MEGAPIE. Globalement, la combinaison INCL4/ABLA estime relativement mieux les taux de production des isotopes mesurés dans l'expérience IS419 surtout dans le cas des isotopes issus de la phase de fission que la combinaison Bertini/Dresner. Il est à noter que MCNPX, INCL4 et ABLA sont en constante évolution et développement grâce à l'action conjointe des physiciens théoriciens et expérimentateurs. Pour la production des isotopes légers, les simulations sousestiment les taux de production contrairement aux isotopes lourds de masse voisine à la cible dont les taux de production sont correctement prédits aussi bien par INCL4/ABLA que par Bertini/Dresner. L'observation des isotopes d'astate et la comparaison de leurs taux de production avec les simulations ont montré la nécessité d'améliorer les modèles physiques implémentés dans les codes surtout dans le cas du transport des particules légères (les pions, les α , les ^3He ...)

Nous étudions avec IS419 la production et le relâchement en même temps. A plus grande échelle, avec le projet MEGAPIE, la situation est la même. Nous montrons que le relâchement effectif au cours de l'irradiation de la cible MEGAPIE est plus faible que celui obtenu avec l'expérience (dans l'annexe A, nous voyons que seulement quelques pourcents de gaz rares sont relâchés après une journée d'opération puisque la cible est beaucoup plus grosse et que la température est plus basse). Nous avons choisi de mesurer à 600 °C pour nous placer dans une situation défavorable : la logique étant la suivante, si nous ne voyons aucun relâchement à 600 °C, nous ne verrons certainement aussi aucun relâchement dans les conditions d'opération du projet MEGAPIE. L'exemple typique est celui du polonium

CONCLUSION

qui n'a pas été détecté au cours de l'expérience IS419 (sauf via la décroissance de l'astate) et qui ne l'a pas été non plus au cours de MEGAPIE.

Enfin, nous rappelons que l'étude de la production et du relâchement des éléments produits dans la cible de spallation d'un ADS, en particulier dans les projets futurs comme MYRRHA (Belgique), l'XT-ADS ou l'EFIT (Europe), est indispensable à la fois pour la conception mécanique (augmentation de pression, déplacement par atome, gonflement) et en opération (température, incident, accident).

CONCLUSION

Annexe A

Projet MEGAPIE et production de gaz

Le projet MEGAPIE a été initié en 2000 dans le but de concevoir, de construire et d'opérer une cible de spallation au Pb-Bi liquide pour un faisceau de protons de 1 MW au PSI en Suisse. MEGAPIE représente un programme clef dans la validation des cibles des ADS au Pb-Bi lorsqu'elles sont couplées à un accélérateur de protons. Il s'agit en fait du premier couplage expérimental d'un accélérateur de protons à haute puissance (1 MW) et d'une cible de spallation liquide. L'irradiation s'est déroulée dans l'installation SINQ au PSI pendant quatre mois. Actuellement la cible est placée dans les cellules chaudes en attente d'une analyse post-irradiation. L'irradiation de MEGAPIE a permis aussi de réaliser plusieurs mesures expérimentales sur les flux neutroniques en différents endroits de la cible et par différents moyens, sur la production de gaz ou éléments volatiles produits par la réaction de spallation. La problématique des gaz ou éléments volatiles produits dans les cibles au Pb-Bi liquide a été l'une des principales motivations de l'expérience IS419 réalisée au CERN (Suisse).

Ce chapitre décrit dans sa première partie la cible MEGAPIE, donne ensuite l'historique de l'irradiation et enfin traite des mesures des gaz et éléments volatiles produits par spallation dans la cible au Pb-Bi liquide.

Description de la cible MEGAPIE

La cible de spallation du projet MEGAPIE est longue de cinq mètres et se présente sous une forme cylindrique avec un diamètre de 20 cm sur sa partie basse et 40 cm de diamètre sur sa partie haute. Le volume total de Pb-Bi liquide contenu dans la cible est de 82 litres. La figure A.1 donne une représentation schématique de la cible MEGAPIE avec une mise en évidence de la partie basse ou zone d'interaction du faisceau de protons avec la cible, de la zone de transport de chaleur et de la partie haute ou zone d'évacuation de chaleur. La partie haute regroupe les échangeurs de chaleurs et les deux pompes électromagnétiques. Le faisceau de protons interagit avec la cible par le bas en traversant une double enceinte de confinement en AlMg3 refroidie à l'eau lourde. Après la double enceinte de confinement, le faisceau traverse la fenêtre en acier T91 pour interagir avec la cible de spallation. La fenêtre en T91 est séparée de la double enceinte de confinement par de l'hélium à 0,5 bar.

Afin d'assurer un refroidissement efficace du dispositif, la circulation du Pb-Bi liquide est réalisée par deux pompes électromagnétiques. Une première pompe remonte le Pb-Bi liquide par la zone centrale. Le liquide traverse ensuite l'échangeur de chaleur et sort de l'échangeur refroidi. Il redescend vers la fenêtre par la partie périphérique du dispositif. La seconde pompe électromagnétique reprend une partie du Pb-Bi liquide à la sortie de l'échangeur pour le diriger vers la fenêtre en passant par un tube «by-pass» pour améliorer le refroidissement de la fenêtre en T91.

Historique d'irradiation

L'irradiation de la cible de MEGAPIE a débuté le 14 Août 2006 et s'est poursuivie jusqu'au 21 décembre 2006 soit plus de 4 mois d'irradiation sous des conditions normales de fonctionnement. Le fonctionnement de la cible peut être subdivisé en deux étapes. La première étape correspond à la phase préparatoire de la cible et la seconde phase à l'irradiation proprement dite de la cible. La phase de préparation a été effectuée en trois jours :

- Le premier jour, la cible avait reçu un faisceau stable et constant de protons à 40 μA , pour une charge totale de 60 $\mu\text{A} \cdot \text{h}$.

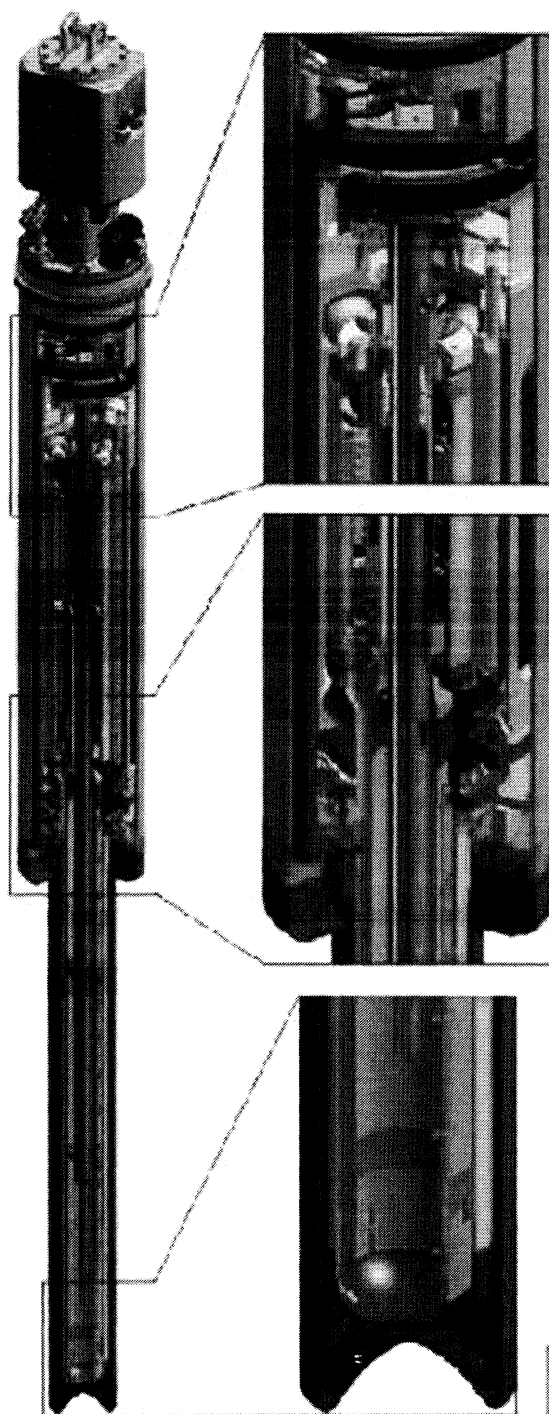


FIG. A.1 – Représentation schématique de la cible MEGAPIE.

