Développement et optimisation de techniques de mesure par spectrométrie gamma. Maîtrise et réduction des incertitudes associées

Pierre Leconte

▶ **To cite this version:**

Pierre Leconte. Développement et optimisation de techniques de mesure par spectrométrie gamma. Maîtrise et réduction des incertitudes associées. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2006. Français. NNT : 2006CLF21684 . tel-00703303

HAL Id: tel-00703303

https://theses.hal.science/tel-00703303

Submitted on 1 Jun 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

DEVELOPPEMENT ET OPTIMISATION DE TECHNIQUES DE MESURE PAR SPECTROMETRIE GAMMA – MAITRISE ET REDUCTION DES INCERTITUDES ASSOCIEES

THESE

N° 496

présentée et soutenue publiquement le 25 octobre 2006

pour l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE CLERMONT-FERRAND II

(SPECIALITE PHYSIQUE DES REACTEURS)

par

Pierre LECONTE

Composition du jury :

Président :	Pr. J. CASTOR	Université de Clermont-Ferrand
Rapporteurs :	Pr. P. REUSS	INSTN Saclay
	Pr. R. BRISSOT	LPSC Grenoble
Directeur de thèse :	Dr. A. LYOUSSI	CEA Cadarache
Responsable de thèse :	Dr. J-P. HUDELOT	CEA Cadarache
Invité :	Dr. G. IMEL	Argonne National Laboratory

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été réalisée au Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) de Cadarache, au sein du Laboratoire des Programmes Expérimentaux (LPE) du Service de Physique Expérimentale (SPEx).

Je suis très reconnaissant à C. MERGUI, chef du SPEx, de m'avoiraccueilli au sein de son équipe, ainsi qu'à D. RIPPERT et G. BIGNAN pour avoir soutenu ce sujet de thèse.

Je tiens à remercier tout particulièrement A. LYOUSSI qui en a assuré la direction. Son expertise de la mesure nucléaire et ses conseils sur l'orientation dela thèse ont été très fructueux.

Toute ma gratitude va à J-P. HUDELOT pour l'encadrement de lathèse. Il a su définir un sujet de recherche à la fois très ambitieux par les objectifs qui étaient fixés et très enrichissant par l'aspect pluridisciplinaire des domaines abordés. Son implication au cours de la thèse fut un parfait compromis entre un suivi minutieux de mes travaux et une certaine liberté accordée dans la démarche scientifique. Elle fut très propice à la genèse des idées et au développement de mon goût pour la recherche. Je suis également très honoré de la confiance qu'ilm'a accordée en soutenant mes travaux pour qu'ils soient présentés lors de réunions, groupes de travailet congrès. Je tiens aussi à le remercier pour son implication dans mes démarches d'insertion professionnelle. Dernier point, et non des moindres, je tiens à souligner ses qualités humaines qui ont été de réels atouts pour que la thèse se déroule dans les meilleures conditions.

Je souhaite exprimer mes plus vifs remerciements à P. FOUGERAS, chef du LPE, pour son suivi attentif de l'avancement de la thèse et pour le soutienqu'il m'a accordé en valorisant mes travaux auprès d'autres équipes du CEA. Son intérêt pour la Physique des Réacteurs, et plus généralement pour l'aspect scientifique et technique du nucléaire, futtrès communicatif et motivant !

Je tiens à remercier M. ANTONY pour les marges de manœuvre qu'elle a su dégager pour permettre la réalisation de mes mesures au cours des différents programmes expérimentaux.

J'adresse mes plus vifs remerciements à J-M. GIRARD pour son entrain et sa contribution à une meilleure synergie entre mes activités et celles de l'équipe de dosimétrie. Ce fut un réel plaisir de travailler avec lui et avec H. PHILIBERT, C. DOMERGUE, C. DESTOUCHES et D. BERETZ.

J'associe à cette thèse l'équipe d'exploitants S. TESTANIERE, B. VINCENT, J-F. LEDOUX, P. ALEXANDRE et O. ALBERTI, pour leur implication dans la réalisation des expériences et pour avoir supporté des temps de doublement de 350 secondes ! Je n'oublie pas que c'est grâce à une certaine « flexibilité » de leur part que des découvertes, comme celle présentée dans le premier chapitre de la partie V, ont été rendues possibles. Je remercie J-P. WIERYZKOW et D. GARNIER, pour leur aide à la conception et à la fabrication de pièces mécaniques.

Je suis très reconnaissant à N. THIOLLAY de m'avoir aidé àprendre en main les outils de calcul de neutronique, en particulier le code APOLLO2.

Je tiens également à témoigner ma plus grande reconnaissance à MC. LEPY, J. PLAGNARD, J. MOREL, P. BLANCHIS et MM. BE du LNHB pour le temps qu'ils ont passé à répondre à mes interrogations et pour leur contribution majeure à ce travail de thèse. Les discussions techniques sur les réglages des électroniques de mesure, sur les coïncidences vraies, sur les incertitudes et sur les logiciels d'ajustement de spectres γ, ont été passionnantes et très enrichissantes. Elles ont beaucoup contribué au développement de mon intérêt pour la spectrométrie γ.

Je remercie D. BERNARD, G. NOGUERRE et A. SANTAMARINA du LEPh dont les compétences en neutronique et dans le domaine des données nucléaires de base ont été très profitables à la partie IV de ce mémoire. J' ai une pensée particulière pour O. SEROT, sans lequel le dernier chapitre de la partie V n' aurait jamais vu le jour.

Ne pouvant citer tous ceux qui de près ou de loin ont contribué à cette thèse, j' aurais une pensée pour tous ceux qui, au-delà de leurs compétences techniques, ont participé à une ambiance de travail unique et incomparable, faisant de ces trois années, une tranche de vie de pur plaisir.

Un grand merci à tous mes camarades et ami(e)s de Cadarache, stagiaires ou thésard(e)s, qui ont contribué à l' aboutissement de cette thèse. Je citerai par exemple:

- David, mon ex-voisin du hameau, pour les soirées guitare sur notre balcon commun et pour m' avoir appris à me faire connaître par le CCRT et Bruyères-le-Châtel…
- El Diablo et GG, pour les super virées Bordelaises et Barcelonaises,
- Jeremy le chtiot, pour m' avoir fait connaître une certaine voisine du hameau,
- Jérémie le fou et Tintin, pour les soirées gastronomiques (à grand renfort d' huile d' olive) et les excursions improbables dans le Lubéron profond,
- Sarah, Val, Emeric, Jean-Michel, Sylvain 1 et 2, Stéphanie, Nat et Julien, toute l' équipe de la communauté du hameau avec qui j' ai passé de supers étés.

J' associe bien évidemment ma sœur et mes parents au succès de cette thèse. J' ai une pensée émue pour le premier livre d' astronomie qui m' a été offert à l'âge de 7 ans et qui reste marqué comme l' élément déclencheur de mon intérêt pour la science. Je ne pourrai jamais suffisamment remercier ma mère d' avoir été si attentive à mon parcours scolaire et d' avoir respecté des choix qui n' étaient pas forcément les plus évidents, mon père pour le goût de l' effort et du dépassement de soi qu' il m' a inconsciemment transmis par son implication passionnée dans son travail, ainsi que ma sœur pour m' avoir toujours soutenu dans les différentes étapes de mes études (depuis les premiers cahiers d' exercices qu' elle rédigeait consciencieusement pour la réussite de son frère en école primaire !).

Le mot de la fin sera pour la plus française des italiennes (Aïe ! Non ! Pas sur la tête !). Sans son soutien de tous les instants au pire des *rompipalli*, cette thèse ne se serait jamais si bien déroulée. *Sai che ti voglio bene* ?

RESUME

Dans le cadre de l'amélioration et de la qualification des formulaires de calcul neutronique, ce travail de thèse consiste en la conception, l'optimisation et le développement de techniques de mesures par spectrométrie γ de paramètres intégraux, dans les réacteurs EOLE et MINERVE. L'objectif est d'aboutir à des résultats de mesure maîtrisés et d'incertitude réduite. In fine, les progrès réalisés visent à progresser sur l'interprétation des écarts calcul / expérience et à améliorer la connaissance de données nucléaires de base et en particulier de sections efficaces intégrales de capture et de fission.

Tout d'abord, il s'agissait de caractériser l'instrumentation utilisée par le passé afin d'identifier et de quantifier les erreurs commises sur les mesures de paramètres neutroniques. La thèse met en évidence l'existence d'un biais systématique allant jusqu'à 12% sur les mesures de recalage de taux de fission et jusqu'à 3% sur les mesures de laplacien géométrique axial, en raison d'une mauvaise prise en compte du phénomène de temps mort sur les anciennes chaînes de mesure (amplificateur 2026 et codeur / analyseur PCA3). Grâce à une étude comparative aboutissant à leur remplacement par des systèmes numériques DSP2060, ces biais systématiques ont été supprimés. La mise en place d'une méthodologie d'optimisation de ses réglages permet désormais un fonctionnement précis à mieux que 0.5% jusqu'à un taux de comptage de 1.5×10^{5} s^{-1}. Ce travail offre de nouvelles perspectives d'expériences qui n'auraient pu être réalisées auparavant avec un niveau d'incertitude suffisant.

Ensuite, une analyse critique des méthodes de traitement des données brutes de mesure et de propagation des incertitudes a été menée. Des sources d'erreurs systématiques, qui n'étaient pas prises en compte par le passé, sont désormais corrigées. Elles concernent l'influence de la décroissance d'activité sur la correction du temps mort (environ 2%), le phénomène de coïncidences vraies (environ 5%) et les effets d'angle solide sur l'autoabsorption γ (environ 8%). Par ailleurs, la mise en place de méthodes rigoureuses de propagation des incertitudes permet la réduction au moins d'un facteur 3 de l'incertitude sur la mesure de paramètres fondamentaux de la neutronique – recalage de taux de fission (environ 0.6%) et laplacien géométrique axial (environ 0.7%) – et au moins d'un facteur 2 sur la mesure du taux de conversion de l'uranium 238 (environ 1.5%).

Ces progrès sont mis à profit pour la conception et la réalisation de mesures participant à la qualification de sections efficaces d'actinides (^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{242}Pu) et d'absorbants neutroniques (^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf). La comparaison des mesures de rapports cadmium et d'indices de capture, par rapport à des calculs déterministes APOLLO2 et probabilistes MCNP4C2 avec les bibliothèques JEF2.2 , ENDF/B-VI.8 ou JEFF3.1, met en évidence des biais systématiques atteignant jusqu'à 50% sur certaines sections de capture, avec une incertitude expérimentale meilleure que 2%.

Enfin, des expériences dédiées à la qualification de données de décroissance ont été mises au point pour la toute première fois au LPE. Une erreur de 5% sur l'évaluation JEFF3.1 de la période radioactive du strontium 92 a été identifiée. Cette donnée nucléaire a été réévaluée par des expériences spécifiques, conduisant à une incertitude diminuée d'un facteur 2. Par ailleurs, des fluctuations des rendements de fission de la réaction ^{235}U(n,f) ont été observées entre des spectres neutroniques thermique et épithermique, allant de –0.8% à +2%. L'étude aboutit à l'émission de recommandations sur les méthodes d'évaluation du rendement effectif de fission pour des réacteurs de type sous-modéré.

Mots-clés : Spectrométrie γ, Mesures intégrales, Incertitudes, Formulaire de calcul, Taux de réaction, Sections efficaces, Actinides, Absorbants neutroniques, Période radioactive, Rendements de fission.

SUMMARY

In the frameworks of the neutronics calculation schemes improvement and qualification, this thesis consists of the conception, the optimization and the development of γ-ray spectrometry techniques for the measurement of integral parameters, in the EOLE and MINERVE facilities. The work aims at correcting systematic errors and at controlling and reducing uncertainties on the measurement results. The achieved progresses allow a more precise comparison between calculations and experiments and a better knowledge of some nuclear data, especially integral capture and fission cross sections.

Firstly, the former instrumentation – using an analog chain (2026 amplifier and PCA3 converter / analyser) – has been fully tested to estimate the experimental errors on the determination of neutronics parameters. This work shows a systematic bias up to 12% on the measurement of the power distribution scaling factor and up to 3% on the measurement of the axial buckling, due to the lack of pulse pile-up correction. Following a comparative study, these electronics have been replaced by a digital DSP2060 system with an adapted dead time correction. With the optimization of its parameters, a precision at better than 0.5% has been achieved until a 1.5×10^{5} s^{-1} count rate. Consequently, this work allows new kinds of experiments, which could not have been done with a sufficient precision by the past.

Secondly, the former methods applied to the treatment of measurement raw data and to the variance propagation, have been analysed and discussed. Different systematic errors, which were not taken into account by the past, are now corrected. They concern the influence of the activity decay on the dead time correction (about 2%), the true coincidence effect (about 5%) and the solid angle effect on the efficiency transfer corrections (about 8%). Besides, the description of more precise methods for the variance propagation leads to a 3 times better uncertainty on fundamental neutronics parameters – scaling factor on power distributions (about 0.6%) and axial buckling (about 0.7%) – and a 2 times better uncertainty on the measurement of the uranium 238 conversion ratio (about 1.5%).

These progresses have been applied to the conception of experiments in support to the qualification of cross sections, for actinides (^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{242}Pu) and neutron absorbers (^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf). The comparison of capture cadmium ratio and capture index measurements, with APOLLO2 deterministic calculations or MCNP4C2 probabilistic calculations, with the JEF2.2 , ENDF/B-VI.8 ore JEFF3.1 libraries, shows systematic biases on the integral capture cross sections up to 50% for certain isotopes, with an experimental uncertainty better than 2%.

Lastly, experiments dedicated to the qualification of decay data have been carried out for the first time in the Experimental Program Laboratory (LPE) of CEA Cadarache. A systematic error of about 5% has been identified on the JEFF3.1 evaluation of the half-life of strontium 92. This nuclear data has been revaluated with specific measurements, with a 2 times better uncertainty compared with the past. Fission yield fluctuations on the ^{235}U(n,f) reaction have also been identified between a thermal and an epithermal neutronics spectra, from -0.8% to +2%. The study gives some recommendations on the calculation method to estimate the average fission yield, for under-moderated reactor concepts.

Keywords : γ-ray spectrometry, Integral measurements, Uncertainties, Neutronics calculation schemes, Reaction rates, Cross sections, Actinides, Neutron absorbers, Half-lives, Fission yields.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE 1

PARTIE I : LES MESURES PAR SPECTROMETRIE γ EN SOUTIEN A LA QUALIFICATION DES FORMULAIRES DE CALCUL 7

INTRODUCTION 9

CHAPITRE 1 : CONTEXTE DE L' ETUDE 11
1 INTRODUCTION 11
2 LA NOTION D'INCERTITUDE 11
2.1 CONCEPTS FONDAMENTAUX 12
2.2 ESTIMATION DES INCERTITUDES 13
2.3 COMBINAISON DE PLUSIEURS RESULTATS DE MESURE 14
3 BESOINS EN QUALIFICATION DES FORMULAIRES DE CALCUL 16
3.1 CODES ET SCHEMAS DE CALCULS 16
3.2 DONNEES NUCLEAIRES DE BASE 17
4 LES MAQUETTES CRITIQUES 18
4.1 L'INTERET DES MAQUETTES CRITIQUES 18
4.2 PRESENTATION DES REACTEURS EOLE ET MINERVE 19
5 TECHNIQUES DE MESURE ASSOCIEES 21
5.1 MESURES PAR CHAMBRE A FISSION 21
5.2 MESURES PAR OSCILLATION 22
5.3 MESURES PAR SPECTROMETRIE γ 22
6 CONCLUSION 23

CHAPITRE 2 : GENERALITES SUR LA SPECTROMETIE γ 25
1 INTRODUCTION 25
2 GENERALITES SUR LA RADIOACTIVITE 25
2.1 DESINTEGRATION RADIOACTIVE 25
2.2 TRANSFORMATIONS ASSOCIEES 26
2.3 L'INTERACTION DES RAYONNEMENTS AVEC LA MATIERE 27
3 PRESENTATION D'UNE CHAINE DE SPECTROMETRIE γ 28
3.1 DETECTEURS 28
3.2 CHAINE DE MESURE ASSOCIEE 29
4 TRAITEMENT DES DONNEES BRUTES DE MESURE 30
4.1 IDENTIFICATION DES RADIONUCLEIDES 31
4.2 MESURE D'ACTIVITE 31
5 LIMITATIONS DE LA TECHNIQUE DE MESURE 32
5.1 TEMPS MORT ELECTRONIQUE 33
5.2 RESOLUTION EN ENERGIE 34
5.3 SURFACES NETTES DES PICS 35
5.4 COÏNCIDENCES VRAIES 37
5.5 ETALONNAGE EN RENDEMENT 37
6 CONCLUSION 38

CHAPITRE 3 : LES MESURES PAR SPECTROMETIE γ APPLIQUEES SUR EOLE ET MINERVE 39
1 INTRODUCTION 39
2 PRESENTATIONDES BANCS DE MESURE UTILISES 39

3 TECHNIQUE DE SPECTROMETRIE γ ASSOCIEES 41
3.1 LA SPECTROMETRIE γ INTEGRALE 41
3.2 LA SPECTROMETRIE γ DE PIC PARTICULIER 42
4 IDENTIFICATION DES BESOINS 44
4.1 IDENTIFICATION ET CORRECTION DES ERREURS SYSTEMATIQUES 44
4.2 ESTIMATION ET REDUCTION DES INCERTITUDES 47
5 CONCLUSION 50

CONCLUSION 51

PARTIE II : DEVELOPPEMENT ET OPTIMISATION DE TECHNIQUES DE MESURE PAR SPECTROMETRIE γ 53

INTRODUCTION 55

CHAPITRE 1 : OPTIMISATION DE L' INSTRUMENTATION PARSPECTROMETRIE γ 57
1 INTRODUCTION 57
2 ETUDE COMPARATIVE D'ELECTRONIQUES DE MESURE 57
2.1 PRESENTATION DES ELECTRONIQUES DE MESURE 58
2.2 FONCTIONNEMENT QUALITATIF 60
2.3 PERFORMANCES QUANTITATIVES 63
2.4 CONCLUSION DE L'ETUDE COMPARATIVE 66
3 OPTIMISATION DES REGLAGES DE LA CHAINE DSP 2060 67
3.1 OPTIMISATION QUALITATIVE 67
3.2 PERFORMANCES QUANTITATIVES 70
4 METHODOLOGIE D'ANALYSE DES SPECTRES γ 75
4.1 METHODES DE TRAITEMENT DES SPECTRES 75
4.2 ETUDE DE SENSIBILITE AUX PARAMETRES D'ANALYSE 77
4.3 COMPARAISON DES METHODES DE CALCUL DE SURFACE NETTE 79
4.4 LIMITATIONS DU LOGICIEL D'ANALYSE 81
5 CONCLUSION 88

CHAPITRE 2 : METHODOLOGIE DE TRAITEMENT DES MESURES ABSOLUES DE TAUX DE REACTION 89
1 INTRODUCTION 89
2 EQUATIONS GENERALES 89
2.1 EQUATIONS D'EVOLUTION 89
2.2 EXPRESSION DU TAUX DE FISSION 91
3 TAUX DE COMPTAGE A SATURATION 93
3.1 ACTIVITE RESIDUELLE 93
3.2 FACTEUR DE CORRECTION DE TEMPS MORT 94
3.3 FACTEUR DE CORRECTION DES COÏNCIDENCES VRAIES 97
3.4 FACTEUR DE CORRECTION DE DECROISSANCE 98
4 ETALONNAGE EN RENDEMENT DES DETECTEURS 100
4.1 METHODE D'EVALUATION DU RENDEMENT 100
4.2 MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE 101
5 CORRECTIONS DE TRANSFERT DE RENDEMENT 104
5.1 METHODE DE CALCUL DU TRANSFERT DE RENDEMENT 104
5.2 CALCUL DE LA DISTRIBUTION SPATIALE DES TAUX DE REACTION 105
5.3 CALCUL DE TRANSPORT PHOTONIQUE 107
6 RENDEMENT EFFECTIF DE FISSION 109
6.1 METHODE D'EVALUATION DU RENDEMENT DE FISSION 109
6.2 CALCUL DES PROBABILITES DE FISSION PAR ISOTOPE FISSIONNABLE 111
7 CONCLUSION 111