PROJET MEGAPIE ET PRODUCTION DE GAZ

- Le jour suivant, l'intensité du faisceau fût augmentée de 40 à 250 μA
- Deux jours après (soit le 17 Août), l'intensité du faisceau de protons fût progressivement élevée jusqu'à 1,2 mA.

Après cette phase préparatoire de la cible, l'irradiation commença normalement le 21 août 2006. Le tableau A.1 montre l'historique de l'irradiation de la cible MEGAPIE.

Date	Intensité du faisceau
Phase préparatoire	
14 Août 2006	40 μA
15 Août 2006	250 μA
17 Août 2006	40 μA à 1,2 mA
Phase d'irradiation	
Du 21 - 08 au 25-12-2006	1,2 à 1,375 mA

TAB. A.1 – Historique d'irradiation de la cible MEGAPIE.

Production et relâchement des éléments volatiles

L'irradiation d'une cible de spallation au Pb-Bi liquide avec un faisceau de protons énergétiques génère des neutrons et de nombreux résidus de spallation stables ou radioactifs. Parmi ces résidus de spallation, la plupart sont volatiles ou gazeux.

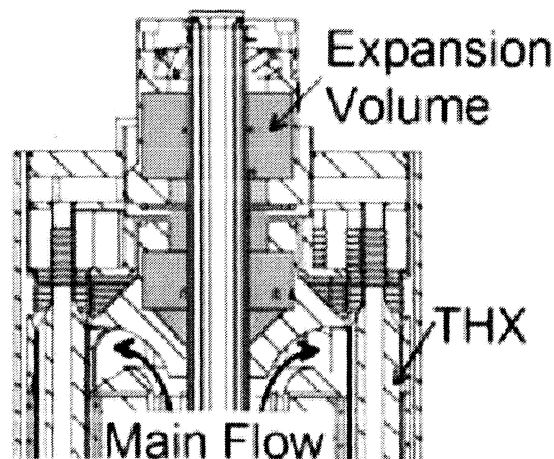


FIG. A.2 – Représentation de la partie supérieure de MEGAPIE : le vase d'expansion placé au dessus de la surface libre de la cible récupère tous les éléments gazeux ou volatiles ayant diffusé hors de la cible liquide au Pb-Bi.

Les éléments gazeux ou volatiles produits dans la cible vont diffuser hors de la cible liquide et vont être collectés dans le vase d'expansion d'un volume de 2 l situé dans la partie supérieure du dispositif au dessus de la surface libre de Pb-Bi. La figure A.2 montre le vase d'expansion.

Mesure de la pression dans le vase d'expansion

Au cours de l'irradiation, la pression dans le vase d'expansion a été mesurée par deux capteurs placés à l'intérieur du vase. La figure A.3 donne l'évolution de la pression dans le vase d'expansion en fonction du temps d'irradiation. La pression augmente au cours de l'irradiation.

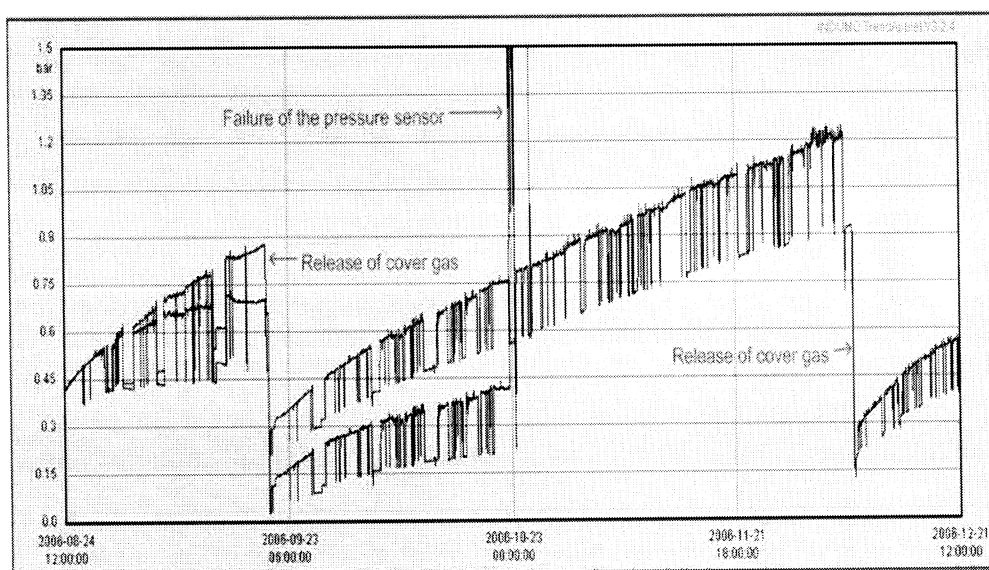


FIG. A.3 – L'évolution de la pression dans le vase d'expansion mesurée par deux capteurs au cours de l'irradiation de MEGAPIE.

Afin de réduire cette pression, des relâchements de gaz sont effectués périodiquement vers un réservoir de volume plus grand. La phase de relâchement correspond à une diminution significative de la pression dans le vase d'expansion. Nous notons que le comportement des deux capteurs divergent ce qui est dû à un dysfonctionnement du capteur 1. Les mesures du deuxième capteur ont été prises comme référence pour la pression dans le vase.

PROJET MEGAIE ET PRODUCTION DE GAZ

L'augmentation de la pression est essentiellement due à la production et à la diffusion des éléments légers volatiles tels que l'hydrogène et l'hélium hors de la cible liquide. La contribution en terme de pression des autres gaz rares ou du mercure est négligeable. L'augmentation de la pression au cours de l'irradiation a été simulée avec MCNPX associé avec INCL4/ABLA. La figure A.4 montre l'évolution de la pression telle qu'elle est mesurée par le capteur 2 et les résultats de la simulation.

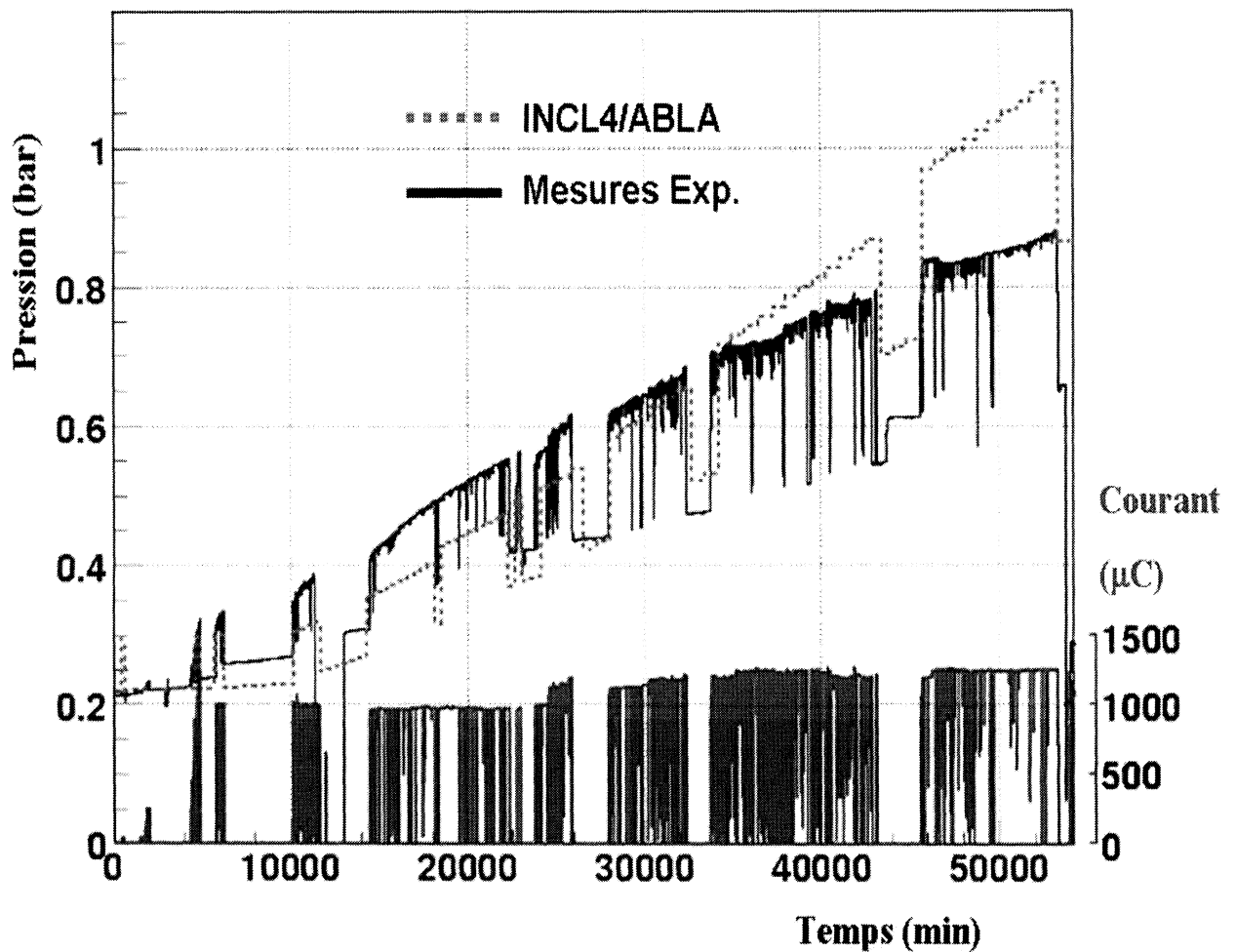


FIG. A.4 – L'évolution de la pression dans le vase d'expansion en fonction du temps d'irradiation obtenue expérimentalement et par simulation avec INCL4/ABLA. La ligne pleine indique les résultats des mesures de pression par le capteur 2 et les pointillés ceux de simulations INCL4/ABLA.

En regardant la figure A.4, nous voyons que les simulations prédisent une pression plus faible au début de l'irradiation et qu'au bout de 25 jours d'irradiation elles surestiment

la pression dans le vase d'expansion. Cependant, les allures des courbes expérimentale et simulée sont similaires ce qui laissent penser que la différence entre les résultats est due à des fuites de gaz ou à une défaillance du capteur. Les deux hypothèses sont plausibles.

Une fuite a été confirmée par la détection de ^{127}Xe dans la partie contenant de l'hélium et située entre la fenêtre et la double enceinte de confinement. L'effet des fuites peut être de deux natures. Les fuites peuvent participer à une augmentation de la pression dans le vase si l'hélium présent dans la partie comprise entre la fenêtre et la double enceinte de confinement migre vers le vase ou une diminution de pression dans le cas où les volatiles diffusent hors du vase vers l'extérieur.

La seconde hypothèse repose sur la qualité des mesures faites avec les capteurs dans des conditions très contraignantes : une forte irradiation par des protons énergétiques, des températures et des pressions élevées.

Identification et mesure de l'activité des éléments volatiles

Deux séries de mesures à partir d'échantillons pris dans le vase d'expansion ont été réalisées à des dates différentes pendant le fonctionnement de MEGAPIE. Les échantillons ont été analysés par γ -spectroscopie. Les résultats de la γ -spectroscopie sont montrés sur la figure A.5.

Nous notons dans le premier échantillon la présence d'isotopes de mercure et d'or (l'or est produit par la décroissance radioactive de noyaux de mercure.), tandis que dans le deuxième échantillon, ils ne sont pas observés. Une des explication de cette absence des noyaux lourds dans le second échantillon est liée à la procédure expérimentale de fabrication de l'échantillon. Le second échantillon a été préparé après qu'un courant d'argon ait balayé la ligne où se trouve l'échantillon. Donc, le courant d'argon a dû évacuer avec lui tous les isotopes de mercure et d'or ou encore ces isotopes ont dû se coller sur les parois des tubes du dispositif avant l'échantillonnage. Le mercure étant parmi les éléments les plus produits par spallation et très volatiles, il devrait être normalement observé au dessus de la surface libre de la cible liquide de MEGAPIE.

Des mesures réalisées au CERN pendant l'expérience IS419 ont montrés que le mercure produit par spallation est complètement relâché hors de la cible à 600 °C. Les résultats

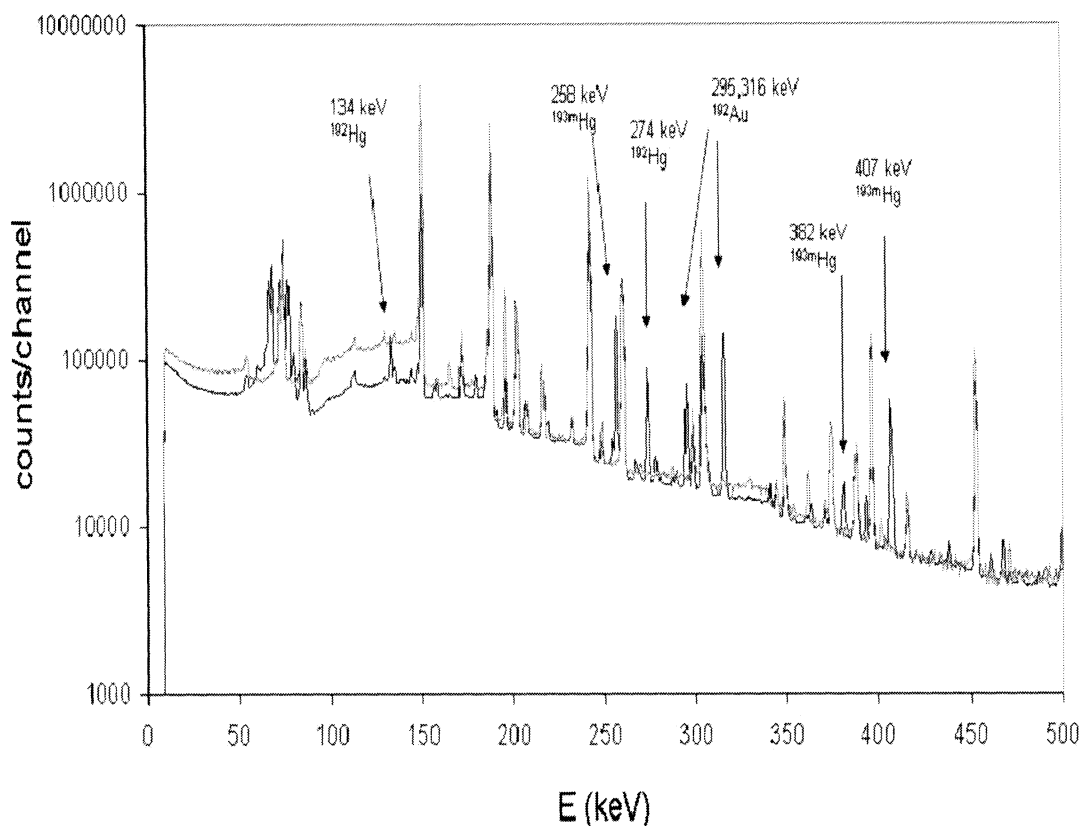


FIG. A.5 – Mesures par γ -spectroscopie de deux échantillons prélevés dans le vase d'expansion. La γ -spectroscopie ne détecte pas d'isotopes de mercure et d'or dans le premier échantillon dont les mesures sont représentées en violet. Les mesures du second échantillon en bleu montre des raies correspondant à des isotopes d'or et de mercure.

des mesures dans la référence [31] vont dans le même sens.