CHAPITRE 3 : TRAITEMENT DES INCERTITUDES SUR LES MESURES RELATIVES DE TAUX DE REACTION 113
1 INTRODUCTION 113
2 INCERTITUDES SUR LES RECALAGES DE TAUX DE FISSION 113
2.1 IDENTIFICATION DES PARAMETRES DE SENSIBILITE 113
2.2 ESTIMATION DES INCERTITUDES EXPERIMENTALES 114
2.3 ESTIMATION DES INCERTITUDES LIEES AUX CALCULS ET AUX DONNEES NUCLEAIRES DE BASE 115
2.4 COMBINAISON DE PLUSIEURS RESULTATS DE MESURE 118
3 INCERTITUDES SUR LES INDICES DE CAPTURE 120
3.1 IDENTIFICATION DES PARAMETRES DE SENSIBILITE 120
3.2 ESTIMATION DES INCERTITUDES EXPERIMENTALES 120
3.3 ESTIMATION DES INCERTITUDES LIEES AUX CALCULS ET AUX DONNEES NUCLEAIRES DE BASE 124
3.4 COMBINAISON DE PLUSIEURS RESULTATS DE MESURE 126
4 CONCLUSION 129

CONCLUSION 131

PARTIE III : DEVELOPPEMENT ET OPTIMISATION DE MESURES DE DISTRIBUTION DE TAUX DE FISSION 133

INTRODUCTION 135

CHAPITRE 1 : MESURE DE RECALAGE DE TAUX DE FISSION D' UN CRAYON COMBUSTIBLE UMOAL 137
1 INTRODUCTION 137
2 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES 137
3 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX 139
3.1 TAUX DE COMPTAGE A SATURATION 139
3.2 TRANSFERTS DE RENDEMENT 143
3.3 RENDEMENTS EFFECTIFS DE FISSION 145
3.4 SYNTHESE DES FACTEURS DE RECALAGE MESURES 147
4 INTERPRETATION 149
5 CONCLUSION 151

CHAPITRE 2 : MESURE DE PROFIL AXIAL DE TAUX DE FISSION TOTAL SUR CRAYON COMBUSTIBLE 153
1 INTRODUCTION 153
2 ETUDE DU BANC DE MESURE PAR CALCUL MONTE-CARLO 154
2.1 SCHEMA DE CALCUL MCNP DU BANC DE MESURE AXIAL 154
2.2 COMPARAISON DU PROFIL MESURE AU PROFIL REEL 155
2.3 OPTIMISATION DE LA GEOMETRIE DU BANC DE MESURE 157
3 COMPARAISON DE TECHNIQUES DE MESURE 158
3.1 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES 158
3.2 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX 159
4 EXTRACTION DU LAPLACIEN GEOMETRIQUE 164
4.1 METHODE DE DETERMINATION DU LAPLACIEN 164
4.2 TRAITEMENT DES PROFILS AXIAUX DE TAUX DE FISSION MESURES 164
4.3 COMPARAISON CALCUL / EXPERIENCE 166
5 INFLUENCE DE LA CHAINE DE MESURE 167
6 CONCLUSION 169

CONCLUSION 171

PARTIE IV : DEVELOPPEMENT DE MESURES CONTRIBUANT A LA QUALIFICATION DE SECTIONS EFFICACES 173

INTRODUCTION 175

CHAPITRE 1 : MESURES DE TAUX DE CAPTURE 177
1 INTRODUCTION 177
2 ETUDE PRELIMINAIRE 177
2.1 ISOTOPES ADAPTES A LA MESURE PAR SPECTROMETRIE γ 177
2.2 CONCEPTIONS MECANIQUES 179
2.3 ETUDE DES PHENOMENES PERTURBATEURS DE FLUORESCENCE X 180
3 DESCRITPTION DES MESURES REALISEES 181
4 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX 183
4.1 TAUX DE COMPTAGE A SATURATION 183
4.2 TRANSFERTS DE RENDEMENT 188
4.3 RENDEMENTS EFFECTIFS DE FISSION 191
4.4 SYNTHESE DES RAPPORTS CADMIUM DE CAPTURE 193
4.5 SYNTHESE DES INDICES DE CAPTURE 194
5 CONCLUSION 201

CHAPITRE 2 : INTERPRETATION DES MESURES DE TAUX DE CAPTURE 203
1 INTRODUCTION 203
2 SYNTHESE DES EVALUATIONS EXISTANTES 203
2.1 URANIUM 238 203
2.2 ABSORBANTS NEUTRONIQUES 204
2.3 ACTINIDES 208
3 CALCUL DES TAUX DE REACTION 211
3.1 PRESENTATION DES FORMULAIRES DE CALCUL 211
3.2 SYNTHESE DES CALCULS DE RAPPORT CADMIUM DE CAPTURE 212
3.3 SYNTHESE DES CALCULS D'INDICE DE CAPTURE 212
4 COMPARAISON CALCUL / EXPERIENCE 214
4.1 CAPTURE (N,2N) DE L'URANIUM 238 214
4.2 TAUX DE CONVERSION DE L'URANIUM 238 216
4.3 CAPTURE (N,γ) DE L'EUROPIUM 151 ET 153 219
4.4 CAPTURE (N,γ) DU DYSPROSIUM 164 219
4.5 CAPTURE (N, γ) DE L'ERBIUM 170 221
4.6 CAPTURE (N, γ) DE L'HAFNIUM 180 222
4.7 CAPTURE (N,γ) DU THORIUM 232 223
4.8 CAPTURE (N,γ) DE L'URANIUM 236 224
4.9 CAPTURE (N,γ) DU NEPTUNIUM 237 225
4.10 CAPTURE (N,γ) DU PLUTONIUM 242 226
5 CONCLUSION 227

CONCLUSION 229

PARTIE V : CONCEPTION DE MESURES PARTICIPANT A LA QUALIFICATION DE DONNEES DE DECROISSANCE 231

INTRODUCTION 233

CHAPITRE 1 : MESURE DE LA PERIODE RADIOACTIVE DU STRONTIUM 92 235
1 INTRODUCTION 235
2 EVALUATIONS EXISTANTES 235
3 DESCRIPTION DE LA TECHNIQUE EXPERIMENTALE 236

4 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES 237
5 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX 239
6 RETOUR SUR EXPERIENCE AVEC L'EVALUATION OBTENUE 241
6.1 MESURE DE RECALAGE DE TAUX DE FISSION UMOAL / U3 241
6.2 MESURE D'INDICE DE CAPTURE DES ECHANTILLONS PU242 ET TH232 241
7 CONCLUSION 243

CHAPITRE 2 : ETUDE DES RENDEMENTS DE FISSION DE L' URANIUM 235 245
1 INTRODUCTION 245
2 DISTRIBUTION EN MASSE DES RENDEMENTS DE FISSION 245
3 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES 247
4 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX 248
4.1 TAUX DE COMPTAGE A SATURATION 248
4.2 RENDEMENTS D'ABSORPTION TOTALE 249
4.3 TRANSFERTS DE RENDEMENT 250
4.4 RENDEMENTS EFFECTIFS DE FISSION 252
4.5 SYNTHESE DES TAUX DE FISSION 253
4.6 SYNTHESE DES RAPPORTS CADMIUM DE FISSION 254
5 INTERPRETATION 255
5.1 ANALYSE DES MESURES DE TAUX DE FISSION 255
5.2 ANALYSE DES MESURES DE RAPPORT CADMIUM DE FISSION 257
6 CONCLUSION 260

CONCLUSION 261

CONCLUSION GENERALE 263

REFERENCES 271

LISTE DES TABLEAUX 287

LISTE DES FIGURES 293

ANNEXES 299

ANNEXE A : DONNEES STATISTIQUES 301

ANNEXE B : DONNEES NUCLEAIRES DE BASE 303

ANNEXE C : CODES ET SCHEMAS DE CALCUL 309

ANNEXE D : DONNEES EXPERIMENTALES 319

GLOSSAIRE

Notation	Définition
A	Nombre de masse (nombre de nucléons : protons + neutrons)
$A(t)$	Activité à un instant t en Becquerel (1 Bq = 1 désintégration par seconde)
α	Rayonnement alpha
ADC	**A**nalog to **D**igital **C**onverter
AG3	Alliage d'aluminium (97%) et de magnésium (3%)
AIC	Alliage d'argent (80%), d'indium (15%) et de cadmium (5%)
APOLLO	Code déterministe de calcul du transport neutronique, développé par le CEA en partenariat avec EDF et AREVA.
β	Rayonnement bêta
B_4C	Carbure de bore
CANDU	**CAN**adian **D**euterium **U**ranium
CBU	**C**redit **B**urn **U**p
CEA	**C**ommissariat à l'**E**nergie **A**tomique
$I_\gamma(E)$	Probabilité d'émission de la raie γ d'énergie E
DEN	**D**irection de l'**E**nergie **N**ucléaire
Dénal	Alliage constitué de tungstène, de nickel et de chrome.
DER	**D**épartement d'**E**tudes des **R**éacteurs
DSP	**D**igital **S**ignal **P**rocessing
E	Energie en eV
EDF	**E**lectricité **D**e **France**
ENDF/B	**E**valuated **N**uclear **D**ata **F**ile / **B**rookhaven version **VI** : évaluation américaine des données nucléaires
ENSDF	**E**valuated **N**uclear **S**tructure **D**ata **F**ile
EPR	**E**uropean **P**ressurized water **R**eactor
ETNA	**E**fficiency **T**ransfer for **N**uclide **A**ctivity measurements : code de calcul des corrections de coïncidences vraies, développé par le LNHB
EXFOR	**EX**perimental **FOR**ce
Φ	Flux neutronique en $cm^{-2}.s^{-1}$
F	Taux de fission total en s^{-1}
γ	Rayonnement gamma
FT	**F**lat **T**op

FUBILA	**FU**ll MOX study in **B**oiling water reactor **I**nitiated to **LA**ttice calculation validation (programme expérimental dans le réacteur EOLE)
Ge[HP]	Détecteur au **G**ermanium **H**yper-**P**ur
GI	**G**ated **I**ntegrator
H_f / H_p	Rapport de la **H**auteur nette du **f**ond continu sur la **H**auteur nette du **p**ic
HLD	**H**igh **L**evel **D**iscriminator
HTR	**H**igh **T**emperature **R**eactor
ICR	**I**ncoming **C**ount **R**ate
I_o	Intégrale de résonance (intégrale de la section efficace de 0.5 à 10^5 eV)
IRMM	**I**nstitute for **R**eference **M**aterials and **M**easurements
JEF	**J**oint **E**valuated **F**ile : évaluation européenne des données nucléaires
JEFF	**J**oint **E**valuated **F**ission and **F**usion
JENDL	**J**apanese **E**valuated **N**uclear **D**ata **L**ibrary
k	Facteur d' élargissement des incertitudes
K_{eff}	Facteur de multiplication effectif
LEGe	**L**ow **E**nergy **Ge**rmanium (type de détecteur de spectrométrie γ)
LEPh	**L**aboratoire d'**E**tudes **Ph**ysiques
LLD	**L**ow **L**evel **D**iscriminator
LNHB	**L**aboratoire **N**ational **H**enri **B**ecquerel
LPE	**L**aboratoire des **P**rogrammes **E**xpérimentaux
LTMH	**L**argeur **T**otale à **M**i-**H**auteur en keV (equivalent à FWHM = Full Width at Half Maximum)
LT TRIM	**L**ive **T**ime **TRIM**ing
MCNP	**M**onte-**C**arlo **N**-**P**article : code de calcul de transport neutronique et photonique utilisant la méthode de Monte-Carlo
MCA	**M**ulti-**C**hannel **A**nalyser
MCS	**M**ulti-**C**hannel **S**caling
MM-RNR	**M**ulti-**M**odal **R**andom-**N**eck **R**upture
MORGANE	Réseau dans MINERVE représentatif d' un spectre de RSM
MOX	**M**ixed **Ox**ide
$n_{sat}(t)$	Taux de comptage à saturation à un instant t en s^{-1}
OCEAN	**O**scillations en **C**œur d'**É**chantillons d'**A**bsorbants **N**eutronique (programme expérimental dans le réacteur MINERVE)
OSMOSE	**OS**cillation dans **M**inerve d' i**O**topes dans des **S**pectres **E**upraxiques (programme expérimental dans le réacteur MINERVE)

pcm	**p**our **c**ent **m**ille (10^{-5})
ppm	**p**artie **p**ar **m**illion (10^{-6})
PHA	**P**ulse **H**eight **A**nalysis
P_{ij}	Méthode des probabilités de première collision
ρ_i	Probabilité de taux de réaction dans la couronne de combustible d'indice i
PUR	**P**ile **U**p **R**ejection
PZ	**P**ôle **Z**éro
R1-UO2	Réseau dans MINERVE représentatif d'un spectre de REP-UO2
R1-MOX	Réseau dans MINERVE représentatif d'un spectre de REP-MOX
R2-UO2	Réseau dans MINERVE représentatif d'un spectre de dissolveur
RT	**R**ise **T**ime
$R^P(E)$	Rendement d'absorption totale à l'énergie E
$R^T(E)$	Rendement total à l'énergie E
REB	**R**éacteur à **E**au **B**ouillante (Boiling Water Reactor)
REL	**R**éacteur à **E**au **L**égère (Light Water Reactor)
REP	**R**éacteur à **E**au **P**ressurisée (Pressurized Water Reactor)
RJH	**R**éacteur **J**ules **H**orowitz
RNR	**R**éacteur à **N**eutrons **R**apides
RSM	**R**éacteur **S**ous **M**odéré
$s(x)$	Estimateur de l'écart-type (*standard deviation*) sur x
σ	Section efficace microscopique en barn (1 b = 10^{-24} cm^2)
Σ	Section efficace macroscopique en cm^{-1}
σ_{2200}	Section efficace à l'énergie thermique (0.0253 eV, soit 2200 m.s^{-1})
$\sigma(n,f)$	Section efficace de fission
$\sigma(n,2n)$	Section efficace de capture de type (n,2n)
$\sigma(n,\gamma)$	Section efficace de capture radiative
σ_{fiss}	Section efficace moyennée sur un spectre neutronique de fission
S_N	Méthode de résolution des ordonnées discrètes
SPEx	**S**ervice de **P**hysique **Ex**périmentale
$T(E)$	Transfert de rendement à l'énergie E
$\tau_{i,g}$	Probabilité de fission de l'isotope i, pour des neutrons appartenant au groupe d'énergie g
TLD	**T**hermo **L**uminescent **D**etector
TTL	**T**ransistor **T**ransistor **L**ogic

$u(x)$	Incertitude (*uncertainty*) sur x
$u^2_{\text{int}}(\bar{x})$	Variance interne de la moyenne $\bar{x}$
UNGG	Réacteur à **U**ranium **N**aturel, modéré au **G**raphite et à caloporteur **G**az
UO_2	Oxyde d'Uranium
URE	**U**ranium de **RE**traitement
VALMONT	**VAL**idation du combustible Aluminium **MO**lybdène Uranium pour la **N**eu**T**ronique (programme expérimental dans le réacteur MINERVE)
VHTR	**V**ery **H**igh **T**emperature **R**eactor
ω_j	Probabilité de taux de réaction dans la tranche de combustible d'indice j
WPEC	**W**orking **P**arty in International Nuclear Data **E**valuation and **C**ooperation
$\bar{x}$	Moyenne de la population x
ξ	Post-correction du temps mort pour la prise en compte de la décroissance radioactive au cours de la mesure
$y_{i,g}(X)$	Rendement de fission indépendant du produit de fission X, provenant de la fission de l'isotope i, pour des neutrons appartenant au groupe d'énergie g
$Y_{i,g}(X)$	Rendement de fission cumulé du produit de fission X, provenant de la fission de l'isotope i, pour des neutrons appartenant au groupe d'énergie g
$\bar{Y}(X)$	Rendement effectif de fission du produit de fission X
Z	Nombre de protons
Zircaloy-4	Alliage de zirconium utilisé pour le gainage des crayons combustibles des REL

INTRODUCTION GENERALE

CONTEXTE GENERAL

Au cours du vingtième siècle, les besoins énergétiques de l'humanité ont connu une croissance sans équivalent. Pour répondre à cette demande, mais aussi pour assurer l'indépendance énergétique à l'issue des chocs pétroliers de 1973 et 1979, de nombreux pays se sont orientés vers la production d'électricité d'origine nucléaire. Ce tournant majeur dans l'approvisionnement énergétique s'est traduit, en France, par le développement de recherches, essentiellement au sein du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), et par la réalisation de vastes programmes électronucléaires faisant intervenir deux acteurs majeurs : AREVA, constructeur des centrales, et Electricité de France (EDF) leur exploitant. Après la mise en place, à partir de 1956, d'une première filière de réacteurs de type Uranium Naturel Graphite Gaz (UNGG), cette technologie a été abandonnée en 1969 au profit de celle des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) qui équipe désormais, la majorité des 58 réacteurs nucléaires français en fonctionnement.

Malgré ce formidable essor industriel, cette source d'énergie est aujourd'hui l'objet de multiples controverses. En effet, si elle est économiquement compétitive et si elle émet peu de gaz à effet de serre, elle produit cependant des déchets nocifs à longue durée de vie dont la question du devenir n'est pas encore décidée. Par ailleurs, les accidents de Three Miles Island en 1979 et de Tchernobyl en 1986 ont fait évoluer la perception de l'énergie nucléaire par les sociétés civiles qui positionnent désormais les questions de sûreté au cœur du débat. Aujourd'hui, la production d'énergie par la voie nucléaire doit faire face à trois enjeux majeurs :

- l'amélioration de la **compétitivité**,
- l'accroissement de la **fiabilité**,
- la réduction de la **quantité de déchets produits**.

Pour satisfaire à ces exigences, l'exploitant cherche à optimiser le fonctionnement de ses réacteurs par la mise en place de nouveaux modes de pilotage. Actuellement, les deux principaux axes d'étude portent sur **l'allongement des campagnes** permettant d'utiliser le combustible jusqu'à un taux d'épuisement plus élevé, et sur l'**introduction de plutonium** dans les REP, dont certains recyclent jusqu'à 30% de combustible mixte uranium-plutonium (MOX ou *mixed oxide*). Pour pouvoir mettre en œuvre ces options, l'exploitant doit disposer notamment d'outils de calcul qui lui permettent d'accroître ses limites (ou marges) de fonctionnement, tout en assurant un haut niveau de sûreté. Ces outils sont constitués de différentes composantes **[1]** :

- des *données technologiques* : bilan matière, dimensions, caractéristiques physiques,
- des *données nucléaires de base* : sections efficaces, données de décroissance.
- un *code de calcul* qui permet la résolution numérique des équations du problème,
- un *schéma de calcul* pour la modélisation du système physique,
- un *jeu de recommandations* des paramètres de modélisation,

Cet ensemble cohérent constitue un **formulaire de calcul neutronique**. Pour s'assurer de la représentativité des résultats fournis, un formulaire doit être qualifié par rapport à des expériences simples, réalisées dans des cœurs « maquettes », représentatifs des réacteurs de puissance. La confrontation entre l'expérience et le calcul permet de valider des grandeurs neutroniques clés tels que les facteurs de multiplication effectifs, les laplaciens géométriques ou les taux de réaction.

A ce jour, trois réacteurs expérimentaux sont utilisés en France, par le CEA, pour répondre à ces besoins. Il s'agit des maquettes critiques EOLE, MINERVE et MASURCA, implantées sur le site de Cadarache et exploitées par le Service de Physique Expérimentale (SPEx) du Département d'Etude des Réacteurs (DER). Ces réacteurs sont des structures d'accueil pour des cœurs représentatifs de tout type de filière. Depuis près de 50 ans, différentes techniques expérimentales y sont développées : mesures par chambre à fission, par spectrométrie γ, par oscillation, dosimétrie neutron et photon.

La spectrométrie γ est l'une des techniques les plus usités, en particulier sur le réacteur EOLE où elle constitue le principal outil de caractérisation des taux de réaction. Aussi l'amélioration de la qualité des formulaires de calcul passe-t-elle nécessairement par la mise en œuvre d'expériences maîtrisées et d'incertitudes réduites. Or, compte tenu de l'environnement sévère dans lequel cette technique de mesure est employée, des phénomènes limitatifs sont susceptibles d'introduire des erreurs systématiques qui doivent être appréciées et quantifiées. Par ailleurs, l'obtention des grandeurs physiques d'intérêt n'étant jamais directe, des facteurs correctifs doivent être appliqués aux résultats bruts de mesure. Ils sont entachés d'incertitudes qu'il faut savoir évaluer et propager.

ENJEUX DE LA THESE

C'est dans cette optique d'amélioration de la précision des mesures par spectrométrie γ de grandeurs neutroniques de type intégral[1] que s'inscrit ce travail de recherche. Plus précisément, il s'agit d'**optimiser des techniques de mesure par spectrométrie γ** développées pour la physique des réacteurs, de **concevoir des expériences innovantes** pour la qualification des formulaires de calcul neutroniques et enfin d'**aboutir à des incertitudes maîtrisées et réduites** sur les grandeurs mesurées.

Par le passé, les techniques de spectrométrie γ appliquées aux réacteurs du SPEx, étaient essentiellement destinées aux études de distribution de taux de fission total (proportionnel à la puissance neutronique) et à la caractérisation du taux de conversion (taux de capture de l'uranium 238 normalisé au taux de fission total). Plusieurs effets limitatifs pénalisaient l'interprétation des mesures, en particulier l'instrumentation utilisée, dont la capacité de traitement n'était pas en adéquation avec la quantité d'informations reçues par le détecteur. Pour certaines expériences, ce phénomène conduisait à des incohérences et à l'affectation d'incertitudes « enveloppes » sur les résultats de mesure, sans toutefois être capable d'estimer précisément les erreurs commises.

L'un des objectifs de cette thèse est d'inverser cette approche. En effet, c'est par l'utilisation de chaînes de mesure optimisées et caractérisées que l'incertitude sur le résultat de mesure pourra être réduite. Pour ce faire, une connaissance approfondie des paramètres d'influence est nécessaire, notamment : le temps mort électronique, les coïncidences vraies, les étalonnages, l'autoabsorption γ. Le but du travail est de réduire les incertitudes sur les mesures d'activité à un niveau comparable à celui atteint par des laboratoires de pointe, tel que le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB).

Par ailleurs, l'un des enjeux majeurs de la thèse réside dans l'amélioration de la connaissance des données nucléaires de base, en s'appuyant sur les programmes expérimentaux en cours de réalisation dans le réacteur MINERVE. Plus précisément, il s'agit de mettre en évidence des tendances sur les sections efficaces de capture neutronique proposées dans les bibliothèques afin d'identifier des besoins d'amélioration, mais également de réduire les incertitudes sur des données de décroissance par la conception et la mise au point de mesures novatrices pour le SPEx.

[1] Ces grandeurs neutroniques sont dites « intégrales » car elles s'expriment à partir d'intégrales sur l'espace des phases (espace et énergie).

PLAN DU MEMOIRE

La thèse comporte donc un **volet purement expérimental**, qui consiste en l'optimisation de l'instrumentation, la conception de dispositifs de mesure et la réalisation d'expériences sur réacteur. Elle comprend également **des études calculatoires**, axées sur l'interprétation des mesures à partir de différents formulaires de calcul et l'identification de tendances sur les données nucléaires de base.

Dans une **première partie**, le contexte de l'étude est décrit de façon détaillée selon trois étapes. Un chapitre introductif définit tout d'abord, les notions de statistique appliquées aux mesures qui seront évoquées tout au long du mémoire, puis présente les caractéristiques des réacteurs EOLE et MINERVE et le principe des techniques de mesure associées. Un chapitre est ensuite consacré à l'approfondissement de la technique de spectrométrie γ. Les principes physiques sont décrits ainsi que les différents paramètres de sensibilité de la mesure. Enfin, un troisième chapitre présente les applications de la spectrométrie γ développées sur EOLE et MINERVE. Il permet d'identifier les besoins d'amélioration, en terme de justesse et d'incertitude, auxquels cette thèse va répondre.

Le travail d'optimisation des techniques de mesures par spectrométrie γ fait l'objet de la **deuxième partie**. Un chapitre est dédié à l'instrumentation et au logiciel d'acquisition des spectres γ. Il a pour but de caractériser les performances de différentes chaînes de mesure, afin de déterminer la plus adaptée aux expériences réalisées sur EOLE et MINERVE. Les réglages de l'électronique retenue sont ensuite ajustés afin d'optimiser son fonctionnement pour une expérience particulière. Le chapitre suivant est dévolu aux méthodes de traitement des données brutes de mesure pour la détermination de taux de réaction neutronique. Il détaille les différents facteurs correctifs et les moyens d'évaluation associés. Dans un dernier chapitre, des méthodes d'estimation et de propagation des incertitudes sont proposées et appliquées aux mesures de recalage de taux de fission et d'indice de capture.

L'apport de ce travail est quantifié dans la **troisième partie**, par la réalisation de mesures par spectrométrie γ de distributions radiales et axiales de puissance neutronique dans les réacteurs EOLE et MINERVE. Ces expériences permettent d'évaluer le gain obtenu, en terme de justesse, par l'utilisation de chaînes de mesure maîtrisées et optimisées, ainsi que l'apport en terme d'incertitude, d'un traitement rigoureux de leur propagation en tenant compte de leurs corrélations.

La **quatrième partie** est dédiée au développement, à la réalisation et à l'interprétation de mesures par spectrométrie γ contribuant à la qualification de sections efficaces intégrales de capture neutronique. Elle s'appuie sur les programmes OCEAN et OSMOSE réalisés dans le réacteur MINERVE, au cours desquels des échantillons contenant des absorbants neutroniques et des actinides ont été fabriqués pour des études de réactivité. Cette partie comprend un premier chapitre qui décrit les mesures réalisées, des études de faisabilité jusqu'à la synthèse des résultats expérimentaux. Un second chapitre présente les comparaisons calcul / expérience et les tendances observées sur les sections efficaces des isotopes suivants : ^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf, ^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{238}U, ^{242}Pu.

Enfin, la **cinquième partie** concerne des mesures innovantes de données de décroissance. Dans un premier chapitre, il s'agit de réévaluer la période radioactive du strontium 92, produit de fission fréquemment étudié au SPEx, pour lequel un besoin d'amélioration a été identifié au cours de la thèse. Des études consacrées aux rendements de fission de la réaction ^{235}U(n,f) font ensuite l'objet d'un second chapitre. Elles visent à valider les évaluations thermiques JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 et à étudier l'influence de l'énergie des neutrons sur les rendements, par des expériences d'irradiation dans un spectre neutroniques à forte composante épithermique.

PARTIE I :

LES MESURES PAR SPECTROMETRIE γ EN SOUTIEN A LA QUALIFICATION DES FORMULAIRES DE CALCUL

Le doute est le père de la création.

GALILEE

INTRODUCTION

Cette première partie est consacrée à la présentation du contexte général dans lequel s' inscrit la thèse ainsi qu' à la problématique à laquelle elle répond. Elle aboutit, in fine, à l' identification des besoins qui justifient ce travail et à la mise en place des outils nécessaires pour y répondre.

Le premier chapitre fait le lien entre les enjeux industriels pour la mise au point d' options et de concepts innovants – allongement des cycles d' irradiation, introduction du plutonium dans le combustible, transmutation des actinides, réacteurs de génération IV **[2]** – et les outils dont dispose le CEA pour y répondre. En particulier, il met en avant l' intérêt des trois réacteurs EOLE, MINERVE et MASURCA, pour satisfaire aux exigences croissantes de qualification des formulaires de calcul neutronique. Il décrit ensuite les techniques de mesure développées pour chacune de ces installations et qui permettent de déterminer des paramètres d' intérêt pour la physique des réacteurs, notamment : le poids en réactivité des éléments absorbants, les effets de température, les distributions de puissance neutronique, l' efficacité des réflecteurs.

Le deuxième chapitre décrit ensuite l' une de ces techniques, à savoir la spectrométrie γ. Après quelques rappels préliminaires de radioactivité, il présente les principes physiques, la mise en œuvre expérimentale et les méthodes de traitement associées. Les principales limitations, technologiques et analytiques, sont étudiées et leur influence sur le résultat de mesure, discutée.

Enfin, le troisième chapitre présente les applications de la spectrométrie γ développées dans EOLE et MINERVE et les paramètres physiques auxquelles elle donne accès. Les dispositifs expérimentaux et les méthodes d' analyse sont décrits puis les besoins d' améliorations détaillés. Ils concernent en particulier :

- **l' identification des erreurs systématiques** liées à l' instrumentation et au traitement des données, et les moyens envisagés pour permettre leur correction,
- **la réduction des incertitudes** sur le résultat de la mesure, obtenue par une propagation rigoureuse de tous les paramètres de sensibilité et par une combinaison judicieuse de plusieurs résultats de mesure.

Ces deux points, qui constituent l' enjeu majeur de la thèse, seront traités dans la seconde partie, avant d' être appliqués dans les trois parties suivantes, au développement de mesures contribuant à la qualification de paramètres d' intérêt de la physique des réacteurs et de données nucléaires de base.

CHAPITRE 1 :
CONTEXTE DE L' ETUDE

1 INTRODUCTION

Dans la mesure où la sûreté des réacteurs constitue l' un des objectifs majeurs des études nucléaires civiles actuellement menées, les expériences physiques qui permettent de progresser dans le sens d' une fiabilité accrue et d' une réduction des coûts d' exploitation ont un intérêt primordial. En particulier, elles sont indispensables à la qualification des formulaires de calcul neutronique, utilisés pour confirmer ou infirmer que les exigences de sûreté sont respectées dans les marges tolérées. Cette qualification implique la nécessité de fournir des résultats de mesure avec des incertitudes toujours mieux maîtrisées et réduites.

Dans ce contexte, le CEA dispose d' un parc de réacteurs expérimentaux qui lui permet d' effectuer des expériences, aussi bien pour ses propres besoins que dans le cadre de contrats de collaboration avec des organismes nationaux et internationaux. Un certain nombre de techniques de mesure y ont été développées, couvrant une grande diversité de domaines : mesures de réactivité par oscillation, interrogation neutronique, spectrométrie α ou γ, mesures par chambre à fission, dosimétrie neutron (détecteur d' activation) et photon (détecteur thermoluminescent), analyses radiochimiques.

L' incertitude attribuée au résultat de mesure est un élément clé qu' il convient de savoir quantifier. En premier lieu, il s' agit de maîtriser l' évaluation de cette incertitude qui, dans le domaine de la physique des réacteurs en particulier, est aussi cruciale que la grandeur physique à laquelle elle est rattachée. En second lieu, il est nécessaire d' améliorer les techniques de mesure afin de réduire l' incertitude sur le résultat de mesure et de progresser sur l' interprétation des écarts calcul / expérience obtenus.

Ce chapitre présente le cheminement qui, des exigences imposées par une qualification toujours plus poussée des formulaires de calcul neutronique, mène à la définition d' expériences sur les réacteurs expérimentaux EOLE et MINERVE, et à la nécessité d' optimiser les techniques de mesure associées.

2 LA NOTION D' INCERTITUDE

Cette section introduit la terminologie et les concepts fondamentaux d' incertitude et d' erreur ainsi que les principales expressions théoriques qui seront évoquées tout au long de ce document. Elle s' appuie sur la référence **[3]** qui constitue la synthèse d' une collaboration d' experts regroupant onze laboratoires internationaux dont l' objectif est de normaliser le vocabulaire relatif à la métrologie et de décrire une méthode universelle de détermination de l' incertitude. Cette première étape est cruciale pour bien appréhender le travail de thèse qui sera ensuite mené sur l' estimation (i.e. la maîtrise) des incertitudes. Au préalable, on supposera connues les notions élémentaires de statistique concernant la moyenne, l' écart-type et la variance **[4]**.

2.1 Concepts fondamentaux

On appelle **mesurage**, l' ensemble des opérations ayant pour but de déterminer une valeur d' une grandeur et **mesurande**, une grandeur particulière soumise à mesurage. Fondamentalement, toute grandeur physique peut être décrite par une **variable aléatoire** X. Le processus de mesure se traduit par l' observation d' un échantillon fini de réalisations (x_1, ..., x_n) de la variable aléatoire X, modélisant le mesurande, puis l' application d' un raisonnement basé sur la démarche d' inférence statistique[2], dont l' objectif est de décrire les quantités permettant la localisation des données. Le **résultat d' un mesurage** est la valeur attribuée à un mesurande et doit comporter :

- la valeur numérique obtenue,
- l' unité de mesure (choisie dans le Système International),
- un paramètre qui caractérise le doute sur la représentativité du mesurande.

Ce paramètre, appelé **incertitude de mesure**, caractérise la dispersion des valeurs qui pourraient raisonnablement être attribuées au mesurande. On classifie les incertitudes selon deux composantes, A et B, différenciées par la méthode employée pour les évaluer :

- *l' incertitude de type A* est obtenue à partir d' une fonction de densité de probabilité dérivée d' une distribution en fréquence, observée par une répétition des mesures,
- *l' incertitude de type B* est déterminée à partir d' une fonction de densité de probabilité supposée, fondée sur la confiance que l' on accorde à l' occurrence d' un événement.

L' erreur de mesure est définie comme le résultat d' un mesurage moins la valeur vraie du mesurande. On en distingue deux types :

- *l' erreur aléatoire* est la différence entre le résultat d' un mesurage et la moyenne d' un nombre infini de mesurages du même mesurande, effectués dans les mêmes conditions,
- *l' erreur systématique* est la différence entre la moyenne qui résulterait d' un nombre infini de mesurages identiques du même mesurande, effectués dans les mêmes conditions, et la valeur vraie du mesurande.

On est également amené à considérer d' autres dénominations pour caractériser la représentativité du mesurande, parmi lesquels :

- **la répétabilité** (des résultats de mesurage) : c' est l' étroitesse de l' accord entre les résultats des mesurages successifs du même mesurande, effectués dans la totalité des mêmes conditions de mesure. Ce paramètre est une incertitude de type A.
- **la reproductibilité** (des résultats de mesurage) : c' est l´étroitesse de l' accord entre les résultats des mesurages successifs du même mesurande, effectués en modifiant une ou plusieurs conditions de mesure. Ce paramètre est une incertitude de type A.
- **la justesse** (d' un instrument de mesure) : c' est l' écart entre la valeur affichée et la valeur vraie du mesurande. Ce paramètre est une erreur systématique.
- **la résolution** (d' un dispositif indicateur) : c' est l' expression quantitative de l' aptitude à faire apparaître significativement la distinction entre des valeurs très voisines de la grandeur indiquée. Ce paramètre est une incertitude de type B.

[2] Raisonnement inductif consistant à prédire les caractéristiques d' une population à partir de l' observation d' un échantillon.

2.2 Estimation des incertitudes

Les incertitudes de type A sont estimées à partir d'une série d'observations répétées, en se fondant sur la distribution statistique des résultats. En répétant n fois les mesures, on observe une distribution de valeurs (x_1, ..., x_n). La taille n de l'échantillon étant un nombre fini, seuls des estimateurs de la moyenne et de l'écart-type de la population peuvent être obtenus. Il s'agit de :

- l'estimateur de **la moyenne** :

$$\bar{x} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} x_i \qquad \textbf{(1)}$$

- l'estimateur de **l'écart-type d'échantillon** :

$$s(x_i) = \sqrt{\frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(x_i - \bar{x})^2} \qquad \textbf{(2)}$$

- l'estimateur de **l'écart-type de la moyenne** :

$$s(\bar{x}) = \frac{s(x_i)}{\sqrt{n}} \qquad \textbf{(3)}$$

Ces relations sont valables quelle que soit la loi de distribution des variables. Si on pose maintenant l'hypothèse que la distribution étudiée suit une loi gaussienne, un calcul de statistique permet d'évaluer l'incertitude associée à l'estimation de l'écart-type. Par exemple, une incertitude calculée à partir d'un échantillon de 3 valeurs est estimée à 50% près.

Lorsqu'on ne peut répéter les mesures d'un paramètre, on doit avoir recours à des méthodes de type B pour estimer l'incertitude. On utilise alors un jugement ou des informations concernant la variation des paramètres d'influence de la mesure, qui peuvent provenir par exemple de :

- certificats d'étalonnage : masse étalon, activité d'une source γ,
- lois statistiques : Poisson, Gauss, rectangulaire,
- propriétés de l'instrument de mesure,
- influence de l'opérateur sur le traitement des données.

L'évaluation de l'incertitude associée à chacun de ces paramètres fait appel à une part de savoir-faire de l'expérimentateur. Pour la différencier de l'incertitude estimée à partir d'une observation répétée, elle est notée $u(x)$ pour *uncertainty*.

Par exemple, dans le domaine de la métrologie de la radioactivité qui sera développé par la suite, la loi de Poisson qui caractérise le processus de désintégration nucléaire[3], est fréquemment rencontrée. L'utilisation d'un dispositif permettant de mesurer l'occurrence de ce processus, et donc l'activité de la source, suit également une loi de Poisson. On déduit de cette loi de probabilité que :

- la moyenne est égale au comptage N,
- la variance est égale à la moyenne ($\sigma^2 = N$).

[3] Ces notions seront définies dans la section §2 du chapitre 2.

Dans de nombreux cas, un mesurande Y n' est pas le résultat direct d' une mesure mais est obtenu à partir de N grandeurs (X_1, ..., X_N) au moyen d' une relation fonctionnelle $Y = f(X_1,...,X_N)$. Celle-ci doit contenir tous les paramètres susceptibles de contribuer significativement à l' incertitude du résultat de mesure. L' écart-type estimé, associé au résultat de mesure y, appelé **incertitude-type composée** et notée $u_c(y)$, est déterminé à partir de l' écart-type estimé pour chaque estimation d' entrée x_i, appelé **incertitude-type** et noté $u(x_i)$. En notant $u^2(x_i)$ la variance de x_i et $u(x_i, x_j)$ la covariance entre x_i et x_j, la loi de combinaison des variances, estimée à l' ordre 1, s' écrit :

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) + 2 \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^{n} \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right) \left(\frac{\partial f}{\partial x_j} \right) u(x_i, x_j) \qquad \textbf{(4)}$$

Souvent, la covariance entre deux variables aléatoires x_i et x_j peut être évaluée en remarquant qu' elles dépendent de p paramètres communs a_k. On assimile alors ces variables à des fonctions notées $g(a_1, ..., a_p)$ et $h(a_1, .., a_p)$, dont la covariance est estimée par la relation suivante :

$$u(g,h) = \sum_{i=1}^{p} \left(\frac{\partial g}{\partial a_i} \right) \left(\frac{\partial h}{\partial a_i} \right) u^2(a_i) + 2 \sum_{i=1}^{p-1} \sum_{j=i+1}^{p} \left(\frac{\partial g}{\partial a_i} \right) \left(\frac{\partial h}{\partial a_j} \right) u(a_i, a_j) \qquad \textbf{(5)}$$

Pour satisfaire à certains besoins, on est amené à envisager une **incertitude élargie**, notée U. obtenue en multipliant $u_c(y)$ par un facteur d' élargissement k qui dépend du niveau de confiance[4] requis. Dans tout ce document, pour des raisons de cohérence, on imposera $k = 1$.

2.3 Combinaison de plusieurs résultats de mesure

Il est courant que pour des besoins de minimisation de l' incertitude, on soit amené à répéter plusieurs fois une mesure ou à employer une technique expérimentale complémentaire à des fins de comparaison. L' obtention de plusieurs résultats soulève alors deux problématiques en terme de :

- *représentativité* : il s' agit de s' assurer que les résultats obtenus sont représentatifs du même mesurande et qu' aucune erreur systématique n' a été oubliée,
- *combinaison* : les différents résultats peuvent ensuite être combinés afin d' obtenir un seul résultat représentatif.