Nous présentons sur le tableau A.2 les activités mesurées des isotopes volatiles produits par spallation dans la cible au Pb-Bi liquide de MEGAPIE à l'aide du premier échantillon. Les activités mesurées sont comparées avec les résultats des simulations faites avec le code Monte Carlo MCNPX associé au modèle de cascade intranucléaire de Cugnon et à l'option d'évaporation-fission ABLA.

Sur la figure A.6, nous montrons les prédictions de MCNPX sur la production totale en grammes d'isotopes de mercure, d'or, d'argon, de krypton et de xénon par spallation à partir des 82 litres de Pb-Bi liquide de la cible.

Ces prédictions sont comparées aux mesures de relâchement au dessus de la surface

Isotope	Activité Exp (Bq)	Activité INCL4/ABLA (Bq)
^{41}Ar	$3,2 \cdot 10^2$	$1,0 \cdot 10^4$
^{79}Kr	$4,5 \cdot 10^5$	$1,8 \cdot 10^6$
^{88}Kr	$2,7 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 10^6$
^{122}Xe	$1,4 \cdot 10^4$	$8,4 \cdot 10^5$
^{125}Xe	$9,5 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^6$
^{127}Xe	$5,0 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^5$
^{135}Xe	$5,7 \cdot 10^2$	$1,7 \cdot 10^5$
^{192}Au	$3,4 \cdot 10^4$	$7,2 \cdot 10^8$
^{193}Au	$1,2 \cdot 10^4$	$6,9 \cdot 10^8$
^{195}Au	$1,2 \cdot 10^2$	$4,5 \cdot 10^6$
^{192}Hg	$1,8 \cdot 10^4$	$2,8 \cdot 10^8$
^{197}Hg	$2,1 \cdot 10^4$	$4,7 \cdot 10^8$
^{203}Hg	$5,0 \cdot 10^1$	$1,3 \cdot 10^7$

TAB. A.2 – Liste des isotopes diffusés dans le vase d'expansion : les activités des isotopes en Bq est obtenue expérimentalement et par simulation INCL4/ABLA.

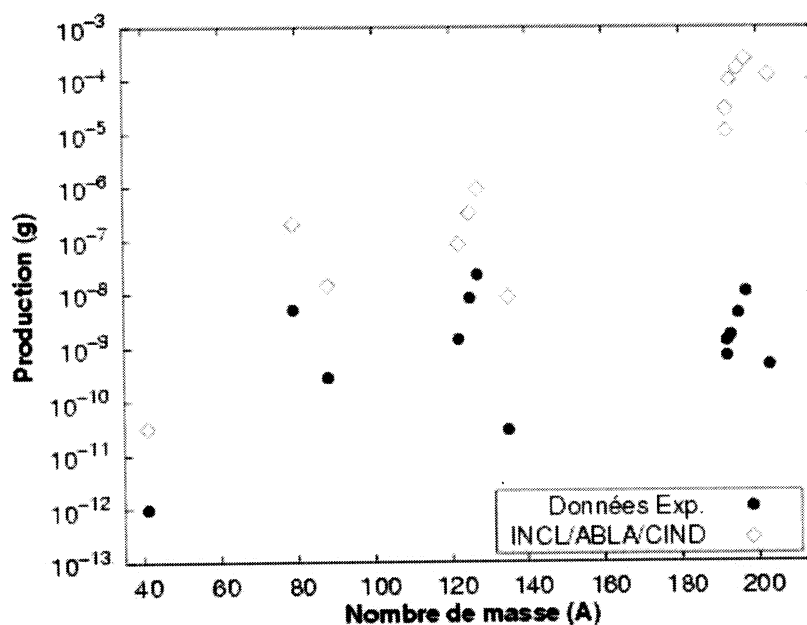


FIG. A.6 – Comparaison entre la production en gramme dans le vase d'expansion pour les isotopes d'argon, de krypton, de xénon, d'or et de mercure obtenue avec les simulations INCL4/ABLA et les mesures de relâchement des mêmes isotopes pris à partir d'un échantillon dans le vase d'expansion et normalisées au volume total du vase.

PROJET MEGAPIE ET PRODUCTION DE GAZ

libre de la cible de ces même isotopes. Nous constatons que les valeurs expérimentales sont plus faibles que les résultats simulés d'un certain facteur selon l'élément. Par exemple, le rapport entre les données expérimentales et celles des simulations est d'un facteur égal à 30 dans le cas d'isotopes d'argon et de 40 dans les cas du xénon et du krypton. Mais, la plus grande différence est notée pour les isotopes de mercure où les valeurs simulées sont plus de 34000 fois plus grandes que les données expérimentales.

En considérant que les simulations prédisent correctement les productions en isotopes volatiles dans la cible de MEGAPIE, nous pouvons conclure que les gaz rares et le mercure ne sont pas complètement relâchés hors de la cible. Seuls 2,5 % d'isotopes d'argon, de krypton ou de xénon diffusent hors de la cible liquide vers le volume d'expansion. Le pourcentage est beaucoup plus faible lorsqu'il s'agit d'isotopes de mercure, dans ce cas la fraction des isotopes relâchés est de $2,9 \cdot 10^{-5}$.

Au PSI, des calculs de diffusion du mercure hors de la cible de MEGAPIE [32] en considérant sa pression de vapeur et une température de 250 °C au dessus de la surface libre de la cible ont donnée une fraction de relâchement encore plus faible égale à $1,57 \cdot 10^{-6}$. En réalité la température dans le vase d'expansion est supérieure à 250 °C et se situe dans l'intervalle 280 - 285 °C. L'utilisation de la bonne température dans les calculs de diffusion aura l'effet d'augmenter le facteur de relâchement calculé et de réduire la différence avec le facteur calculé et celui obtenu expérimentalement.

Le faible relâchement noté dans le cas du mercure et des gaz rares peut s'expliquer par la longueur de la cible, l'irradiation de la cible se faisant par le bas la longueur de diffusion depuis la zone d'interaction jusqu'à la surface libre est très grande. La température de la cible aussi joue un rôle important dans la diffusion des éléments volatiles. Dans l'intervalle de température de la cible de MEGAPIE (300 ° à 400 °C), la diffusion du mercure hors de la cible est incomplète. Nous avons vu que même pour une cible moins épaisse telle que celle utilisée dans l'expérience ISOLDE le mercure n'est pas complètement relâché hors de la cible dans cet intervalle de température.

Conclusion

La mesure des relâchements d'isotopes volatiles dans le vase d'expansion au dessus de la surface libre de la cible liquide a montré que la diffusion hors de la cible est très faible dans le cas de MEGAPIE. La comparaison des données expérimentales avec les résultats des simulations montre que seule une très petite quantité des isotopes volatiles est relâchée jusqu'au vase d'expansion. Cette faible diffusion concerne même les éléments gazeux. La diffusion très faible dans MEGAPIE des éléments volatiles peut s'expliquer par la température de la cible, sa longueur et sa nature liquide. L'examen post-irradiation de la cible MEGAPIE cherchera à mesurer la production de tous les isotopes générés par spallation volatiles ou non. Cet examen est intéressant dans le cas où il permettra d'une part de connaître la production de radioisotopes très radiotoxiques comme le polonium et d'autre part à tester les codes de simulations.

PROJET MEGAPIE ET PRODUCTION DE GAZ

Annexe B

Compilation des résultats obtenus

Cette annexe regroupe l'ensemble des résultats que j'ai obtenu en analysant les mesures accumulées au cours de l'expérience IS419.