La manipulation de plusieurs résultats, censés représenter le même mesurande, nécessite certaines précautions. En effet, seuls des résultats indépendants peuvent être comparés et combinés. La première étape consiste donc à établir un bilan des incertitudes corrélées et non-corrélées entre les différentes mesures, respectivement notées u_c et u_{nc}. La comparaison de deux résultats $Y_i \pm u_{,i}$ et $Y_j \pm u_{,j}$ se fait en calculant la différence :

$$d = Y_i - Y_j$$

ainsi que son incertitude associée :

$$u(d) = \sqrt{u_{nc,i}^2 + u_{nc,j}^2}$$

[4] L' appellation « intervalle de confiance » possède une définition spécifique en statistique qui impose certaines conditions qui sont rarement respectées en spectrométrie γ **[4]**.

Les deux résultats sont dits « compatibles pour un facteur d'élargissement k » si la condition suivante est satisfaite :

$$d < k \times u(d)$$

Lorsque l'on a conclu que les valeurs obtenues sont compatibles, il reste à les combiner pour obtenir un seul résultat de mesure. On peut utiliser une moyenne arithmétique à laquelle on associe un écart-type de moyenne, évalués à partir des relations **(1)** et **(3)**, mais il est plus approprié de pondérer chaque résultat par un coefficient qui valorise les meilleures incertitudes. On utilise pour cela des poids égaux à l'inverse de la composante non corrélée de la variance associée à chaque résultat :

$$\overline{Y} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \frac{Y_i}{u_{nc,i}^2}}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_{nc,i}^2}} \qquad \textbf{(6)}$$

Il existe deux méthodes permettant d'estimer la variance (sousentendue non-corrélée) associée à cet estimateur de la moyenne :

- la **variance interne de la moyenne** (ou « à court-terme »), calculée par la combinaison des incertitudes associées à chaque résultat :

$$u_{\text{int}}^2(\overline{Y}) = \frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_{nc,i}^2}} \qquad \textbf{(7)}$$

- la **variance externe de la moyenne** (ou « à long-terme »), calculée uniquement en fonction de la dispersion des différents résultats autour de la moyenne $\overline{Y}$:

$$s_{ext}^2(\overline{Y}) = \frac{\sum_{i=1}^{n} \frac{\left(Y_i - \overline{Y}\right)^2}{u_{nc,i}^2}}{(n-1)\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_{nc,i}^2}} \qquad \textbf{(8)}$$

La comparaison de ces deux estimateurs de variance peut renseigner sur la présence éventuelle d'erreurs systématiques ou sur la sous-estimation des incertitudes non corrélées. On peut par exemple utiliser le test statistique du χ^2 en remarquant que **[5]** :

$$\frac{s_{ext}^2}{u_{\text{int}}^2} = \frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n} \frac{\left(Y_i - \overline{Y}\right)^2}{u_{nc,i}^2} = \frac{\chi^2}{n-1} \qquad \textbf{(9)}$$

Si ce rapport est significativement différent de l'unité, il est probable qu'un ou plusieurs des résultats de mesure soit donné avec une incertitude inadaptée. Le test du χ^2 fournit un critère de décision, pour un risque de première espèce α, qui permet de conclure ou non à l'existence d'une différence entre la variance estimée et la variance théorique (cf. **Annexe A**).

Enfin, dans le calcul de l'incertitude finale, il faut penser à ajouter à l'estimateur de la variance non-corrélée de la moyenne, la contribution des variances corrélées u_c exclue de la pondération.

3 BESOINS EN QUALIFICATION DES FORMULAIRES DE CALCUL

Ayant introduit les principaux outils de statistique nécessaires à la suite du document, cette section décrit les besoins en terme de qualification des formulaires de calcul neutronique qui, rappelons le, sont constitués de codes, de schémas et d'options de calcul, auxquels on associe des données technologiques et une bibliothèque de données nucléaires de base.

3.1 Codes et schémas de calculs

Les codes de calcul neutronique sont utilisés pour résoudre l'équation de Boltzmann qui décrit le comportement de la population de neutrons dans un cœur de réacteur (cf. **Annexe C**). Ne pouvant être obtenue de manière analytique et exacte, la résolution de cette équation se fait donc de manière numérique. On peut faire appel à deux méthodes différentes **[6]** :

- *le calcul déterministe*, qui consiste à résoudre analytiquement l'équation par exemple par la méthode des probabilités de première collision (pour sa forme intégrale) ou par la méthode des ordonnées discrètes (pour sa forme intégro-différentielle),
- *le calcul probabiliste*, basé sur des méthodes dites de « Monte-Carlo », qui consistent à simuler le plus fidèlement possible le cheminement des neutrons dans le cœur, puis à réaliser un examen statistique des résultats.

La seconde approche offre une résolution approchée d'une modélisation exacte. En raison des contraintes liées aux durées de calcul, les méthodes déterministes lui sont généralement préférées[5]. Les codes de ce type sont le plus souvent spécifiques à un type de spectre neutronique et ne sont validés que pour des applications bien précises (exemple : APOLLO **[7]** pour les réacteurs thermiques, ERANOS **[8]** pour les réacteurs rapides). Le calcul de situations nouvelles exige des précautions particulières sur la méthode de résolution utilisée : vérification de la validité des hypothèses initiales, des modèles de calcul des probabilités de collision, des critères de mise en groupes des sections efficaces ou de traitement du phénomène d'autoprotection.

Cette première étape de qualification des formulaires de calcul peut être réalisée à partir d'expériences de type « maquette », destinées à tester le schéma et les options choisis sur une configuration de cœur donnée. De nos jours, ces expériences étant coûteuses, elles peuvent être substituées par des calculs de référence qui constituent ce que l'on appelle « l'étape de validation ». A contrario de la qualification, ce processus n'a pour but de réaliser qu'une comparaison calcul-calcul afin de valider les approximations réalisées dans l'approche déterministe. Les codes de calcul utilisant la méthode de Monte-Carlo sont mis en œuvre à de telles fins. Le schéma de calcul complet étant complexe, il sera nécessaire de le valider étape par étape pour la définition des meilleures options. En cas de besoin, la comparaison à l'expérience reste la preuve ultime de sa qualité.

En plus de cet aspect purement numérique, le développement de nouvelles options et concepts exige une connaissance fine des grandeurs physiques qui caractérisent les différents isotopes du combustible. La réalisation d'expériences s'avère alors indispensable pour la qualification des données nucléaires de base.

[5] Cet état de fait est amené à évoluer dans les prochaines années avec l'accroissement rapide de la puissance des calculateurs.

3.2 Données nucléaires de base

Jusqu' à ces vingt dernières années, les études d' évolution du combustible en réacteur, consacrées notamment à la formation des actinides mineurs - neptunium, américium et curium -, sont restées relativement sommaires. Ce manque d' intérêt se justifiait par les faibles quantités d' actinides présentes pendant en fin de cycle. Aussi, la connaissance de ces isotopes et de leur contribution au bilan neutronique étaient-elles relativement faibles.

Depuis l' accident de Tchernobyl de 1986, un intérêt croissant est apparu pour les études de sûreté et de conception. Elles s' appuient sur des formulaires de calcul qui utilisent des données nucléaires, telles que les sections efficaces, les rendements de fission et les périodes radioactives, dont la précision est primordiale. De plus, dans le cadre de la loi de 1991 sur la gestion des déchets radioactifs, des études relatives à la transmutation ou à l'incinération de certains radionucléides à longue vie (technétium 99, neptunium 237, américium 241) requièrent une meilleure connaissance de certaines données, en particulier les sections efficaces de capture et de fission (**Fig. 1**).

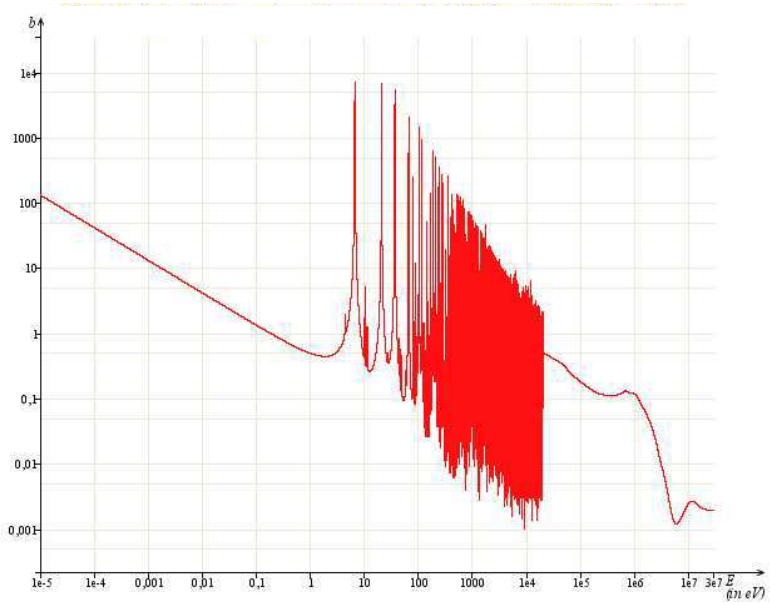

Fig. 1 : section efficace de capture (n,γ) de l' uranium 238

Ce type de données nucléaires est habituellement mesuré à partir d' expériences dites « différentielles » qui consistent à estimer la probabilité d'interaction (capture, fission, diffusion) d' un neutron avec un noyau cible, pour une énergie donnée. Ces expériences sont souvent réalisées à partir de la technique de temps de vol qui consiste à estimer la durée écoulée entre l'émission des neutrons et leur interaction avec le matériau étudié. Cette durée, représentative de la vitesse des neutrons, permet de reconstituer le profil de section efficace en fonction de l' énergie avec une certaine résolution qui dépend, entre autre, de la largeur temporelle de la bouffée initiale de neutrons, de leur dispersion énergétique dans le modérateur et de la précision des électroniques de mesure.

En complément de ces mesures et dans les gammes d' énergie non accessibles, on a recours à des modèles théoriques pour compléter les évaluations. Par exemple, dans le domaine des résonances non résolues, on fait appel à des modèles statistiques qui permettent de calculer la distribution moyenne des résonances. La complémentarité de ces deux approches permet de reconstituer une distribution continue de la section efficace.

Afin de valider les évaluations réalisées à partir de ces deux méthodes, on a recours à des mesures dites « intégrales » qui permettent de qualifier les sections efficaces moyennes pour un spectre neutronique donné. La mise en œuvre d' expériences faisantintervenir des compositions et des géométries suffisamment simples et bien connues pour qu' elles soient représentées avec des erreurs de calcul minimales, permet alors d' interpréter les écarts calcul / expérience en terme d' erreur sur les données nucléaires de base utilisées. La précision obtenue sur la détermination de ces erreurs, dépend directement de l' incertitude sur la mesure. L' intercomparaison d' une multitude de résultats peut également permettre de découpler les effets et d' obtenir des tendances sur certaines d' entre elles.

4 LES MAQUETTES CRITIQUES

En soutien aux études de qualification des formulaires de calcul, le CEA s' appuie sur des maquettes critiques qui constituent des outils indispensables pour la mise au point de nouvelles options et concepts, pour la réduction des marges de conception (et donc des coûts) et pour les études de sûreté. Cette section expose l' intérêt de ces maquettes et les possibilités qu' elles offrent, puis décrit plus en détail les réacteurs EOLE et MINERVE sur lesquels s' est appuyé ce travail de thèse.

4.1 L' intérêt des maquettes critiques

Depuis le début du nucléaire civil, le développement de nouveaux concepts et techniques n' a pu se faire sans l' apport des maquettes critiques. En effet, la complexité des phénomènes mis en jeu du point de vue des matériaux, des géométries et des domaines énergétiques rencontrés, est telle que l' expérimentation sur de telles maquettes a toujours été nécessaire et le restera.

Sur la base d' un besoin de qualification spécifique, des programmes expérimentaux sont conçus et réalisés. Ils consistent en des expériences intégrales qui nécessitent la réalisation de mesures à l' aide d' instrumentations et de techniques de mesures adéquates. Ces expériences peuvent être destinées à la qualification des données nucléaires, auquel cas elles sont de type « fondamental » ou à la qualification des schémas de calcul, auquel cas elles sont de type « maquette ».

Dans ce contexte, le SPEx participe à la conception et à la réalisation d' expériences intégrales pour la qualification des formulaires de calcul neutronique et/ou de protection (atténuation γ et neutron dans les matériaux). Il s' appuie pour cela sur trois maquettes critiques (**Fig. 2**) : EOLE (spectres de réacteurs à eau légère), MINERVE (tous types de spectres) et MASURCA (spectres de réacteurs à neutrons rapides).

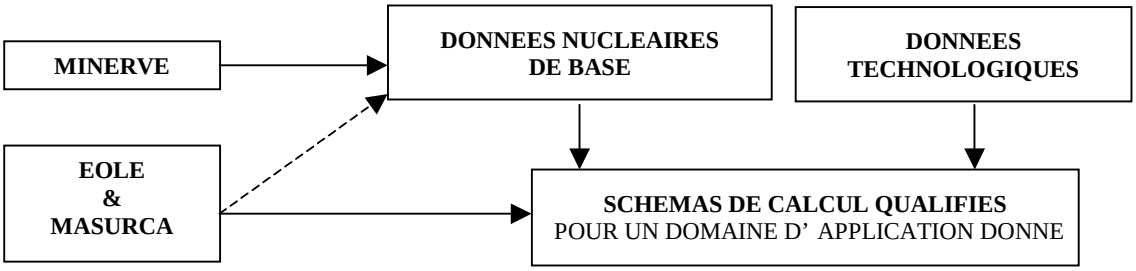

Fig. 2 : positionnement des maquettes critiques du SPEx dans le processus de qualification

Ces maquettes critiques sont des réacteurs de très faibles puissances (au plus quelques kW), qui présentent l'avantage d'être sûrs, souples du point de vue de l'exploitation, facilement adaptables à une grande diversité de spectres, et qui permettent une mise en œuvre aisée de diverses techniques de mesure. Les phénomènes physiques mesurés sont alors directement extrapolables aux réacteurs de puissance.

4.2 Présentation des réacteurs EOLE et MINERVE

Le réacteur EOLE (**Fig. 3**) est une structure d'accueil constituée d'un bloc pile offrant des protections biologiques permettant un fonctionnement jusqu'à une puissance maximale autorisée de 100 W, soit un flux neutronique d'environ 10^8 $cm^{-2}.s^{-1}$ **[9]**. Il est constitué :

- d'une cuve en AG3, de diamètre 2.3 m et de hauteur 3 m, surmontée d'une virole en acier inoxydable pouvant contenir différents types de cœurs et leurs structures associées,
- des barres de commande, quatre dédiées à la sécurité et au contrôle du réacteur, et une au pilotage, accrochées à des treuils au-dessus de la virole et dont la position, la structure (plaque ou crayon) et la composition (hafnium, B_4C) s'adaptent aux cœurs étudiés,
- des circuits d'eau permettant le remplissage, la vidange, l'introduction de bore dans le modérateur et le contrôle de la température de 5 à 90°C,
- d'un système de contrôle-commande réalisant le traitement des signaux neutroniques, l'utilisation d'automates programmables et la visualisation sur écran des états du réacteur,
- d'un équipement informatisé pour la réalisation et l'analyse des mesures.

Les crayons combustibles utilisés sont, à la hauteur près (colonne fissile de 800 mm), identiques à ceux utilisés dans les réacteurs de puissance. Selon le programme expérimental, on est amené à utiliser des combustibles de différentes natures (MOX et UO_2), de différents enrichissements (teneur en plutonium de 3 à 11.5%) et de différentes géométries (type REP et REB).

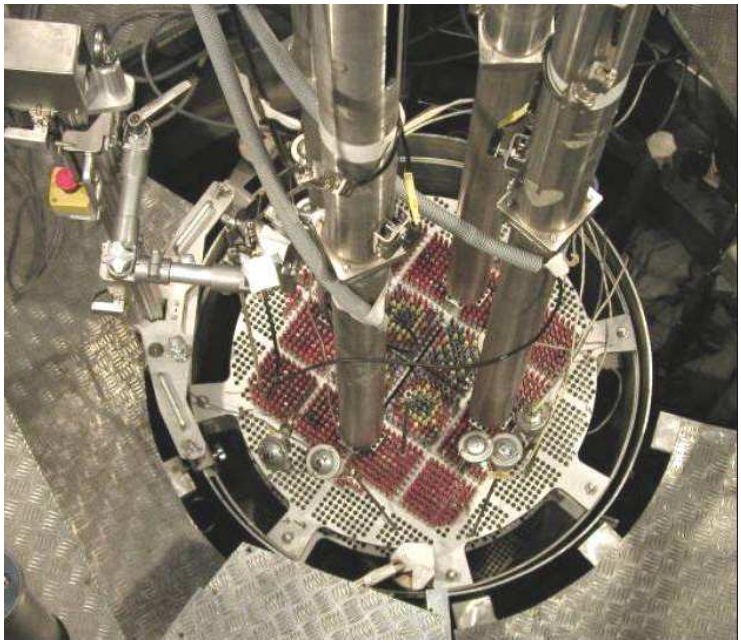

Fig. 3 : vue de l'intérieur du cœur EOLE lors du programme BASALA

La recherche de l'état critique du réacteur s'effectue par la montée du modérateur (i.e. eau légère) dans la cuve du réacteur puis, lorsque celui-ci circule dans le circuit de thermorégulation à la température voulue, par montée progressive des barres de contrôle. L'ajustement de la réactivité du cœur est effectué par itération sur l'un des deux paramètres critiques suivants :

- *la concentration en bore soluble* dissout dans le modérateur,
- *la masse de combustible* en ajustant le nombre de crayons en zone périphérique du cœur.

Le réacteur MINERVE (**Fig. 4**) est quant à lui construit dans une piscine en acier inoxydable de 120 m^3 **[10]**. Le modérateur est de l'eau déminéralisée, épurée sur des filtres et des résines échangeuses d'ions. Le refroidissement du cœur, immergé sous 3 m d'eau, est réalisé par convection naturelle. La puissance maximale autorisée en fonctionnement est également de 100 W pour un flux neutronique de l'ordre de 10^8 $cm^{-2}.s^{-1}$. Le cœur est divisé en deux zones :

- *la zone nourricière*, constituée d'assemblages à plaques d'aluminium-uranium, enrichie à 90% ou 93% en uranium 235, et entourée d'un réflecteur en graphite,
- *la zone expérimentale* qui reçoit des réseaux introduits dans une cavité carrée de 70 cm de côté au centre de la zone nourricière et qui permet de reproduire les spectres spécifiques aux réacteurs à eau légère (MELODIE) et eau lourde (ELOISE), aux réacteurs sous-modérés (MORGANE) et aux réacteurs rapides à caloporteur sodium (ERMINE). Son centre comporte une cavité qui permet l'introduction d'une canne dédiée aux mesures d'oscillation sur des échantillons de combustible.

Selon le type de réseau, des crayons combustibles UO_2 et MOX peuvent être chargés. La colonne fissile est plus courte que pour les crayons EOLE (500 mm) et présente des cales en plexiglas de part et d'autre pour adapter la longueur totale du crayon aux dimensions de la zone nourricière.

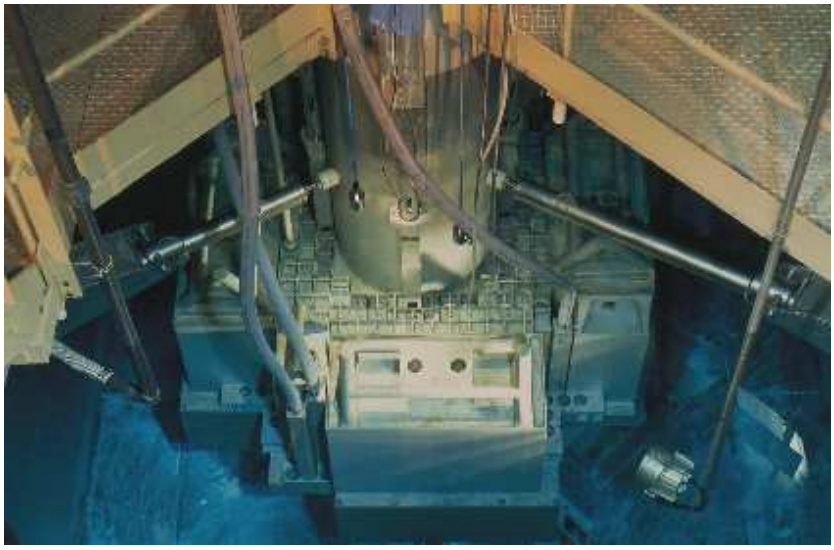

Fig. 4 : vue globale du réacteur MINERVE

Le contrôle du réacteur est assuré par deux chaînes de démarrage et deux chaînes haut niveau équipées de chambres à dépôt de bore. La commande est assurée par quatre barres de contrôle et de sécurité identiques, constituées de deux plaques en hafnium naturel gainées d'acier inoxydable, qui coulissent au centre d'un élément combustible aluminium-uranium enrichi à 93% en uranium 235.

5 TECHNIQUES DE MESURE ASSOCIEES

Pour les besoins de qualification des formulaires de calcul neutroniques et selon le type de paramètre étudié, différentes techniques de mesure peuvent être mises en œuvre, notamment **[10]** :

- *les mesures directes*, réalisées à partir de chambres à fission, aussi bien dans EOLE que dans MINERVE,
- *les mesures par oscillation*, réalisées sur des échantillons de combustible dans MINERVE,
- *des mesures indirectes*, réalisées post-irradiation par spectrométrie γ sur des crayons combustible, échantillon ou dosimètre, dans EOLE et dans MINERVE.

5.1 Mesures par chambre à fission

Les chambres à fission sont des détecteurs à gaz constitués d'une enceinte remplie d'un gaz neutre et isolant (en général des gaz rares tels que l'argon ou le xénon) et de deux électrodes métalliques entre lesquelles on applique une différence de potentiel. L'une d'entre elles est recouverte de quelques microgrammes d'un isotope fissile, déposé en couche mince par électrolyse (< 2 $mg.cm^{-2}$). Un champ électrique est créé dans le volume de détection permettant aux électrons produits lors de l'interaction d'une particule chargée, d'être mobilisés vers les électrodes. Une chaîne de mesure est ensuite utilisée pour collecter ces charges, amplifier le signal, stocker puis analyser les données.

Une gamme de chambres à fission miniatures de 1.5 à 8 mm de diamètre est disponible au SPEx pour les besoins des maquettes critiques. Tous les principaux isotopes fissionnables sont disponibles, notamment : thorium 232, uranium 233, 234, 235, 236, 238, neptunium 237, plutonium 238, 239, 240, 241, 242, américium 241 et 243. La nature de l'isotope permet de tirer des informations sur le spectre neutronique, selon que l'isotope étudié est fissile à l'énergie thermique ou à seuil. Les chambres à fission sont habituellement utilisées pour deux types d'application :

- les mesures *dynamiques* : elles ont pour but de fournir des éléments de qualification pour les études de sûreté. Il s'agit par exemple des mesures de temps de doublement, représentatif de l'excès de réactivité du cœur, et des mesures de chute de barres permettant d'estimer leur poids en réactivité.
- les mesures *statiques* : elles sont dédiées aux mesures de paramètres d'intérêt pour la physique des réacteurs, notamment les distributions axiales et radiales de taux de fission dans le cœur, ou les indices de spectre qui permettent de qualifier les calculs de spectre neutronique en un point précis du cœur.

Fig. 5 : chambres à fission miniatures de 8 mm (*à gauche*) et 1.5 mm (*à droite*)

5.2 Mesures par oscillation

La technique d'oscillation d'échantillons, réalisée dans le réacteur MINERVE, consiste à osciller des échantillons au centre du réseau expérimental, dans le but de mesurer la variation de réactivité qu'ils induisent **[11]**. La grandeur physique obtenue est $\nu\Sigma_f - \Sigma_a$.

Pour cela, chaque échantillon introduit dans une canne est déplacé périodiquement entre deux positions situées dans le plan médian et hors de la zone expérimentale (**Fig. 6**). Le signal du train supérieur, contenant l'échantillon mesuré, est comparé au signal du train inférieur, contenant un échantillon de référence. La différence de réactivité entre les deux positions permet ensuite de s'affranchir de l'effet des trains supérieur et inférieur.

La variation de flux induite par l'oscillation est détectée par une chambre à dépôt de bore, asservie à une barre de pilotage automatique composée d'un stator et d'un rotor couverts de secteurs de cadmium : l'amplitude de leur recouvrement provoque une variation de réactivité de ±20 pcm environ. La correspondance entre l'angle de rotation et la réactivité est déterminée expérimentalement à l'aide d'échantillons de calibration à différents enrichissements en uranium 235 et diverses teneurs en bore 10, dont la réactivité est connue avec une incertitude inférieure à 1% par calculs déterministes.

Ces mesures sont très prisées car elles offrent une grande souplesse d'utilisation, tout en assurant une incertitude de reproductibilité de l'expérience meilleure que 1%. Par ailleurs, elles permettent de mettre en œuvre de faibles quantités d'isotopes à étudier (quelques mg environ), d'où un compromis entre le coût de l'expérience et l'incertitude atteinte inégalable.

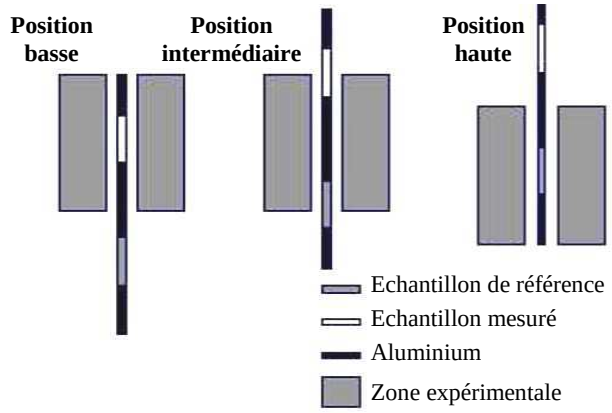

Fig. 6 : mouvement des échantillons lors des oscillations dans MINERVE

5.3 Mesures par spectrométrie γ

Les mesures post-irradiation par spectrométrie γ sont couramment employées sur EOLE et MINERVE. Elles présentent l'intérêt de pouvoir être réalisées plusieurs heures voire plusieurs jours après irradiation et sont donc très souples à mettre en œuvre. Le principe de cette technique, qui sera développé plus en détail par la suite, consiste à détecter les rayonnements γ caractéristiques des radionucléides présents dans l'échantillon étudié. Pour cela, on utilise un détecteur constitué d'un matériau semi-conducteur (généralement du germanium). Lors de l'interaction d'un rayonnement γ, des paires électrons-trous sont créées et collectées par l'application d'un champ électrique. Une chaîne de mesure est utilisée pour mettre en forme, amplifier et discriminer en tension les impulsions créées.

Les expériences par spectrométrie γ permettent de déterminer des grandeurs physiques tels que le taux de conversion de l'uranium 238, des indices de capture (rapports de sections efficaces intégrales de capture et de fission), et des profils axiaux et radiaux de taux de réaction. A ce titre, elles sont complémentaires des mesures par chambre à fission. Différents types d'échantillon sont utilisés :

- *des dosimètres* inertes (exemples : manganèse, cobalt, indium, or) ou « fissiles » (thorium, uranium, neptunium) : ils sont choisis en fonction de leur sensibilité à l'énergie des neutrons. Ils permettent de tirer des informations sur le spectre neutronique, au même titre que les mesures par chambre à fission.
- *des crayons combustibles* : ils sont extraits du cœur puis transférés sur des bancs de mesure (**Fig. 7**). L'étude du flux d'émission γ totale du crayon combustible ou la mesure de radionucléides particuliers permettent de déterminer des distributions axiales et radiales de taux de fission ou de déterminer le taux de conversion de l'uranium 238.

Cette technique s'avère particulièrement puissante et polyvalente mais implique une bonne maîtrise de toutes les étapes de la mesure, depuis l'instrumentation jusqu'à l'analyse des données brutes. Ce besoin d'optimisation constitue l'objet du travail qui va être développé ci-après.

Fig. 7 : réalisation d'une mesure par spectrométrie γ sur un crayon combustible, après irradiation à 40 W pendant 15 minutes dans le réacteur EOLE

6 CONCLUSION

Ce chapitre, après avoir introduit les notions fondamentales relatives aux incertitudes et à la métrologie, a permis de mettre en lumière les enjeux, en terme de sûreté, de réduction des coûts d'exploitation et d'amélioration des performances, d'une qualification précise des formulaires de calcul. Celle-ci passe nécessairement par la réalisation d'expériences dont la maîtrise des résultats et la réduction des incertitudes est primordiale. A ce titre, les maquettes critiques EOLE et MINERVE représentent des outils souples pour la réalisation de mesures visant à qualifier des paramètres d'intérêt de la physique des réacteurs.

S'inscrivant dans ce contexte, le travail de thèse qui fait l'objet de ce mémoire consiste en l'optimisation de l'une des principales techniques de mesure employées sur ces réacteurs, à savoir la spectrométrie γ. Elle passe tout d'abord par une bonne connaissance de ses principes physiques, puis par l'identification des besoins et des perspectives d'améliorations sur l'instrumentation, le traitement des données brutes et la propagation des incertitudes. Ces deux points font respectivement l'objet des deux chapitres suivants.

CHAPITRE 2 :

GENERALITES SUR LA SPECTROMETIE γ

1 INTRODUCTION

Le développement de la spectrométrie γ a débuté avec l'essor des sciences et des technologies nucléaires afin de répondre aux besoins de contrôle, de caractérisation et d'analyse des matières radioactives. Cette technique de mesure exploite une propriété fondamentale observée par la plupart des noyaux instables : l'émission de rayonnements consécutifs au processus de désintégration nucléaire. Elle est donc dite « non-destructive » **[12]** car elle permet de respecter l'intégrité de l'objet à analyser.

L'intérêt de la spectrométrie γ n'a cessé de croître depuis des années, tant du point de vue métrologique que du point de vue des applications. Cet essor a été rendu possible grâce à une meilleure compréhension du processus d'interaction des photons avec la matière et surtout grâce à l'apparition des détecteurs semi-conducteurs dans les années 60. La spectrométrie γ est alors devenue un outil d'étude puissant des schémas de désintégration avec lequel des incertitudes de mesure de l'ordre de 10^{-6} (en relatif) peuvent être atteintes. Elle est aujourd'hui utilisée dans des secteurs très divers (exemples : datation, climatologie, astrophysique, médecine) et dans pratiquement toutes les étapes du cycle du combustible.

Le but de ce chapitre est de présenter les principales problématiques liées aux mesures par spectrométrie γ. Après quelques rappels sur les processus de désintégration et d'interaction des photons avec la matière, la technique de mesure et les principales limitations physiques associées seront présentées.

2 GENERALITES SUR LA RADIOACTIVITE

La radioactivité est un phénomène spontané au cours duquel un noyau[6], excédentaire en énergie, subit une série de transformations conduisant à l'émission de particules et de rayonnements électromagnétiques. La première de ces transformations est la désintégration radioactive.

2.1 Désintégration radioactive

L'instabilité du noyau s'explique soit par un déséquilibre entre le nombre de protons[7] et de neutrons, soit par un excès de nucléons[8]. La désintégration radioactive a pour but de faire évoluer le noyau vers un état plus stable en modifiant son numéro atomique et donc la nature chimique de l'atome. On distingue deux types de désintégration **[13]** :

[6] « Radionucléide » est le terme générique désignant un noyau radioactif, constitué de Z protons et A-Z neutrons et dont la durée de vie est assez longue pour être mesurable (généralement > 10^{-10} s).
[7] Le nombre de protons est appelé « numéro atomique » (noté Z).
[8] Le nombre de nucléons (protons + neutrons) est appelé « nombre de masse » (noté A).

Les désintégrations isobariques sont des transformations à nombre de masse constant. On rencontre trois cas de figure :

- *la désintégration* β^- : elle est due à un excès de neutrons. Le numéro atomique augmente d'une unité par conversion d'un neutron en proton. Cette transformation s'accompagne de l'émission par le noyau d'un électron de charge négative β^- (ou négaton) et d'un antineutrino.
- *la désintégration* β^+ : elle est due à un excès de protons. Le numéro atomique diminue d'une unité par conversion d'un proton en neutron. Cette transformation s'accompagne de l'émission par le noyau d'un électron de charge positive β^+ (ou positon) et d'un neutrino.
- *la désintégration par capture électronique* ε : elle est également due à un excès de protons mais à la différence de la désintégration β^+, la conversion d'un proton en neutron se fait par capture d'un électron à partir des couches internes du cortège électronique.

Les désintégrations par partition sont des transformations qui interviennent lorsque le noyau est à la fois excédentaire en protons et en neutrons. On distingue deux cas :

- *la désintégration* α : le numéro atomique du noyau diminue de deux unités par expulsion d'une particule α constituée de deux protons et de deux neutrons (noyau d'hélium 4).
- l*a désintégration par fission spontanée* : elle intervient lorsque le noyau se sépare en deux fragments massifs (A > 60) ou « produits de fission ».

On caractérise, à un instant *t*, le taux de disparition d'une population de $N(t)$ radionucléides, de période radioactive $T_{1/2}$, par son activité, notée $A(t)$ et exprimée en Becquerels[9], définie par :

$$A(t) = \lambda N(t) = -\frac{dN(t)}{dt}$$

où $\lambda = (\ln 2) / T_{1/2}$ est la constante de décroissance radioactive du radionucléide étudié.

2.2 Transformations associées

Dans la plupart des cas, le noyau issu d'une désintégration radioactive est créé dans un état énergétique excité. Le retour à son état fondamental peut se faire par transition électromagnétique γ et parfois par émission d'un neutron. Les transitions γ sont de trois types **[14]** :

- *l'émission* γ : le noyau fils se désexcite en émettant un rayonnement électromagnétique γ dont l'énergie est égale à la différence de niveau de la transition nucléaire. Le retour du noyau excité à un état stable peut se faire par passages successifs entre plusieurs niveaux intermédiaires, conduisant à une émission multiple de rayonnements γ.
- *la conversion interne* : l'énergie d'excitation du noyau fils est communiquée à un électron du cortège électronique de l'atome. Celui-ci est éjecté en emportant, sous forme d'énergie cinétique, l'énergie de la transition moins l'énergie de liaison de l'électron éjecté.
- *la création de paire* : dans certains cas, le rayonnement de désexcitation peut se matérialiser au voisinage du noyau en une paire d'électrons (un négaton et un positon). Ils emportent, sous forme d'énergie cinétique, l'énergie de transition moins 1.022 MeV.

[9] 1 Becquerel = 1 désintégration par seconde.

A la suite d'une conversion interne ou d'une désintégration par capture électronique, des vacances sont créées dans le cortège électronique de l'atome. Des électrons des couches supérieures viennent combler ces lacunes, créant alors de nouvelles vacances sur des couches moins liées. Le phénomène se propage jusqu'en périphérie et s'accompagne d'émissions de deux types :

- *l'émission X* : l'énergie libérée par le déplacement d'un électron d'une couche à une autre est emportée par un rayonnement électromagnétique de fluorescence X.
- *l'émission d'un électron Auger* : l'énergie libérée est transférée à un autre électron du cortège moins lié qui est éjecté en emportant l'énergie d'excitation moins son énergie de liaison.

Généralement, la désintégration radioactive donne lieu à la naissance d'un noyau « fils » (deux dans le cas d'une fission spontanée), lui-même radioactif, qui engendre à son tour des radionucléides de « deuxième génération » et ainsi de suite. La désintégration du noyau « père » peut ainsi conduire à une chaîne de filiation radioactive au cours de laquelle des rayonnements sont émis en cascade.

2.3 L'interaction des rayonnements avec la matière

Les particules émises au cours d'une désintégration radioactive interagissent différemment avec la matière selon leur charge électromagnétique, leur masse et leur énergie **[15]** :

- *les particules chargées lourdes*, telles que les α et les produits de fission, convertissent leur énergie cinétique par interaction coulombienne, en excitant et en ionisant sur leur trajet les atomes de la matière. Du fait du rapport de masse très important avec les électrons, ces particules ne perdent qu'une faible quantité d'énergie à chaque interaction et ne sont pratiquement pas déviées de leur trajectoire. Cependant, compte tenu de leur charge élevée, la perte linéique d'énergie est grande et leur parcours dans la matière est court (quelques µm).
- *les particules chargées légères*, telles que les particules β, les électrons Auger et les électrons de conversion interne, ont un parcours plus chaotique dans la matière du fait de leur masse égale à celle des électrons des atomes. La perte d'énergie se fait à la fois par des phénomènes de rayonnement de freinage « Bremsstrahlung », lors des changements de direction qu'elles subissent, et à la fois par des processus d'excitation ou d'ionisation des atomes de la matière. Du fait de leur masse et de leur charge beaucoup moins importante que pour des particules lourdes, leur parcours dans la matière est plus grand (plusieurs mm).
- *les neutrons*, du fait de leur charge nulle, n'interagissent qu'avec les noyaux des atomes du milieu traversé. Ils subissent des diffusions inélastiques ou élastiques (avec ou sans perte d'énergie dans le système du centre de masse), ou des réactions nucléaires et (n,γ) qui donnent naissance à des particules chargées lourdes.
- *les rayonnements photoniques X et γ* transfèrent leur énergie au milieu traversé par trois types d'interaction : l'effet photoélectrique (l'énergie est intégralement transférée à un électron d'un atome du réseau), la diffusion Compton (le photon incident est dévié par un électron d'un atome du réseau auquel il transfère une partie de son énergie) et la création de paire (matérialisation de l'énergie du photon sous forme d'un couple électron-positon). Leur proportion dépend de l'énergie du rayonnement et du numéro atomique du milieu.

Les techniques de mesure par spectrométrie X et γ sont rendues possibles grâce à ces effets d'interaction des rayonnements photoniques avec la matière.

3 PRESENTATION D' UNE CHAINE DE SPECTROMETRIE γ

La spectrométrie γ a pour but l' analyse qualitative (identification de radionucléides) et quantitative (mesure de l' activité associée) des rayonnements γ émis spontanément par l' échantillon à caractériser. Le dispositif expérimental consiste à classer en fonction de leur énergie les photons qui interagissent avec le milieu détecteur. Les performances atteintes par la chaîne de mesure dépendent du choix de chacun des étages et des réglages associés. Il est donc nécessaire de bien identifier le fonctionnement et les limitations de chacun afin d' adapter la chaîne de mesure à ses besoins.

3.1 Détecteurs

Selon le domaine d' application de la spectrométrie γ, on rencontre essentiellement deux familles de détecteurs **[16]** :

Les détecteurs à scintillation (ou scintillateurs) fonctionnent sur le principe de la production de rayonnements suite au dépôt d' énergie du γ à détecter dans un matériau scintillant. Ces photons sont ensuite recueillis par un photomultiplicateur qui va permettre de les transformer en un signal électrique exploitable Cette conversion est réalisée au moyen d' une photocathode, d' une électrode focalisante, d' une série de dynodes et d' une anode. Le scintillateur le plus utilisé pour les mesures par spectrométrie γ est l' iodure de sodium (NaI). Ce type de détecteur présente l avantage d' avoir un fort rendement intrinsèque[10] de détection (6.10^{-2} à 1332 keV) et d' être peu coûteux mais son domaine d' application se limite à la mesure des radionucléides émetteurs γ monoénergétiques compte tenu de sa faible résolution en énergie (80 keV à 1332 keV).

Les détecteurs à semi-conducteurs sont basés sur l' ionisation des atomes du milieu détecteur. Le dépôt d' énergie des γ suite à leur interaction se traduit par la création de porteurs de charges (paires électron-trou) au sein du réseau cristallin. Ces charges sont ensuite mobilisées grâce à un champ électrique, produit par une alimentation haute tension continue de l' ordre de quelques milliers de volts, conduisant à la génération d' un courant. Les détecteurs constitués d' un cristal de germanium hyperpur Ge[HP] sont les plus couramment utilisés à ce jour. Ils fonctionnent à basse température (77 K), ce qui assure une insensibilité aux variations de haute tension et de température intérieure, et présentent une excellente résolution en énergie (environ 2 keV à 1332 keV). Selon les objectifs envisagés, différents détecteurs au Ge[HP] peuvent être rencontrés. On distingue :

- *les détecteurs planaires :* ils sont bien adaptés aux mesures des basses énergies (< 200 keV) grâce à un cristal de grand diamètre (jusqu' à 70 mm) et de faible épaisseur (moins de 30 mm).
- *les détecteurs coaxiaux :* ils sont utilisés sur une large gamme d' énergie (10 keV à 10 MeV) et permettent une utilisation plus polyvalente. Certaines géométries, de type puits, autorisent également la mesure de faibles activités (< 1 Bq).