COMPILATION DES RÉSULTATS OBTENUS

Cible : Pb-Bi liquide, $T_{cible} = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$			
Isotopes	Taux de production mesurés (Atomes/ μC)	Bertini/Dresner (Atomes/ μC)	INCL4/ABLA (Atomes/ μC)
^{23}Ne	$1,676 \cdot 10^7$	$1,349 \cdot 10^8$	$1,500 \cdot 10^7$
^{24}Ne	$1,445 \cdot 10^7$	$1,298 \cdot 10^8$	$6,247 \cdot 10^6$
^{44}Ar	$1,652 \cdot 10^7$	$2,886 \cdot 10^8$	$3,889 \cdot 10^7$
^{79}Kr	$1,900 \cdot 10^9$	$3,718 \cdot 10^9$	$3,817 \cdot 10^9$
^{80}Kr	$5,330 \cdot 10^{10}$	$6,321 \cdot 10^9$	$9,248 \cdot 10^9$
^{81}Kr	$1,498 \cdot 10^9$	$4,988 \cdot 10^9$	$8,586 \cdot 10^9$
^{84}Kr	$9,290 \cdot 10^{10}$	$3,415 \cdot 10^9$	$8,183 \cdot 10^9$
^{88}Kr	$4,283 \cdot 10^8$	$8,278 \cdot 10^8$	$8,255 \cdot 10^8$
^{89}Kr	$8,549 \cdot 10^7$	$4,838 \cdot 10^8$	$3,707 \cdot 10^8$
^{90}Kr	$2,231 \cdot 10^7$	$4,238 \cdot 10^8$	$4,238 \cdot 10^8$
^{80}Br	$1,160 \cdot 10^6$	$2,555 \cdot 10^9$	$7,145 \cdot 10^9$
^{105}Cd	$4,270 \cdot 10^5$	$8,631 \cdot 10^8$	$5,362 \cdot 10^8$
^{111}Cd	$2,160 \cdot 10^7$	$2,865 \cdot 10^9$	$5,462 \cdot 10^9$
^{120}Xe	$3,170 \cdot 10^8$	$5,596 \cdot 10^8$	$4,316 \cdot 10^8$
^{121}Xe	$8,034 \cdot 10^8$	$1,207 \cdot 10^9$	$8,248 \cdot 10^8$
^{122}Xe	$8,768 \cdot 10^8$	$2,461 \cdot 10^9$	$8,971 \cdot 10^8$
^{123}Xe	$8,220 \cdot 10^8$	$3,370 \cdot 10^9$	$1,257 \cdot 10^9$
^{124}Xe	$3,999 \cdot 10^{10}$	$5,926 \cdot 10^9$	$1,551 \cdot 10^9$
^{125}Xe	$1,460 \cdot 10^9$	$6,809 \cdot 10^9$	$1,605 \cdot 10^9$
^{127}Xe	$1,430 \cdot 10^9$	$1,157 \cdot 10^{10}$	$2,029 \cdot 10^9$
^{129}Xe	$8,420 \cdot 10^8$	$1,670 \cdot 10^{10}$	$2,839 \cdot 10^9$
^{131}Xe	$1,540 \cdot 10^8$	$1,177 \cdot 10^9$	$4,759 \cdot 10^8$
^{133}Xe	$4,480 \cdot 10^7$	$3,210 \cdot 10^8$	$6,842 \cdot 10^7$
^{118}I	$1,843 \cdot 10^6$	$9,925 \cdot 10^8$	$5,824 \cdot 10^8$
^{119}I	$9,526 \cdot 10^6$	$2,432 \cdot 10^9$	$8,946 \cdot 10^8$

TAB. B.1 – Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une énergie faisceau de protons de $1,4\text{ GeV}$. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

COMPILATION DES RÉSULTATS OBTENUS

Cible : Pb-Bi liquide, $T_{cible} = 600\text{ °C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$			
Isotopes	Taux de production mesurés (Atomes/ μC)	Bertini/Dresner (Atomes/ μC)	INCL4/ABLA (Atomes/ μC)
^{120}I	$3,846 \cdot 10^6$	$3,252 \cdot 10^9$	$1,321 \cdot 10^9$
^{121}I	$1,441 \cdot 10^7$	$5,014 \cdot 10^9$	$1,866 \cdot 10^9$
^{123}I	$2,010 \cdot 10^8$	$6,519 \cdot 10^9$	$2,360 \cdot 10^9$
^{124}I	$1,000 \cdot 10^8$	$1,898 \cdot 10^9$	$9,575 \cdot 10^8$
^{126}I	$8,670 \cdot 10^7$	$8,500 \cdot 10^8$	$5,625 \cdot 10^8$
^{184}Hg	$3,261 \cdot 10^8$	$5,525 \cdot 10^8$	$5,746 \cdot 10^9$
^{186}Hg	$4,940 \cdot 10^9$	$4,039 \cdot 10^9$	$1,590 \cdot 10^{10}$
^{188}Hg	$5,501 \cdot 10^9$	$1,494 \cdot 10^{10}$	$3,016 \cdot 10^{10}$
^{190}Hg	$3,030 \cdot 10^{10}$	$2,958 \cdot 10^{10}$	$4,767 \cdot 10^{10}$
^{192}Hg	$7,660 \cdot 10^{10}$	$4,339 \cdot 10^{10}$	$6,451 \cdot 10^{10}$
^{193}Hg	$6,750 \cdot 10^{10}$	$5,901 \cdot 10^{10}$	$7,027 \cdot 10^{10}$
^{195}Hg	$7,570 \cdot 10^{10}$	$9,343 \cdot 10^{10}$	$8,570 \cdot 10^{10}$
^{197}Hg	$1,250 \cdot 10^{11}$	$1,153 \cdot 10^{11}$	$9,827 \cdot 10^{10}$
^{203}Hg	$7,420 \cdot 10^{10}$	$5,555 \cdot 10^9$	$8,429 \cdot 10^9$
^{205}Hg	$7,540 \cdot 10^8$	$2,683 \cdot 10^9$	$3,560 \cdot 10^9$
^{206}Hg	$1,897 \cdot 10^8$	$2,056 \cdot 10^9$	$1,666 \cdot 10^9$
^{204}At	$1,340 \cdot 10^6$	$9,380 \cdot 10^7$	$1,080 \cdot 10^8$
^{205}At	$1,250 \cdot 10^7$	$1,090 \cdot 10^8$	$1,410 \cdot 10^8$
^{206}At	$1,060 \cdot 10^7$	$8,250 \cdot 10^7$	$1,140 \cdot 10^8$
^{207}At	$3,590 \cdot 10^7$	$4,500 \cdot 10^7$	$7,130 \cdot 10^7$
^{208}At	$1,897 \cdot 10^7$	$2,250 \cdot 10^7$	$4,630 \cdot 10^7$
^{209}At	$5,480 \cdot 10^7$	$2,500 \cdot 10^6$	$4,250 \cdot 10^7$
^{210}At	$5,840 \cdot 10^7$	Nul	$1,250 \cdot 10^7$

TAB. B.2 – Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de 600 °C et une énergie faisceau de protons de 1,4 GeV. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

COMPILATION DES RÉSULTATS OBTENUS

Cible : Pb-Bi liquide, $T_{cible} = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1\text{ GeV}$			
Isotopes	Taux de production mesurés (Atomes/ μC)	Bertini/Dresner (Atomes/ μC)	INCL4/ABLA (Atomes/ μC)
^{41}Ar	$1,950 \cdot 10^8$	$4,474 \cdot 10^8$	$1,942 \cdot 10^8$
^{43}Ar	$3,560 \cdot 10^7$	$3,661 \cdot 10^8$	$6,604 \cdot 10^7$
^{44}Ar	$1,658 \cdot 10^7$	$2,964 \cdot 10^8$	$1,625 \cdot 10^7$
^{76}Kr	$1,390 \cdot 10^7$	$1,950 \cdot 10^8$	$8,130 \cdot 10^7$
^{77}Kr	$1,000 \cdot 10^8$	$6,787 \cdot 10^8$	$3,340 \cdot 10^8$
^{79}Kr	$1,000 \cdot 10^9$	$2,226 \cdot 10^9$	$2,330 \cdot 10^9$
^{85}Kr	$1,600 \cdot 10^9$	$2,708 \cdot 10^9$	$5,690 \cdot 10^9$
^{87}Kr	$1,120 \cdot 10^9$	$1,431 \cdot 10^9$	$1,870 \cdot 10^9$
^{88}Kr	$9,960 \cdot 10^8$	$1,136 \cdot 10^9$	$8,010 \cdot 10^8$