Pour les besoins de métrologie et d' analyse fine des radionucléides produits lors de réactions nucléaires, le détecteur le plus approprié est le Ge[HP]. Une des caractéristiques fondamentales de ces différents détecteurs est la proportionnalité entre l' énergie du rayonnement et l' amplitude du signal recueilli en sortie. Différents étages sont ensuite employés pour amplifier et mettre en forme ce signal.

[10] Probabilité de détection d' un rayonnement incident sur le détecteur.

3.2 Chaîne de mesure associée

La chaîne de mesure en aval du détecteur comporte généralement 4 étages, alimentés en basse tension continue (± 6 V, ± 12 V ou ± 24 V) et associés tel que montre la figure suivante (**Fig. 8**) :

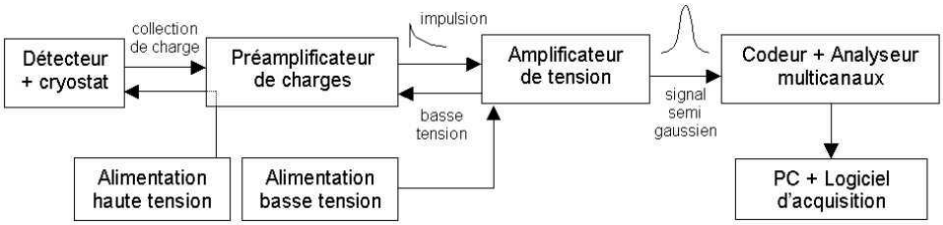

Fig. 8 : schéma de principe d'une chaîne de mesure de spectrométrie γ

Le préamplificateur est le premier dispositif rencontré en sortie du détecteur. Son rôle est de réaliser une première amplification du signal généré par l'interaction des γ avec le cristal. Il joue également le rôle d'adaptateur d'impédance entre la sortie du détecteur et l'entrée de l'étage suivant. Il est en général placé à proximité du cristal sous le même capot. De cette manière, les composants sensibles à la température sont refroidis et le bruit thermique minimisé. Dans le domaine de la spectrométrie γ de haute résolution, on rencontre essentiellement des préamplificateurs de charges. Il en existe deux principaux types **[15]** :

- *les préamplificateurs à contre-réaction résistive* : ce sont les plus classiques. Ils sont constitués d'un étage d'amplification couplé à un circuit de contre-réaction capacitive afin de rendre la tension de sortie indépendante de la capacité du détecteur. Les signaux générés sont constitués d'un front montant rapide (de 100 à 500 ns), fixé par la durée de collection des charges, suivi d'une remise à zéro s'étalant sur une durée plus longue (de 50 à 150 µs).
- *les préamplificateurs à contre-réaction pulsée :* ce type de préamplificateur ne dispose pas de résistance de contre-réaction afin de limiter le bruit qu'elle génère. En contrepartie, les signaux vont s'empiler par marches successives du fait du temps de décharge infini. Un dispositif de remise à zéro est alors utilisé pour décharger la capacité et permettre un nouveau cycle d'opération. Cette fonction est réalisée soit par une diode à émission lumineuse, soit par un circuit à transistor (plus adapté aux hautes énergies et aux forts taux de comptage).

L'amplificateur exploite ensuite les impulsions sortant du préamplificateur. Il adapte tout d'abord l'amplitude du signal incident à une gamme de tension exploitable par l'étage suivant. Il réalise ensuite une mise en forme, le plus souvent gaussienne, en filtrant une partie des parasites de haute fréquence. L'amplification est toujours réalisée le plus tôt possible afin de limiter le bruit généré par le module de mise en forme. On rencontre en général deux types de système **[16]** :

- *les amplificateurs à mise en forme CR-RC* : il s'agit de l'amplificateur le plus couramment rencontré. Il utilise un circuit intégrateur CR suivi d'un circuit différentiateur RC, séparés par un amplificateur opérationnel pour éliminer toute interférence de l'un sur l'autre, et réalise une mise en forme pseudo-gaussienne. Le réglage de la constante de temps du système permet d'optimiser la capacité de traitement ou la résolution selon ses besoins. Ce type d'amplificateur est bien adapté pour des détecteurs de petit volume (quelques dizaines de cm^3) et pour des taux de comptage faibles (quelques 10^4 s^{-1}).

- *les amplificateurs intégrateurs (ou GI pour Gated Integrator)* : ce type de système est utilisé lorsque des taux de comptage élevés sont rencontrés ($>10^5$ s^{-1}) et pour des détecteurs de gros volume (plusieurs centaines de cm^3). En effet, l'utilisation de constantes de mise en forme courtes sur des amplificateurs CR-RC introduit des défauts balistiques liés à une collection incomplète de charges. On utilise alors un circuit qui intègre sur une capacité le signal issu du préamplificateur pendant une durée suffisamment longue. Le système s'avère très performant à haut taux de comptage et permet de gagner un facteur 3 à 4 sur la résolution en énergie.

Le convertisseur analogique-numérique (ou ADC pour *Analog to Digital Converter*) est utilisé pour permettre à l'étage suivant de traiter des signaux logiques plutôt qu'analogiques. On rencontre deux technologies de codage d'adresse **[17]** :

- *les codeurs Wilkinson* : le principe est de mesurer, à l'aide d'une horloge interne, le temps de décharge d'un condensateur porté initialement à la tension maximale de l'impulsion. Ils sont caractérisés par un temps de traitement proportionnel à l'amplitude du signal.
- *les codeurs à approximations successives (ou à poids)* : il s'agit de mesurer la hauteur du signal par une méthode dichotomique, en la comparant à des signaux calibrés en tension. Ce type de codeur se caractérise par un temps de traitement fixe (de 0.8 à 8 µs) et s'avère plus adapté aux mesures à fort taux de comptage.

L'analyseur multicanaux (ou MCA pour *Multi Channel Analyser*) permet enfin de trier les impulsions en fonction de leur amplitude. Il est doté de mémoires permettant de stocker ces données dans des canaux correspondant à des intervalles de tension et de les transmettre en ligne vers un ordinateur. Les enregistrements ainsi obtenus sont des histogrammes qu'on appelle « spectres différentiels de hauteur d'impulsion ». La plupart du temps, le logiciel utilisé pour l'acquisition des données permet également de réaliser une première analyse qualitative et quantitative des spectres.

4 TRAITEMENT DES DONNEES BRUTES DE MESURE

L'exploitation d'un spectre γ permet de dégager des informations sur la présence de certains radionucléides dans l'échantillon et de déterminer leur activité individuelle à partir du comptage des évènements qui contribuent au spectre total. L'analyse du spectre obtenu lors de l'interaction d'une raie γ monoénergétique avec le détecteur se décompose en plusieurs composantes **[12]** (**Fig. 9**) :

- *pic d'absorption total* : il correspond à un dépôt d'énergie total du photon incident, obtenu soit par effet photoélectrique, soit par combinaison des trois modes d'interaction possibles.
- *fond Compton* : il est créé par interaction Compton du photon avec le cristal. Sa hauteur relative au pic d'absorption totale est d'autant plus faible que le détecteur est grand.
- *pics d'échappement* : ils apparaissent pour des énergies incidentes élevées (> 1.022 MeV) et pour des petits détecteurs. Ils correspondent à l'absence de détection d'un ou des deux photons obtenus par annihilation du positon de création de paire avec un négaton du réseau cristallin.
- *pic de production de paires* : il apparaît à l'énergie de 511 keV et correspond à la seule détection du négaton obtenu par création de paire.
- *fond Bremsstrahlung :* il apparaît à basse énergie (E < 500 keV) pour des émetteurs β d'énergie supérieure à 1 MeV. Des écrans en cuivre ou en cadmium peuvent être utilisés pour en limiter la contribution.

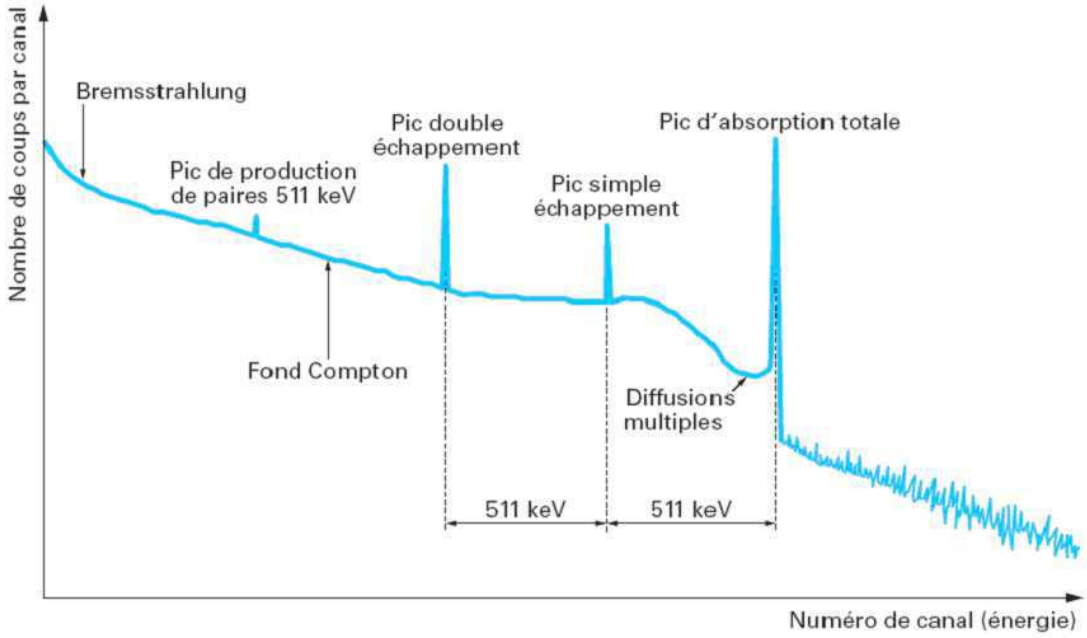

Fig. 9 : spectre γ type

Un spectre réel fait souvent intervenir un grand nombre de raies γ pour lesquelles ces différentes composantes vont se superposer. L'analyse consistera donc à identifier les différents radionucléides présents et à les quantifier à partir de leur pic d'absorption totale.

4.1 Identification des radionucléides

La première étape consiste à déterminer une relation entre l'échelle en canal et l'énergie. Cette calibration est réalisée à l'aide d'étalons dont les raies d'émission γ principales sont connues avec une excellente précision (énergie calibrée à environ 10^{-4} %). On utilise la plupart du temps l'europium 152, le baryum 133 et le cobalt 56 qui sont des références multigamma émettant un grand nombre de raies (au moins 10). Ils permettent de couvrir une gamme allant de quelques dizaines de keV à 3.5 MeV avec une incertitude suffisante pour la plupart des applications (de l'ordre de 100 eV).

Le logiciel d'analyse est ensuite en mesure de réaliser la correspondance entre l'énergie des pics du spectre et les radionucléides potentiellement présents à partir d'une bibliothèque qui référence toutes les raies X et γ connues. Une fois les pics repérés, l'analyse quantitative peut être effectuée.

4.2 Mesure d'activité

L'activité d'un radionucléide est déterminée à partir du nombre d'événements contribuant au pic d'absorption totale par unité de temps. Le taux de comptage correspondant représente, à un facteur multiplicatif près, l'activité du radionucléide. Pour cela, il est nécessaire de soustraire la contribution du fond continu, créé par l'interaction des photons d'énergie supérieure et par le rayonnement ambiant. Cette opération constitue la mesure de la surface nette du pic.

La forme des pics d'absorption totale obtenus à partir de détecteurs au Ge[HP] est proche d'une gaussienne, présentant une traîne aux énergies inférieures (i.e. à gauche du pic). Il existe principalement deux méthodes de détermination de la surface nette d'un pic à partir des logiciels d'analyse les plus courants :

- *l'algorithme de sommation* : le principe est de comptabiliser le nombre de coups dans la région d'intérêt (RI) qui contient le pic puis de lui soustraire l'intégrale du fond continu, évaluée à partir de sa valeur moyenne autour de la RI.
- *l'algorithme d'ajustement* : il consiste à déterminer par une méthode des moindres carrés une fonction analytique qui modélise au mieux la forme du pic puis à évaluer numériquement son intégrale sur la RI.

Dans une certaine mesure, le logiciel est également capable de séparer[11] deux voire plusieurs pics voisins présentant des domaines de recouvrement.

Ensuite, différents facteurs correctifs du taux de comptage mesuré doivent être appliqués pour déduire l'activité du radionucléide, notamment :

- *la probabilité d'émission de la raie* γ : il s'agit du nombre de photons d'énergie E émis pour 100 désintégrations du radionucléide. Elle est notée $I_\gamma(E)$. Cette grandeur est une donnée nucléaire de base qu'on peut extraire de bibliothèques telles que JEFF **[18][19]**, ENDF/B **[20]**, JENDL **[21]**, ENSDF **[22]** ou NUCLEIDE **[23]**.
- *le rendement*[12] *d'absorption totale* : il s'agit de la probabilité pour un photon d'énergie E émis par la source de déposer l'intégralité de son énergie dans le détecteur. On le note $R^P(E)$. Cette grandeur est le plus souvent mesurée. On établit pour cela une courbe à partir de sources étalons calibrées en activité (ou en flux d'émission photonique), pour une géométrie de mesure donnée. Un facteur correctif est ensuite appliqué pour tenir compte de différents phénomènes (exemples : géométrie de l'échantillon différente de la source d'étalonnage, phénomène d'autoabsorption γ, présence d'écrans).

En notant $N(E)$ la surface nette du pic et t la durée de la mesure, l'activité A du radionucléide est obtenue à partir de la relation suivante :

$$A = \frac{N(E)}{I_\gamma(E)\ R^P(E)\ t}$$

Cette expression fait abstraction des limitations intervenant aussi bien au niveau de l'instrumentation que de l'analyse des données. Ces différents points font l'objet de la partie suivante.

5 LIMITATIONS DE LA TECHNIQUE DE MESURE

Les critères de performance d'une chaîne de spectrométrie γ sont propres à chaque type de mesure. En effet, compte tenu de la grande diversité des applications possibles, il peut être judicieux de chercher à optimiser la résolution, à augmenter la capacité de traitement ou à réduire la distance source-détecteur afin de diminuer les durées de comptage. Pour chacun de ces cas de figure, il est nécessaire de bien maîtriser les différents paramètres de sensibilité de la mesure.

[11] On parle souvent à tort de « déconvolution » de pics, différente de la notion rencontrée en traitement du signal.
[12] On rencontre très fréquemment le terme « efficacité » à la place de rendement, traduction littérale de l'anglais *efficiency*.

5.1 Temps mort électronique

L'une des principales limitations d'une chaîne de spectrométrie γ réside dans le phénomène de temps mort électronique **[24]**. Celui-ci peut être défini, d'un point de vue macroscopique, comme la proportion d'impulsions perdue en sortie du dispositif de mesure par rapport au nombre d'impulsions créées au niveau du détecteur. On parle alors de temps mort[13], noté par la suite θ. Il correspond à une limitation technologique liée au temps de traitement des impulsions par les différents étages de la chaîne de mesure. En effet, lorsque le système est confronté à des hauts taux de comptage, la probabilité qu'un second signal soit généré au niveau du détecteur pendant qu'un premier signal est en cours de traitement est loin d'être négligeable. L'essentiel du temps mort provient de l'étage d'amplification qui génère des signaux dont la largeur en temps est telle qu'ils vont s'empiler. Le codeur ne sera alors pas en mesure de les discriminer et une partie des évènements sera perdue ou assimilée à des signaux d'amplitude supérieure (**Fig. 9**). L'utilisation d'un préamplificateur à contre-réaction résistive montre également ses limites lorsqu'il est confronté à de fortes activités. Le gain peut alors dévier de son fonctionnement linéaire et une saturation en entrée de l'amplificateur apparaître. Il existe plusieurs moyens de corriger ces limitations que l'on regroupe en deux catégories :

- *la correction en temps actif (ou LTC pour Live Time Correction)* : il s'agit de la méthode la plus communément utilisée. Elle consiste à estimer le taux d'occupation de la chaîne au cours de la mesure. L'amplificateur doit disposer d'un circuit de rejet d'empilements capable d'identifier l'arrivée d'une seconde impulsion pendant le laps de temps où il réalise le traitement d'une première impulsion. Un signal est alors transmis au codeur afin d'inactiver son fonctionnement lors de l'arrivée de l'empilement (**Fig. 10**). Une horloge interne comptabilise la durée pendant laquelle le codeur est inactif. Dans le cas où un préamplificateur à contre-réaction pulsée est utilisé, on doit également tenir compte du temps nécessaire à sa décharge. Un signal d'inhibition est transmis à l'amplificateur pendant la durée correspondant à sa réinitialisation. Les durées d'inactivité de la chaîne sont cumulées en temps réel et transmises au logiciel d'acquisition qui affiche une estimation du taux de temps mort. Si l'amplificateur ne dispose pas de circuit de rejet d'empilement, il est également possible d'utiliser un signal de référence pour évaluer la proportion de pertes, soit au moyen d'un pulser connecté en entrée de l'amplificateur, soit grâce à une source étalon dont on a réalisé préalablement la mesure du taux de comptage qu'elle induit. La correction en temps actif n'est cependant applicable que dans les cas où l'activité reste constante à l'échelle de la mesure.

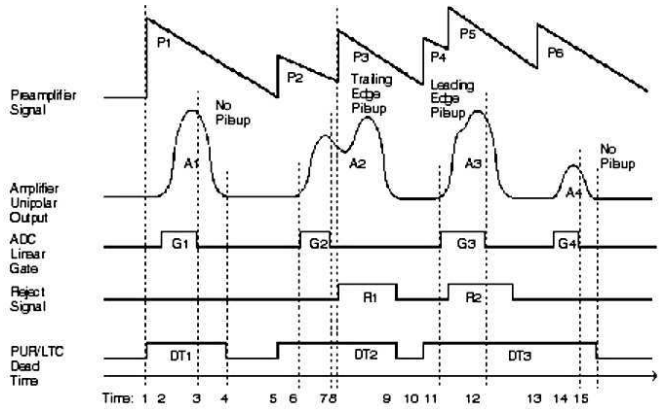

Fig. 10 : principe du circuit de rejet d'empilements

[13] En toute rigueur, on devrait parler de « taux de temps mort » car θ représente la proportion de temps mort par rapport au temps de mesure.

- *la correction en temps réel (ou LFC pour Loss Free Counting)* : le principe de cette méthode consiste à estimer instantanément le taux de perte de comptage par temps mort et à déterminer un facteur de pondération entier *n* à appliquer à chaque adressage d' impulsion. L' analyseur multicanal reçoit alors l' instruction « ajouter *n* coups » au lieu d' une incrémentation unitaire. Différentes méthodes peuvent être employées pour estimer ce taux de perte, soit en monitorant le taux de comptage entrant (méthode de Harms **[25]**), soit en générant des impulsions virtuelles en entrée de la chaîne et en estimant le taux de perte en sortie (**Fig. 11** : méthode de Westphal **[26]**). Ce type de système, qui en pratique s' avère assez délicat à régler **[27]**, est employé pour des mesures à très haut taux de comptage (jusqu' à 8.10^5 s^{-1} avec des erreurs inférieures à 2%) et impliquant des variations d' activité quirendent la méthode de correction en temps actif inappropriée. A noter cependant que l' ajout de coups dans chaque canal dévie leur comportement statistique de la loi de Poisson qui caractérise la désintégration radioactive.

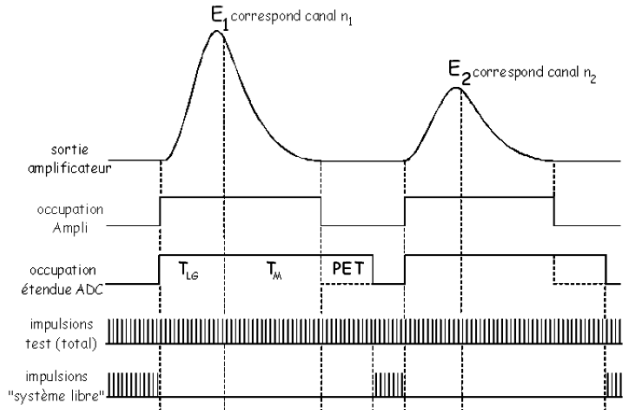

Fig. 11 : principe de la correction de Westphal

Dans la mesure du possible, le temps mort doit être minimisé par éloignement de la source du détecteur, par interposition d' écrans et par diminution de la constante de temps de l' amplificateur afin de réduire la probabilité d' empilements de signaux. Cette dernière solution se fait nécessairement au détriment de la résolution.

5.2 Résolution en énergie

L' optimisation de la résolution d' une chaîne de mesure peut s' avérer cruciale pour certaines applications : séparation de pics présentant un domaine de recouvrement, augmentation du rapport pic sur fond Compton pour limiter l' incertitude sur l' analyse du spectre par le logiciel. On la caractérise habituellement par la Largeur Totale à Mi-Hauteur des pics (LTMH ou FWHM pour *Full Width at Half Maximum*) qui dépend de trois composantes **[17]** :

- *les fluctuations statistiques de production de charges* : elles proviennent de la répartition aléatoire de l' énergie entre les différents modes d' excitation. Leur contribution à la largeur totale à mi-hauteur des pics, notée $(LTMH)_s$, dévie de la statistique de Poisson d' un facteur F dit « de Fano ». En notant ε l' énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou, on a :

$$(LTMH)_s = 2.355\sqrt{FE\varepsilon}$$

- *les défauts de collection de charges* : ce phénomène, responsable d'une traîne exponentielle du pic à basse énergie, est causé par les imperfections du cristal et par la non-uniformité du champ électrique qui peut s'avérer trop faible pour collecter la totalité des porteurs de charge. Cet effet est d'autant plus marqué que le cristal est grand. Sa contribution est notée $(LTMH)_c$.
- *le bruit électronique* : cette composante provient des courants de fuite qui s'ajoutent au signal entre les différents étages de la chaîne. L'utilisation de constantes de mise en forme plus longues sur l'amplificateur permet de filtrer une partie de ce bruit en réduisant la bande passante, au détriment de la capacité de traitement. L'utilisation d'un préamplificateur résistif induit également un bruit supplémentaire en raison de la résistance de contre-réaction, visible aux basses énergies. Cette contribution, liée à la chaîne électronique, est notée $(LTMH)_e$.

Les trois composantes caractérisant la résolution s'additionnent quadratiquement selon la relation suivante :

$$(LTMH) = \sqrt{(LTMH)_s^2 + (LTMH)_c^2 + (LTMH)_e^2}$$

La figure suivante illustre les variations de la résolution des pics en fonction de l'énergie de la raie γ et la proportion relative de chacune des composantes sur les détecteurs au Ge[HP] courants :

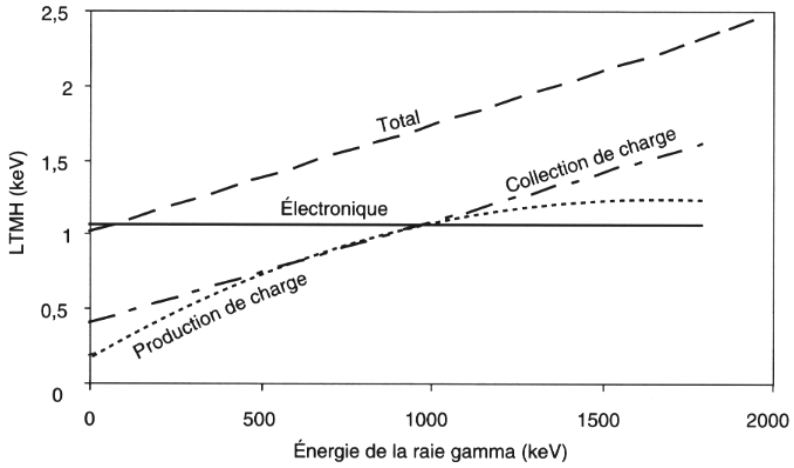

Fig. 12 : résolution des pics en fonction de l'énergie

Il convient donc de trouver un compromis entre la diminution de la capacité de traitement et l'amélioration de la résolution. Une discussion sera menée dans ce sens au chapitre 1 de la partie II. Une fois maîtrisées ces différentes limitations technologiques de la chaîne de mesure, il est nécessaire d'identifier les problèmes liés à l'analyse des spectres γ et à l'extraction des surfaces nettes.

5.3 Surfaces nettes des pics

Dans le domaine de la mesure des combustibles irradiés ou de matériaux activés aux neutrons, certains radionucléides peuvent être envisagés comme traceurs de paramètres caractéristiques : taux de combustion, puissance intégrée en fin de cycle, activation des gainages et des matériaux de structure, contamination du caloporteur. Les spectres obtenus sont souvent complexes et comportent parfois plusieurs centaines de pics (**Fig. 13**). Il est donc fondamental de bien maîtriser le processus d'analyse qui consiste à extraire les évènements dus au seul radionucléide d'intérêt.

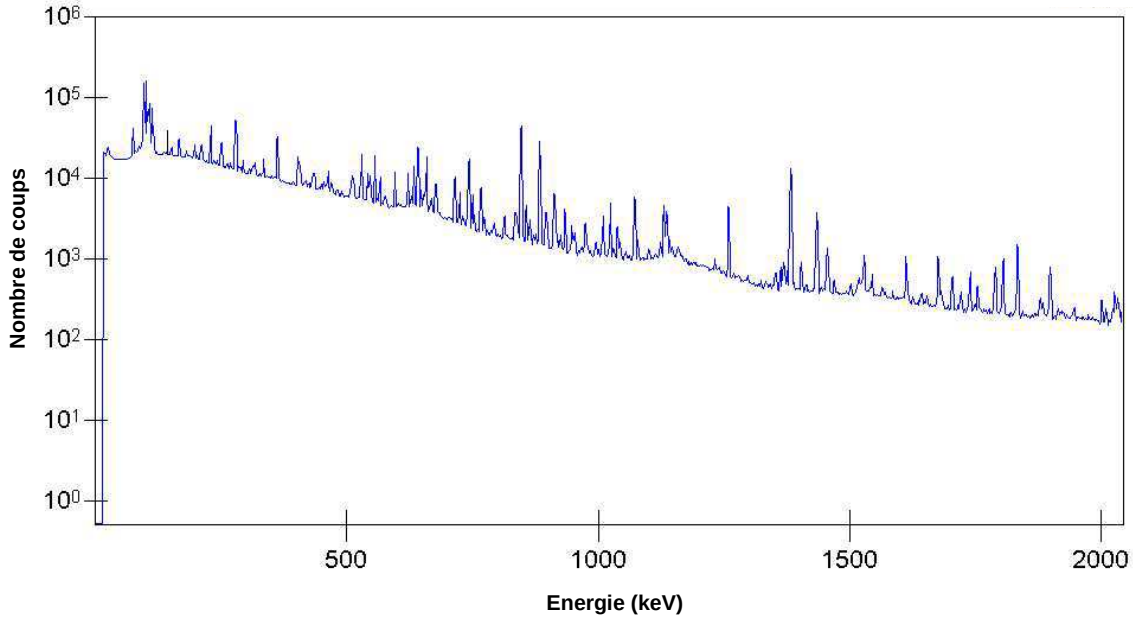

Fig. 13 : spectre de produits de fission obtenu 2 heures après irradiation d' un crayon combustible dans le réacteur MINERVE

Cette analyse passe tout d' abord par une identification de toutes les raies γ susceptibles de perturber le pic étudié. Par exemple, la mesure de l' activité en césium 137 (raie à 661.7 keV) peut se trouver interférée par la présence d' américium 241 (raie à 662.4 keV). Etant donné que la résolution est supérieure à l' écart qui sépare ces deux pics, il est très difficile voire impossible de les discriminer. Les logiciels d' analyse disponibles sur le marché (exemples : GENIE 2000, VisuGamma, Interwinner) permettent, dans une certaine mesure, de corriger ce problème en identifiant d' autres raies γ émises par le radionucléide perturbateur et ainsi réaliser une soustraction analytique. L' expérience de l' utilisateur et la connaissance a priori de la composition de l' échantillon à mesurer doit néanmoins prédominer sur toute automatisation de l' analyse si la précision de la mesure s' avère décisive.

La zone d' étude du pic étant maîtrisée, l' extraction des surfaces nettes est ensuite réalisée. Il n' existe aucune méthode générale pour le traitement des spectres γ. Le résultat dépend nécessairement du logiciel utilisé et d' une part de subjectivité de l' utilisateur dans l' appréciation du problème et dans le choix de certains paramètres (largeur de région d' intérêt, algorithme de calcul, modèle pour la représentation du fond continu). Cette sensibilité qu' on appelle « effet utilisateur » est d' autant plus marquée que le pic est obtenu dans des conditions difficiles : superposition à un fond Compton élevé produit par des photons de plus haute énergie, présence de pics perturbateurs voisins, déformation des pics à fort taux de comptage. Parfois, même dans des conditions idéales de mesure, le logiciel peut montrer des difficultés à extraire la surface nette du pic d' intérêt. C' est en particulier le cas pour la mesure des raies γ de basse énergie (E < 100 keV) qui présentent une traîne très marquée sur la partie gauche des pics et pour la mesure des raies X qui ont davantage un profil lorentzien que gaussien.

Le meilleur moyen d' apprécier l' influence de ces différents paramètres consiste, lorsque cela est possible, à utiliser différentes méthodes d' analyse et/ou logiciels et à comparer les résultats obtenus. Ce point sera approfondi dans le chapitre 1 de la partie II.

5.4 Coïncidences vraies

En plus du phénomène de temps mort électronique, les mesures de taux de comptage sont confrontées à une limitation technologique de la chaîne de mesure appelée « phénomène de coïncidences vraies[14] ». Celui-ci intervient lorsque deux raies γ émises en cascade sont détectées simultanément[15]. On obtient alors une impulsion correspondant à la somme des énergies déposées dans le détecteur par les deux raies. Ces impulsions « sommes » se répartissent sur tout le spectre jusqu' à l' énergie maximale $E_1 + E_2$, obtenue quand les deux photons, respectivement d' énergie E_1 et E_2, sont totalement absorbés. Un troisième pic d' absorption totale apparaît alors sur le spectre et il y a perte de comptage par « effet somme ». Le phénomène de coïncidences vraies provient à la fois de la détection simultanée γ-γ et γ-X. Il dépend essentiellement de deux paramètres :

- *le rendement total de détection* : il s' agit de la probabilité d' interaction avec le détecteur, partielle ou totale, d' un photon émis par la source. Elle dépend de l' angle solide de détection et de l' énergie du photon. Le phénomène de coïncidences y est directement proportionnel.
- *le schéma de désintégration* : l' effet est d' autant plus marqué que la probabilité d' émission de la raie considérée est faible, relativement aux autres raies.

Dans le domaine de la spectrométrie γ des basses activités, par exemple pour la mesure d' échantillons de l' environnement, il peut s' avérer nécessaire de disposer la source à proximité du détecteur pour éviter des durées de mesure rédhibitoires. Le phénomène de coïncidences vraies peut alors entraîner des pertes de comptage atteignant plusieurs dizaines de pourcents. Des logiciels basés sur des méthodes analytiques (exemple : ETNA **[28]**) ou probabilistes (exemple : GESPECOR **[29]**) ont été développés pour permettre d' estimer des facteurs correctifs. La précision de ces logiciels est directement conditionnée par la qualité de l' étalonnage en rendement, par la connaissance de la géométrie du détecteur et par la connaissance des schémas de désintégration du radionucléide.

Dans la plupart des domaines où l' activité de l' échantillon est suffisante, l' éloignement de la source à une distance supérieure à 200 mm permet de limiter ces corrections à quelques dixièmes de pourcents. Quelques exemples seront présentés dans le chapitre 2 de la partie II.

5.5 Etalonnage en rendement

Pour tenir compte de la probabilité d' interaction d' un photon avec le détecteur, il reste à corriger le résultat brut de mesure du rendement d' absorption totale qui traduit la relation entre le taux de comptage et l' activité réelle de la source. Dans la plupart des cas, il n' est pas possible de disposer d' étalons ayant la même géométrie que l' échantillon analysé. Une calibration à partir de sources ponctuelles est alors réalisée puis un facteur correctif, appelé « transfert de rendement » et noté $T(E)$, est calculé. Il permet de tenir compte du changement de géométrie qui peut intervenir entre l' étalonnage et la mesure d' intérêt, du phénomène d' autoabsorption γ à l' intérieur de l' échantillon ou de l' atténuation due à la présence d' écrans.

[14] L' appellation « coïncidences vraies » est à opposer aux coïncidences « fortuites » qui peuvent intervenir quand deux photons issus de deux schémas de désintégration distincts sont détectés dans un lapse de temps suffisamment faible pour empêcher leur discrimination par le circuit de rejet d' empilements (c' est-à-dire pour de forts taux de comptage).

[15] Deux raies émises en cascade peuvent être détectées simultanément à condition que la durée de vie du niveau excité intermédiaire soit inférieure au temps de collection des charges dans le détecteur (de 0.1 à 1 µs).

Dans des configurations très absorbantes ou bien nécessitant l'utilisation de collimations pour réduire le flux photonique reçu par le détecteur, la bonne connaissance de certaines caractéristiques physiques de l'échantillon (géométrie, densité) et du banc de mesure est nécessaire pour estimer le plus précisément possible ce facteur correctif. C'est le cas, par exemple, des mesures permettant de caractériser des colis de déchets où la détection de certains radionucléides, comme l'américium 241 (raie à 59.5 keV), est rendue très délicate compte tenu de l'auto-absorption γ. Les logiciels de traitement des spectres γ ne disposant pas, en standard, de fonctionnalités permettant d'estimer ces transferts de rendement, des logiciels spécifiques ont été développés basés sur des méthodes analytiques (exemple : ETNA **[28]**) pour des géométries simples (source ponctuelle, cylindrique ou discoïdale), ou de type Monte-Carlo pour des problèmes plus complexes (exemples : GESPECOR **[29]**, MCNP **[30]**, GEANT **[31]**). Si les conditions le permettent, ces corrections sont utilisées pour corriger les rendements obtenus à partir d'étalons ponctuels et intégrées dans la courbe de rendement. Dans le cas contraire, elles sont calculées au cas par cas, pour toutes les énergies étudiées.

Ce dernier point fera l'objet d'une étude détaillée dans le chapitre 2 de la partie II, où les schémas de calcul de transfert de rendement conçus à partir du code MCNP seront explicités.

6 CONCLUSION

Au travers des différentes applications évoquées au cours de ce chapitre, la spectrométrie γ apparaît comme une technique de mesure puissante et pluridisciplinaire. Sa mise en œuvre pratique est simple, ce qui explique son utilisation universelle pour la caractérisation de matières nucléaires et d'objets irradiants. Elle nécessite cependant une bonne connaissance des principaux phénomènes limitatifs auxquels l'utilisateur est susceptible d'être confronté.

Du point de vue de l'instrumentation, le phénomène de temps mort électronique constitue la principale source de biais systématique. Sa maîtrise nécessite un travail d'optimisation préliminaire, tant du point de vue de la configuration du banc de mesure (position de la source, utilisation d'écrans) que de l'instrumentation associée (compromis entre capacité de traitement et résolution en énergie).

Ce chapitre met également l'accent sur l'utilisation des logiciels de traitement de spectre et sur l'analyse des données brutes de mesure. Il décrit les limitations de ces logiciels pour le développement de nouvelles applications de la spectrométrie γ, telles que celles qui seront décrites dans les partie IV et V de ce mémoire, et sur les risques d'une automatisation de l'analyse des spectres complexes de produits de fission.

Une bonne compréhension des différents phénomènes physiques susceptibles d'influencer le résultat d'une mesure par spectrométrie γ s'avère donc indispensable pour répondre aux besoins de minimisation des erreurs systématiques et de réduction des incertitudes qui font l'objet de ce travail de thèse. Cet état de l'art constitue la première étape dans la définition des besoins d'amélioration des mesures réalisées sur les réacteurs EOLE et MINERVE qui vont être développées dans le chapitre suivant.

CHAPITRE 3 :
LES MESURES PAR SPECTROMETIE γ APPLIQUEES SUR EOLE ET MINERVE

1 INTRODUCTION

Après avoir présenté les principes physiques de la spectrométrie γ et identifié les différents paramètres de sensibilité d'une mesure, ce chapitre décrit les applications développées au SPEx pour la détermination de paramètres d'intérêt de la physique des réacteurs.

Historiquement, les premières mesures de spectrométrie γ appliquées aux réacteurs EOLE et MINERVE sont intervenues à partir de 1975. Dans le cadre des programmes CAMELEON **[32]** et ERMINE **[33][34]**, elles étaient utilisées pour la détermination de distributions axiales et radiales de puissance neutronique pour différentes configurations de cœur et à caractériser les sections efficaces de capture de produits de fission majeurs (parmi lesquels : ^{98}Mo, ^{100}Mo, ^{102}Ru, ^{104}Ru, ^{108}Pd, ^{141}Pr, ^{139}La). Les progrès réalisés depuis cette époque sur la mise en œuvre et l'interprétation des mesures répondent à un besoin croissant de qualification des formulaires de calcul et de réduction des incertitudes. L'objectif est d'aboutir in fine à une diminution des marges de sûreté sur l'exploitation des réacteurs actuels et futurs.

Ce chapitre est consacré à un état de l'art des techniques de mesure par spectrométrie γ utilisées au SPEx au début de ce travail de thèse, soit en novembre 2003. Il décrit les bancs de mesure et les principales applications développées pour les réacteurs EOLE et MINERVE. Un bilan des besoins en terme de réduction des incertitudes et de correction des biais systématiques sera ensuite dégagé et permettra d'introduire la démarche qui sera adoptée dans la seconde partie pour y répondre.

2 PRESENTATIONDES BANCS DE MESURE UTILISES

Cinq bancs de spectrométrie γ dédiés aux mesures sur crayon combustible sont à disposition dans l'installation EOLE / MINERVE (**Fig. 14**). Ils sont équipés de détecteurs au Ge[HP] présentant les caractéristiques suivantes :

- 3 détecteurs de type coaxial avec un cristal de volume actif égal à 80 cm^3 (soit 15% d'efficacité relative[16]),
- 1 détecteur de type coaxial avec un cristal de volume actif égal à 350 cm^3 (soit 65% d'efficacité relative),
- 1 détecteur de type planaire, de diamètre égal à 50.5 mm et de hauteur égal à 20 mm, adapté aux mesures à basse énergie (10 keV < E < 1 MeV), dit « LEGe » pour *Low Energy Germanium*.

[16] L'efficacité relative d'un détecteur est définie comme le rapport de son rendement d'absorption total à l'énergie 1332.5 keV, au rendement à la même énergie d'un scintillateur NaI de diamètre égal à 76 mm et de hauteur égale 76 mm

Fig. 14 : vue des bancs de spectrométrie γ utilisés pour la mesure des crayons combustibles

Chacun des bancs est constitué :

- d' une ligne de remplissage automatique d' azote assurant au moins 7 jours d' autonomie,
- d' un support permettant le positionnement, le centrage et la mise en rotation du crayon combustible,
- d' un dispositif assurant la translation verticale du détecteur ou du crayon combustible pour ajuster le flux reçu,
- de collimations en plomb de 50 à 70 mm d' épaisseur assurant l' absence de perturbation entre les 5 bancs de mesure et permettant de réduire le flux reçu par le détecteur à celui émis par une portion du crayon combustible,
- d' écrans constitués d' un empilement de feuilles de 1 mm d'épaisseur de cadmium, de cuivre et d' aluminium afin d' absorber les raies de fluorescence X du plomb (seulement pour les quatre bancs équipés de détecteurs de type coaxial).