TAB. B.3 – Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une énergie faisceau de protons de 1 GeV . Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

COMPILATION DES RÉSULTATS OBTENUS

Cible : Pb-Bi liquide, $T_{cible} = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1\text{ GeV}$			
Isotopes	Taux de production mesurés (Atomes/ μC)	Bertini/Dresner (Atomes/ μC)	INCL4/ABLA (Atomes/ μC)
^{89}Kr	$6,010 \cdot 10^7$	$7,147 \cdot 10^8$	$3,250 \cdot 10^8$
^{90}Kr	$1,184 \cdot 10^7$	$6,691 \cdot 10^8$	$1,340 \cdot 10^8$
^{80m}Br	$5,730 \cdot 10^5$	$1,819 \cdot 10^9$	$5,739 \cdot 10^9$
^{107}Cd	$6,590 \cdot 10^7$	$1,340 \cdot 10^9$	$1,387 \cdot 10^9$
^{111}Cd	$1,270 \cdot 10^7$	$1,726 \cdot 10^9$	$3,929 \cdot 10^9$
^{115}Cd	$4,610 \cdot 10^6$	$7,976 \cdot 10^8$	$1,488 \cdot 10^9$
^{120}Xe	$1,130 \cdot 10^7$	$1,300 \cdot 10^8$	$2,012 \cdot 10^8$
^{121}Xe	$1,719 \cdot 10^8$	$2,488 \cdot 10^8$	$4,037 \cdot 10^8$
^{122}Xe	$5,280 \cdot 10^8$	$4,585 \cdot 10^8$	$5,910 \cdot 10^8$
^{123}Xe	$7,169 \cdot 10^8$	$6,157 \cdot 10^8$	$8,960 \cdot 10^8$
^{125}Xe	$1,293 \cdot 10^9$	$1,032 \cdot 10^9$	$1,284 \cdot 10^9$
^{127}Xe	$1,670 \cdot 10^9$	$1,267 \cdot 10^9$	$1,366 \cdot 10^9$
^{129}Xe	$3,790 \cdot 10^8$	$5,760 \cdot 10^8$	$6,223 \cdot 10^8$
^{131}Xe	$1,200 \cdot 10^8$	$2,290 \cdot 10^8$	$1,459 \cdot 10^8$
^{133}Xe	$2,660 \cdot 10^7$	$1,325 \cdot 10^8$	$6,306 \cdot 10^7$
^{135}Xe	$5,380 \cdot 10^6$	$7,797 \cdot 10^7$	$1,260 \cdot 10^7$
^{121}I	$6,703 \cdot 10^6$	$1,279 \cdot 10^9$	$1,314 \cdot 10^9$
^{124}I	$5,530 \cdot 10^6$	$7,613 \cdot 10^8$	$8,538 \cdot 10^8$
^{126}I	$1,040 \cdot 10^7$	$5,850 \cdot 10^8$	$5,700 \cdot 10^8$
^{186}Hg	$3,949 \cdot 10^9$	$5,472 \cdot 10^9$	$1,986 \cdot 10^{10}$
^{188}Hg	$5,237 \cdot 10^9$	$1,998 \cdot 10^{10}$	$3,675 \cdot 10^{10}$
^{189}Hg	$1,870 \cdot 10^{10}$	$2,215 \cdot 10^{10}$	$4,779 \cdot 10^{10}$
^{190}Hg	$2,033 \cdot 10^{10}$	$3,869 \cdot 10^{10}$	$5,586 \cdot 10^{10}$
^{191}Hg	$1,930 \cdot 10^{10}$	$4,207 \cdot 10^{10}$	$6,510 \cdot 10^{10}$
^{192}Hg	$3,630 \cdot 10^{10}$	$5,169 \cdot 10^{10}$	$7,368 \cdot 10^{10}$
^{193}Hg	$3,739 \cdot 10^{10}$	$6,429 \cdot 10^{10}$	$7,960 \cdot 10^{10}$
^{195}Hg	$4,286 \cdot 10^{10}$	$4,854 \cdot 10^{10}$	$9,295 \cdot 10^{10}$
^{197}Hg	$1,120 \cdot 10^{11}$	$9,793 \cdot 10^{10}$	$5,550 \cdot 10^{10}$
^{203}Hg	$3,880 \cdot 10^9$	$4,983 \cdot 10^9$	$7,638 \cdot 10^9$
^{205}Hg	$5,890 \cdot 10^8$	$2,371 \cdot 10^9$	$3,308 \cdot 10^9$
^{203}At	$9,670 \cdot 10^5$	$9,380 \cdot 10^7$	$1,150 \cdot 10^8$
^{204}At	$1,671 \cdot 10^6$	$1,150 \cdot 10^8$	$1,160 \cdot 10^8$
^{206}At	$7,610 \cdot 10^6$	$5,000 \cdot 10^7$	$1,350 \cdot 10^8$
^{207}At	$1,310 \cdot 10^7$	$3,630 \cdot 10^7$	$9,500 \cdot 10^7$
^{208}At	$2,096 \cdot 10^7$	$1,250 \cdot 10^7$	$6,250 \cdot 10^7$
^{209}At	$1,870 \cdot 10^7$	Nul	$3,250 \cdot 10^7$
^{210}At	$4,954 \cdot 10^7$	Nul	$3,750 \cdot 10^6$

TAB. B.4 – Mesure avec une cible de spallation au Pb-Bi liquide portée à la température de $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une énergie faisceau de protons de 1 GeV . Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

COMPILATION DES RÉSULTATS OBTENUS

Cible : Pb-Bi liquide	
$T_{cible} = 500\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$	
Isotopes	Taux de relâchement mesurés (Atomes/ μC)
^{80}Br	$1,870 \cdot 10^5$
^{111}Cd	$1,090 \cdot 10^6$
^{123}Xe	$2,900 \cdot 10^7$
^{203}Hg	$4,570 \cdot 10^8$
^{204}At	$8,240 \cdot 10^4$
^{209}At	$5,080 \cdot 10^6$
$T_{cible} = 400\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$	
^{80}Br	$2,590 \cdot 10^5$
^{111m}Cd	$6,620 \cdot 10^5$
^{123}Xe	$1,350 \cdot 10^7$
^{203}Hg	$2,130 \cdot 10^8$
^{204}At	$1,620 \cdot 10^4$
^{206}At	$1,370 \cdot 10^6$
^{207}At	$1,180 \cdot 10^7$
^{208}At	$8,990 \cdot 10^6$
^{209}At	$2,710 \cdot 10^7$
^{210}At	$4,340 \cdot 10^7$
$T_{cible} = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$	
^{80}Br	$6,040 \cdot 10^4$
^{111m}Cd	$7,990 \cdot 10^3$
^{123}Xe	$1,580 \cdot 10^7$
^{203}Hg	$1,390 \cdot 10^8$
^{208}At	$1,140 \cdot 10^4$
^{209}At	$3,800 \cdot 10^4$
^{210}At	$7,310 \cdot 10^4$
$T_{cible} = 250\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$	
^{24}Ne	$2,530 \cdot 10^4$
^{87}Kr	$4,650 \cdot 10^6$
^{111m}Cd	$1,940 \cdot 10^3$
^{123}Xe	$7,100 \cdot 10^6$
^{190}Hg	$5,180 \cdot 10^7$
^{203}Hg	$3,800 \cdot 10^7$
^{209}At	$2,760 \cdot 10^3$

TAB. B.5 – Taux de relâchement de différents isotopes mesurés pour des température de la cible au Pb-Bi liquide de 500, 400, 300 et 250 °C.

Cible : Pb liquide, $T_{cible} = 520\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_P = 1,4\text{ GeV}$			
Isotopes	Taux de production mesurés (Atomes/ μC)	Bertini/dresner (Atomes/ μC)	INCL4/ABLA (Atomes/ μC)
^4He	$2,81 \cdot 10^{12}$	$1 \cdot 10^7$	$2,5 \cdot 10^6$

TAB. B.6 – Mesure avec une cible de spallation au Pb liquide portée à la température de $520\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une énergie faisceau de protons de $1,4\text{ GeV}$. Les données expérimentales sont comparées aux résultats des simulations Monte Carlo MCNPX (Bertini/Dresner et INCL4/ABLA).

COMPILATION DES RÉSULTATS OBTENUS

Bibliographie

- [1] IEA World Energy Outlook 2006 - Année 2004.
- [2] World energy council. <http://www.worldenergy.org/>.
- [3] Loi n° 91-1381 du 31 décembre relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Journal Officiel - lois et décrets.
- [4] Loi n° 2006-739 du 28 juin de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, J.O n° 149 du 29 juin 2006 page 9721.
- [5] A European Roadmap for Developing Accelerator-Driven Systems(ADS) for Nuclear Waste Incineration, Report of the European Technical Working Group on ADS, April, 2001.
- [6] Inventaire national des déchets radioactifs et des matières valorisables. Edition 2004.
- [7] Glenn T. Seaborg. *Inelastic scattering of neutrons*. PhD thesis, University California Berkeley, 1937.
- [8] R. Van de Graaff. A 1 500 000 volt electrostatic generator, Phys. Rev., vol. 38, p. 1919 (1931).
- [9] R. Wideröe, Arch. Elektrotech. Vol 21, p. 387 (1928).
- [10] E. O. Lawrence *et al.* Electronuclear reactor. April 19, 1960. United States Patent n° 2,933,442.
- [11] C. D. Bowman *et al.*, Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Rev. A320, p. 336-367 (1992).
- [12] C. Rubbia *et al.*, Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier, CERN/AT/95-44(ET) (1995).

BIBLIOGRAPHIE

- [13] F. Varaine, Processus et faisabilité de la transmutation des déchets nucléaires à vie longue, Ecole Joliot-Curie, 2006.
- [14] G. Bauer, MEGAPIE Baseline Summary Report, Paul Scherrer Institut (2000).
- [15] W. Wagner *et al.* Proceedings of the megapie technical review meetings. In *Measurements of Gas and Volatile Elements Production Rates in a proton irradiated Molten Lead-Bismuth Target : Preliminary results*, Nantes, France, May 2004.
- [16] 814.501 Ordonnance du 22 juin 1994 sur la radioprotection (ORap).
- [17] L. Waters *et al.* *MCNPX User's Manual Version 2.4.0*. September 2002.
- [18] G. S. Bauer, 2nd International Conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies, Kalmar, Sweden, 1996, p. 159.
- [19] G. S. Bauer, Vienna, TECDOC-836, 1995, p. 97.
- [20] Review of the Spallation Neutron Source (SNS), DOE/ER-0705, 1997.
- [21] The Joint Project for High-Intensity Proton Accelerators, JAERI-Tech 99-056.
- [22] F. Rejmund *et al.*, Nucl. Phys. A 683 (2001) 540-565.
- [23] J. Benlliure *et al.*, Nucl. Phys. A 654 (1999) 833c-836c.
- [24] W. Wlazolek *et al.*, Cross Sections of Spallation Residues Produced in 1A GeV ^{208}Pb on Proton Reactions, Phys. Rev. Lett. 84, 5737 (2000).
- [25] T. Enqvist *et al.*, *Isotopic yields and kinetic energies of primary residues in 1 A GeV $^{208}\text{Pb} + p$ reactions*, Nucl. Phys. A 686 (2001) 481-524.
- [26] Yu. E. Titarenko *et al.*, Phys. Rev. C 65, 064610.
- [27] M. Enke *et al.*, *Evolution of a spallation reaction : experiment and Monte Carlo simulation*, Nucl. Instr. and Meth. A 657, 317 (1999).
- [28] S. Leray *et al.*, Phys. Rev. C 65, 044621 (2002).
- [29] I. Leya *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 229 (2005) 1-23.
- [30] J. Neuhausen *et al.*, Radiochim. Acta, 92, 917 (2004).
- [31] J. Neuhausen *et al.*, Radiochim. Acta, 93, 155 (2005).
- [32] J. Neuhausen, Gas phase concentrations of volatile nuclear reaction products in the MEGAPIE expansion tank, communication privée PSI (2005).

BIBLIOGRAPHIE

- [33] R. Serber, Phys. Rev. 72, 1114 (1947).
- [34] V. Weisskopf, Phys. Rev. 52, 295 (1937).
- [35] R. Vandenbosh and J. R. Huizenga, *Nuclear fission*, (Academic Press, New York 1973).
- [36] N. Bohr, J. A. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426 (1939).
- [37] H. A. Kramers, Physika VII 4 (1940) 284.
- [38] H. Risiken, "THE FOKKER-PLANCK EQUATION", Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1989, ISBN (0-387-50498-2).
- [39] A. Fick, Ann. Physik, Leipzig, 170, p. 59, 1885.
- [40] D. Cubicciotti *et al.*, J. Phys. Chem. 63, 295 (1959).
- [41] J.H> de Boer, *The dynamical character of adsorption*, Clarendon Press Oxford (1969).
- [42] R. Kirchner *et al.*, An ion source with bunched beam release, Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. B 26 (1987).
- [43] R. Kirchner, *On the release and ionization efficiency of catcher-ion-source systems in isotope separation on-line*, Nucl. Instr. and Meth. B 70 (1992) 186-199.
- [44] H. W. Bertini, Phys. Rev. 131, 1801 (1963).
- [45] H. W. Bertini, Phys. Rev. 188, 1711 (1969).
- [46] N. Metropolis *et al.*, Phys. Rev. 110, 185 (1958).
- [47] R. Hofstadter, Revs. Modern Phys. 28, 214 (1956).
- [48] J. Cugnon, Nucl. Phys. A 389, 191c (1982).
- [49] J. Cugnon, M. C. Lemaire, Nucl. Phys. A 489, 781 (1988).
- [50] A. Boudard *et al.*, Phys. Rev. C 66, (2002) 044615.
- [51] J. Cugnon, T. Mizutani and J. Vandermeulen, Nucl. Phys. A 352, 505 (1996).
- [52] J. Cugnon, D. L'Hôte and J. Vandermeulen, Nucl. Instr. and Meth. B 111, 215 (1996).
- [53] L. W. Dresner, rapport ORNL-TM-196 (1962).
- [54] I. Dostrovsky *et al.*, Phys. Rev. 111, 1659 (1958).

BIBLIOGRAPHIE

- [55] I. Dostrovsky *et al.*, Phys. Rev. 116, 683 (1959).
- [56] I. Dostrovsky *et al.*, Phys. Rev. 118, 781 (1960).
- [57] A. Gilbert et A. G. Cameron, Can. J. of Phys., 43 1446 (1965).
- [58] A. V. Ignatyuk *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys., 21(3) : 255, March 1975.
- [59] F. Atchison, Proceedings of a specialists' meeting, Issy-les-Moulineaux, France (1994).
- [60] R. Vandenbosch et J. R. Huizenga, *Nuclear Fission*, Academic Press, New York, 1973.
- [61] L. G. Morreto *al.*, Phys. Rev. Lett., 75 4186 (1995).
- [62] S. Furihata, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 171, (2000) 251.
- [63] A. R. Junghans, M. de Jong, H. G. Clerc, A. V. Ignatyuk, G. A. Kudyaev, and K. H. Schmidt, Nucl. Phys. A629, 635 (1998).
- [64] A. J. Sierk, Phys. Rev. C 33, 2039 (1986).
- [65] W. B. Wilson, T. R. England and P. Möller, A Manual for CINDER'90 Version 06.1 Codes and Data, LA-UR-06-draft Los Alamos National Laboratory, New Mexico (2006).
- [66] F. Mann *et al.*, Transmutation of Alloys in MFE Facilities as Calculated by REAC, Handford Engineering Development Laboratory report HEDL-TME 81-37 (1982).
- [67] CERN-European Organization for Nuclear Research. Isolde web. <http://www94.web.cern.ch/ISOLDE/>.
- [68] J. Lettry *et al.*, Release from ISOLDE molten metal targets under pulsed proton beam conditions, Nucl. Instr. and Meth. B 126, (1997) 170-175.
- [69] K. Skala and G. S. Bauer, ICANS-XIII, Int. Conf. Advanced Neutron Sources, PSI Proc. 95-02 (1995) 559.
- [70] R. Kirchner *et al.*, Intense beams of mass-separated, neutron-deficient indium, tin, thallium and lead isotopes, Nucl. Instr. and. Meth. Phys. Res. A234 (1985).
- [71] Canberra Industries. *Genie 2000 Spectroscopy System Operations*. 2006.
- [72] M. Knudsen. *The Kinetic Theory of Gases*, Methuen & Co., London (1934).

- [73] R. Kirchner, *Release studies of elementary and metal-fluoride ions at the GSI on-line mass separator*, Nucl. Instr. and Meth. B 126, pages 135-140, (1997).
- [74] J. Lettry, Proceedings of the 1999 Particle accelerator conference, New York, 1999.
- [75] C. Villagrasa *et al.*, Phys. Rev. c 75, 044603 (2007).
- [76] J.L. Clark *et al.*, Phys. Rev. C 26, 2073 (1982).
- [77] J.L. Clark *et al.*, Phys. Rev. C 27, 1126 (1983).
- [78] J-M. Delbecq, J-L Rouyer, M. Rozenholec et P. Azria, EDF et le nucléaire à long terme. Edition 2004.
- [79] J.F. Briesmeister, MCNP - A general Monte-Carlo N-Particle Transport Code. Los Alamos Laboratory report LA-12625-M(1997).
- [80] M. Salvatores *et al.* The megapie initiative, executive outline and status as per november 1999. *MPO-4-GB-6/0-GB*, November 1999.
- [81] H. Bateman, Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations, *Proc. Cambridge Philos. Soc.* 15 (1910), pp. 423-427.
- [82] <http://www.gsi.de>.
- [83] Y. Tall *et al.*, Volatile element production production rates in a proton-irradiated molten lead-bismuth target, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, (2007).
- [84] L. Zanini *et al.*, Volatile Elements Production Rates in a 1.4 GeV Proton-Irradiated molten Lead-Bismuth Target, in International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, R. C. Haight *et al.*, Eds., Melville, New York, 2005, p. 1525.
- [85] U. Köster, Ausbeuten und Spektroskopie radioactiver Isotope bei LOHENGRIN und ISOLDE, PhD thesis, Technische Universität München, (2000) and references therein.
- [86] J. Lettry *et al.*, Pulse shape of the ISOLDE radioactive ion beams, Nucl. Instr. and Meth. B 126, 130 (1997).
- [87] E. Moll *et al.*, Kerntechnik 19, 374 (1977).

BIBLIOGRAPHIE

- [88] S. Leray *et al.*, Spallation neutron production by 0.8, 1.2, and 1.6 GeV protons on various targets, Phys. Rev. C 65, 044621 (2002).
- [89] B. Lott *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A 414, 100 (1998).
- [90] J.-J. Gaimard and K.-H. Schmidt, Nucl. Phys. A531, 709 (1991).
- [91] J. P. Bondorf, A. S. Botvina, A. S. Iljinov, I. N. Mishustin, and K. Sneppen, Phys. Rep. 257, 133-221 (1995).
- [92] Y. Yariv and Z. Fraenkel, Phys. Rev. C 20, 2227 (1979).
- [93] O. A. Schaeffer, A. Zahringer, Phys. Rev. 113 (1959) 674.
- [94] R. H. Bieri, W. Rutsch, Helvetica Physica Acta 35 (1992) 553.
- [95] K. Goebel, H. Schultes, J. Zähringer, Report CERN 64-12 (1964).
- [96] S. L. Green, W. V. Green, F. H. Hegedus, M. Victoria, W. F. Sommer, B. M. Olivier, J. Nucl. Mater. 115-117 (1988) 1350.
- [97] R. Michel, M. Glorius, H. -J. Lange, I. Leya, M. Lüpke, U. Herpers, B. Dittrich-Hannen, R. Rösel, TH. Schiek, D. Filges, P. Dragovitsch, M. Suter, H. -J. Hofmann, W. Wölfl, P. W. Kubik, H. Baur, R. Wieler, Nucl. Instr. and Meth. B 103 (1995) 183.
- [98] U. Köster *et al.*, ISOLDE target and ion source chemistry, Radiochim. Acta 89, 749-756 (2001).

BIBLIOGRAPHIE

Résumé

Le projet EUROTRANS (European Research Programme for the Transmutation of High Level Nuclear Waste in an Accelerator Driven System) du 6ème PCRD (Programme Cadre de Recherche et de Développement) cherche à démontrer la faisabilité de la transmutation des déchets radioactifs à haute activité dans un ADS (Accelerator Driven Sub-critical system) en définissant le design avancé d'un démonstrateur expérimental et en étudiant le concept d'une installation industrielle dédiée. Un ADS se compose de trois éléments fondamentaux : l'accélérateur de protons, le cœur sous-critique et la cible de spallation, dont l'étude d'un concept en Pb-Bi (Plomb-Bismuth) liquide engage une partie des effectifs du laboratoire SUBATECH (physique SUBAtomique et des TECHNOlogies associées) de Nantes. L'irradiation d'une cible de Pb-Bi liquide par un faisceau de protons énergétiques génère par réaction de spallation une grande quantité d'isotopes radiotoxiques, souvent volatiles ou gazeux, dont la production nécessite d'être quantifiée afin d'être gérée efficacement. Tel est l'objectif de ce travail de thèse qui s'appuie sur l'expérience IS419 réalisée au CERN (Centre Européen de la Recherche Nucléaire) en Suisse. Les taux de relâchement de nombreux éléments volatiles et gazeux ont été mesurés sur l'installation ISOLDE en fonction de l'énergie du faisceau de proton et de la température en utilisant des détecteurs germanium et des cages de Faraday. Les résultats obtenus sont comparés aux simulations du code Monte Carlo MCNPX afin de tester certains modèles implémentés dans le code comme les cascades intranucléaires de Cugnon et de Dresner ainsi que les options d'évaporation-fission de Bertini et de Schmidt.

Mots clés : Spallation, ADS, Taux de relâchement, Eléments gazeux et volatiles, Cible épaisse, Plomb-Bismuth liquide, ISOLDE, MEGAPIE, EUROTRANS, MCNPX

Abstract

The integrated project EUROTRANS (European Research Programme for the Transmutation of High Level Nuclear Waste in an Accelerator Driven System) of the 6th Euratom Framework Programme aims to demonstrate the transmutation of radioactive waste in ADS (Accelerator Driven Sub-critical system). It will carry out a first advanced design of an experimental facility to demonstrate the technical faisability of transmutation, and will produce a conceptual design of an industrial facility dedicated to transmutation. An ADS consists of three fundamental elements : the accelerator of protons, the sub-critical core and the spallation target. SUBATECH (physique SUBAtomique et des TECHNOlogies associées) laboratory is involved to the study of the chosen liquid lead-bismuth as a spallation ADS target. The irradiation of liquid lead-bismuth target with energetic proton beam generates in addition to neutrons, volatile and radioactive residues. In order to determine experimentally the production rates of gas and volatile elements following a spallation reaction in a lead-bismuth target, the experiment IS419 was performed at the ISOLDE facility at CERN (Centre Européen de la Recherche Nucléaire). This experiment constitutes the frame of the thesis whose main objective is to assess and study the production and release rates of many gas and volatile element from the irradiated lead-bismuth target with an energetic proton beam. The obtained data are compared to Monte Carlo simulation code (MCNPX) results in order to test the intranuclear cascade model of Bertini and of Cugnon, and the evaporation options of Dresner and Schmidt.

Key words : Spallation, ADS, Release rate, Gas and volatile elements, Thick target, liquid lead-bismuth, ISOLDE, MEGAPIE, EUROTRANS, MCNPX