L' un des bancs est équipé d' un passeur automatique piloté par ordinateur (**Fig. 15**) qui permet d' examiner jusqu' à 40 crayons combustibles dans la même journée et de réduire la dose reçue par les expérimentateurs lors de leur manipulation **[35]**.

Depuis 1995, les chaînes de mesure comportent :

- un préamplificateur de charge à contre réaction résistive (modèle CANBERRA 2002CSL pour les détecteurs coaxiaux et 2002CPSL pour le détecteur planaire),
- un amplificateur disposant d' un circuit de rejet d' empilements (modèle CANBERRA 2026 pour les détecteurs coaxiaux et 2024 pour le détecteur planaire),
- une carte assurant les fonctions de codage de type Wilkinson et d' analyse multicanaux (modèle CANBERRA PCA3-8K),
- un ordinateur de type PC équipé du logiciel CANBERRA GENIE 2000 **[36]**, permettant l' acquisition et le stockage des données.

Fig. 15 : passeur automatique pour la mesure de profil axial et radial de taux de fission

3 TECHNIQUE DE SPECTROMETRIE γ ASSOCIEES

Les techniques de mesure par spectrométrie γ développées sur les réacteurs EOLE et MINERVE visent à déterminer des taux de réaction d' intérêt àpartir de l' activité de radionucléides caractéristiques à courte durée de vie (de quelques heures à quelques jours). Les crayons combustibles sont pour cela irradiés à très faible puissance (maximum 100 W) et pendant une courte durée (au plus quelques heures), puis transférés manuellement en salle de mesure pour y être analysés. Selon la grandeur recherchée, deux techniques de mesure sont utilisées :

- *la technique de spectrométrie γ dite « intégrale »*, dédiée aux mesures de distributions axiales et radiales de taux de fission,
- *la technique de spectrométrie γ dite « de pic particulier »*, dédiée aux mesures de taux de capture et de recalage de taux de fission entre crayons de nature différente.

3.1 La spectrométrie γ intégrale

La spectrométrie γ intégrale est une technique de mesure qui permet de déterminer, à partir du spectre d' émissionγ total de crayons combustibles irradiés, les variations de taux de fission du cœur :

- *radialement*, en comparant un lot de crayons de caractéristiques identiques, issus d' une même expérience d' irradiation,
- *axialement*, en examinant un même crayon à différentes côtes.

Cette technique de mesure suppose que le taux de comptage total mesuré par le détecteur à un instant *t* donné est proportionnel au taux de fission de la tranche de combustible visée. Elle fait également l' hypothèse que pour deux crayons de même nature physique etirradiés simultanément en réacteur, la décroissance temporelle de l' activitéγ totale est identique.

Le taux de comptage total $n^T(t)$ vu par le détecteur à un instant t donné peut donc être assimilé au produit d'un terme caractérisant le taux de fission F de la tranche de combustible visée et d'un terme $\Delta(t)$ caractérisant la décroissance de son activité γ totale. En regroupant sous un terme n_{res}^T, qu'on suppose constant à l'échelle d'une journée de mesure, la contribution $n^T(t)$ liée au mouvement propre[17] et aux radionucléides créés lors de précédentes irradiations s'écrit :

$$n^T(t) = F\Delta(t) + n_{res}^T$$

Le taux de fission d'un crayon, indicé i, peut donc être mesuré relativement à un crayon de référence issu d'une même expérience d'irradiation, indicé o, en estimant le rapport des taux de comptage[18] net intégraux, notés n_i^T et n_o^T, pendant la même durée sur deux bancs de mesure identiques, soit :

$$\frac{F_i}{F_0} = \frac{n_i^T - n_{i,res}^T}{n_0^T - n_{0,res}^T}$$

Pour déterminer une distribution radiale de taux de fission en n positions du cœur, un lot de n+1 crayons identiques est donc extrait du réacteur après une irradiation de quelques dizaines de minutes à faible puissance (habituellement 40 W). Chacun des n crayons d'étude est placé tour à tour sur le banc de spectrométrie γ équipé du passeur automatique. Simultanément, le crayon de référence est placé sur un banc de mesure dédié au suivi de la décroissance de l'activité γ totale. On procède de la même manière pour déterminer une distribution axiale de taux de fission, correspondant à une position donnée du cœur. Le crayon d'étude est translaté pas à pas face au détecteur au moyen du passeur automatique afin de mesurer son activité γ totale en différentes côtes. Après normalisation à l'activité du crayon de référence, on peut alors reconstituer le profil axial de taux de fission. Préalablement, on aura réalisé le comptage des activités résiduelles pour chacun des crayons.

Cette technique présente l'avantage d'être particulièrement rapide et précise puisque quelques dizaines de secondes de mesure suffisent pour atteindre des incertitudes statistiques de comptage inférieures à 0.5% dans le cas de distributions axiales et inférieures à 0.2% pour les mesures radiales. De plus, aucune donnée nucléaire de base ni aucun facteur correctif calculé n'intervient dans l'analyse des données brutes, ce qui assure la robustesse du résultat de mesure. Néanmoins, la spectrométrie γ intégrale ne permet d'étudier que des lots de combustibles de même nature et ne permet de dégager que des informations sur les variations relatives de taux de fission. La technique de spectrométrie γ de pic particulier est alors mise en œuvre pour palier ces limitations.

3.2 La spectrométrie γ de pic particulier

Contrairement à la technique précédente, la spectrométrie γ de pic particulier s'intéresse à l'une des raies γ émises par un radionucléide donné. Ce type de mesure peut être utilisé soit à des fins de normalisation des distributions de taux de fission obtenues pour des lots de combustibles de nature différente **[37][38]**, soit pour caractériser des taux de capture spécifiques.

[17] On désigne par « mouvement propre », la contribution au spectre γ de la radioactivité naturelle, due notamment au ^{40}K ou aux rayons cosmiques.
[18] Implicitement, ces taux comptages sont supposés corrigés du phénomène de temps mort.

Dans le premier cas, on considère un produit de fission dont la période est bien adaptée à l'analyse post-irradiation. Par le passé, les radionucléides suivants ont fréquemment été utilisés pour recaler des nappes de taux de fission obtenues par spectrométrie γ intégrale :

- *le lanthane 140* : de période radioactive 1.65 j, ce produit de fission émet une raie γ d'énergie 1596.2 keV, dont la probabilité d'émission est suffisamment élevée pour qu'elle soit facilement mesurable (I_γ = 0.9542 **[19]**),
- *le strontium 92* : de période radioactive 2.71 h, ce produit de fission émet une raie d'énergie 1383.9 keV, mais s'avère plus délicat à mesurer compte tenu de l'activité γ totale obtenue quelques heures après irradiation.

Le principe de la mesure, qui sera décrit plus en détail dans le chapitre 2 de la partie II, consiste à comparer les activités spécifiques d'un même produit de fission entre plusieurs crayons combustibles. Ces activités sont corrigées des rendements de fission, définis comme la probabilité d'apparition du radionucléide par fission, ainsi que des transferts de rendement afin de tenir compte des différences de géométrie et/ou de densité entre les différents crayons.

Dans le second cas, la technique de spectrométrie γ de pic particulier peut être employée afin de déterminer des taux de capture d'intérêt, dans le cadre d'études de qualification des données nucléaires de base. Par exemple, le taux de conversion, qui représente le rapport du taux de production sur le taux de consommation de matière fissile, est directement proportionnel au rapport des sections efficaces intégrales. La mesure de cette grandeur, couramment pratiquée par le passé sur des détecteurs d'activation placés entre deux pastilles combustibles, a ensuite été développée sur crayon combustible à partir de 1995 **[39]**. Le banc de spectrométrie γ équipé d'un détecteur de type planaire a été spécialement conçu pour mesurer dans les meilleures conditions les raies γ à 277.6 keV, émise par le neptunium 239 (produit par capture neutronique sur l'uranium 238), et à 293.3 keV, émise par le cérium 143 pour la normalisation au taux de fission total (**Fig. 16**).

Fig. 16 : banc de spectrométrie γ dédié à la mesure du taux de conversion de l'uranium 238

Cette technique associée au banc de spectrométrie γ décrit ci-dessus sera mise à profit dans les parties IV et V pour le développement de mesures de taux de capture sur d'autres isotopes d'intérêt.

4 IDENTIFICATION DES BESOINS

Après avoir passé en revue les techniques de mesure, les dispositifs expérimentaux et leurs principales applications, cette partie va être consacrée à la définition des besoins en terme de minimisation des erreurs systématiques et de réduction des incertitudes de mesure, qui constituent le cœur de ce travail de thèse **[40]**. Dans cette section, une analyse critique des mesures effectuées jusqu'en 2003 sur les réacteurs EOLE et MINERVE va être décrite, afin de dégager les améliorations à apporter et qui feront l'objet de la partie suivante.

4.1 Identification et correction des erreurs systématiques

La première étape consiste à vérifier la pertinence des techniques de mesure employées, en d'autres termes, si les résultats obtenus sont effectivement représentatifs des grandeurs physiques recherchées. Pour ce faire, il est nécessaire d'identifier les différentes sources d'erreurs systématiques, qui, dans le cas des mesures passées, concernaient essentiellement l'instrumentation et les méthodes de mesure employées.

4.1.1 Temps mort électronique

Dès le programme MISTRAL **[41]** débuté sur le réacteur EOLE en 1995, des problèmes ont été identifiés quant à la reproductibilité de certaines mesures par spectrométrie γ, en particulier concernant les recalages de taux de fission à partir du strontium 92. Des soupçons ont notamment été émis sur la justesse de la correction de temps mort réalisée par la chaîne de mesure, telle que décrite dans la section §2 de ce chapitre.

Lors du programme expérimental BASALA **[42]** débuté sur EOLE en 2000, des écarts allant de 5 à 20 fois l'incertitude de comptage (soit environ 2 à 8%) ont été observés entre deux mesures consécutives d'un même crayon **[43]**. De plus, ces écarts s'avéraient systématiquement proportionnels au temps mort indiqué par la chaîne de mesure (s'échelonnant de 5 à 60%). Les crayons étaient éloignés autant que possible des détecteurs afin de minimiser cette source d'erreur mais il subsistait toujours un écart de plus de 5% avec les mesures réalisées à partir du lanthane 140, pour lesquelles le phénomène de temps mort était nettement moins marqué (en général inférieur à 3%).

En étudiant plus en détail le fonctionnement de la chaîne de mesure, la carte PCA3 assurant les fonctions de codage et d'analyseur multicanaux a été identifiée comme le maillon faible. En effet, ce modèle n'est pas en mesure de traiter les signaux de rejet d'empilements délivrés par les amplificateurs qui équipent les différents bancs. Ainsi, seule la durée de traitement des impulsions par l'analyseur était prise en compte dans l'estimation du temps mort de la chaîne de mesure. Cette limitation de la carte PCA3 était donc responsable des pertes de comptage par temps mort observées lors des programmes expérimentaux passés. Une coupure basse en énergie[19] des spectres était souvent réalisée au moyen d'une vis de réglage afin de réduire la gamme de spectre enregistrée au strict minimum et ainsi minimiser ces pertes, sans toutefois être en mesure de les quantifier précisément.

[19] ou LLD pour *Lower Level Discriminator*

Pour obtenir une estimation des erreurs commises, la méthode des deux sources a été employée sur les différentes chaînes de mesure équipées de carte PCA3. Elle consiste en deux étapes :

- *la mesure d' une source de référence* : une source « test » est disposée sur le banc de mesure, à une distance suffisante pour que temps mort soit faible (de l' ordre du pourcent) et on réalise la mesure du taux de comptage de ses principales raies d' émission γ pendant une durée suffisante pour que l' incertitude statistique de comptage soit inférieure à 0.5%.
- *la création d' empilement par une source perturbatrice* : en prenant garde de ne pas bouger la source « test », une seconde source est approchée du détecteur afin de générer un taux de comptage suffisant pour qu' apparaissent des empilements électroniques. La mesure du taux de comptage des mêmes raies de la source de référence est alors réalisée afin de vérifier la constance du résultat de mesure

Cette méthode est fréquemment utilisée pour caractériser les performances d' une chaîne de mesure en terme de correction de temps mort et afin d' évaluer le biais maximal commis pour une mesure à un niveau d' activité donné. Dans le cas présent, une source « test » de cobalt 60 et une source perturbatrice de baryum 133 ont été utilisées pour quantifier l' erreur commise en l' absence de rejet des empilements électroniques. Les résultats obtenus sont représentés ci-dessous (**Fig. 17**) :

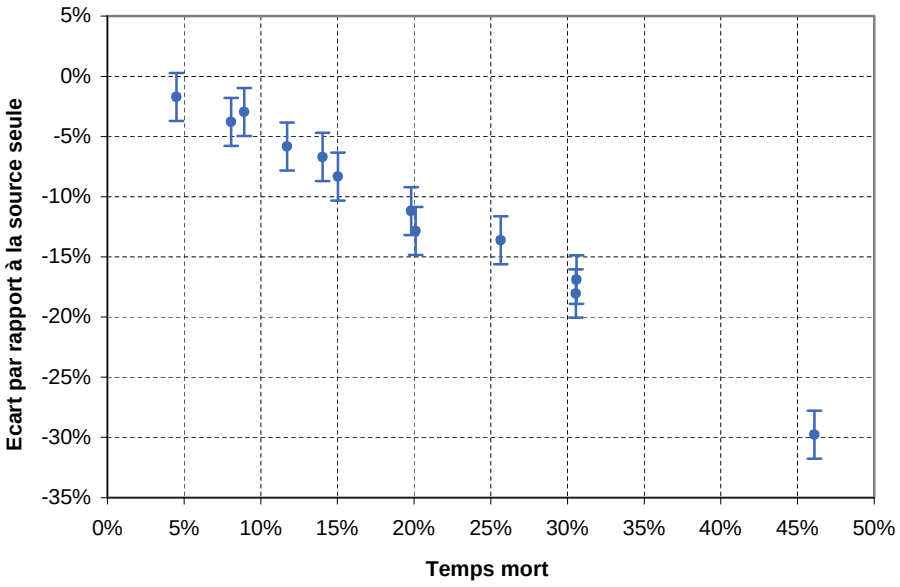

Fig. 17 : pertes de comptage par temps mort sur la chaîne de mesure utilisant la carte PCA3

Cette figure permet de démontrer l' existence d' un biais systématique ε_θ lié à la correction de temps mort réalisée par la chaîne de mesure, proportionnel au temps mort θ selon :

$$\varepsilon_\theta \cong 0.6 \times \theta$$

Ce résultat conforte les corrélations observées lors du programme BASALA entre l' erreur commise et le temps mort. Il permet également de conclure que les mesures de recalage de taux de fission entre deux crayons sont d' autant plus biaisées que leurs activités respectives diffèrent l' une de l' autre. La première étape du travail d' optimisation qui sera décrit dans la partie II, consistera à envisager d' autres systèmes électroniques (amplificateurs et codeurs) permettant un fonctionnement quantitatif optimum jusqu' à des taux de comptage de l' ordre de $10^5 s^{-1}$.

4.1.2 Configuration des bancs de mesure

Parallèlement à la maîtrise de l' instrumentation par spectrométrie γ, un travail d' optimisation des bancs de mesure est nécessaire pour certaines applications spécifiques, en particulier dans le cadre du développement de nouvelles mesures de taux de capture ainsi que pour la détermination du profil axial de taux de fission par spectrométrie γ intégrale.

Faisant suite aux études de faisabilité réalisées par le passé **[39]**, des études consacrées au taux de capture du plutonium 242 **[44]** ont été réalisées sur des crayons MOX, lors du programme MISTRAL 3 dans EOLE, basées sur le même principe que les mesures de taux de conversion de l' uranium 238. Ce type d' expérience est particulièrement délicat à mettre en œuvre pour les raisons suivantes :

- *fort taux de comptage* : la période de décroissance du plutonium 243 (4.96 h) impose de réaliser la mesure quelques heures après irradiation en réacteur et nécessite l' utilisation d' une électronique adaptée aux taux de comptage obtenus (de l' ordre de 5.10^4 à 1.10^5 s^{-1}).
- *traitement des spectres* : le principal pic mesurable du plutonium 243 correspond à la raie γ d' énergie 84.0 keV. Dans cette gamme d' énergie, le fond Compton est élevé (rapport pic sur fond inférieur à 1), présente un fort gradient (voisin de 1) et des phénomènes inhérents à la mesure des basses énergies peuvent apparaître (exemples : pic d' échappement du germanium, diffusion cohérente) et rendre la mesure de la surface nette du pic à 84.0 keV très sensible aux méthodes de traitement des spectres γ.
- *fluorescence X* : sur tous les spectres obtenus à partir du banc de spectrométrie γ dédié aux mesures de taux de conversion, des raies sont identifiées aux énergies de 72.8, 75.0 et 84.7 et 87.3 keV (**Fig. 18**). Elles correspondent au phénomène de fluorescence X qui intervient sur les collimations en plomb utilisées pour collimater le rayonnement issu du crayon combustible. Compte tenu de la dégradation de la résolution induite par les forts taux de comptage, la séparation du pic d' intérêt à 84.0 keV et du pic perturbateur à 84.7 keV est rendue délicate.

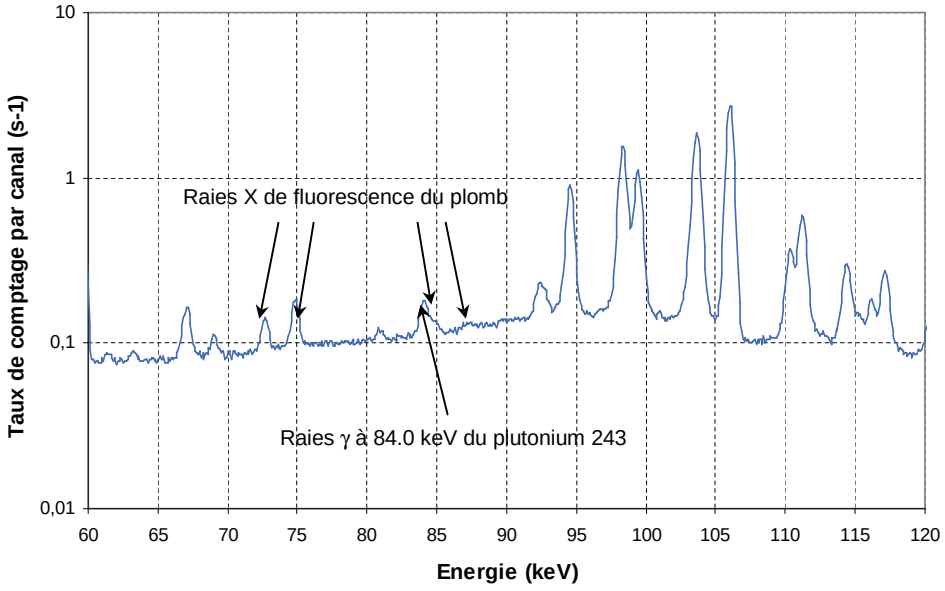

Fig. 18 : spectre d' un crayon MOX mesuré deux heures après irradiation

La détermination du taux de capture du plutonium 242 n' était donc pas réalisable avec une incertitude suffisamment réduite en raison de ces différents phénomènes limitatifs. Un travail d' optimisation, passant par une analyse des phénomènes de fluorescence X et une adaptation du banc de mesure, sera nécessaire pour déterminer l' activité du plutonium 243 dans les meilleures conditions.

La configuration du banc de spectrométrie γ utilisé pour la détermination du profil axial de taux de fission d' un crayon joue également un rôle majeur dans la précision du résultat de mesure. Sur ce banc, une fenêtre de collimation en plomb de 50 mm d' épaisseur, ouverte de 10 mm, est utilisée pour analyser, tranche par tranche, l' activité γ totale du crayon par la méthode intégrale (**Fig. 19**). Dans ce type de mesure, il est fondamental de s' assurer de la directivité du flux γ reçu par le détecteur, c' est-à-dire que la majorité des photons détectés proviennent bien de la tranche de combustible visée.

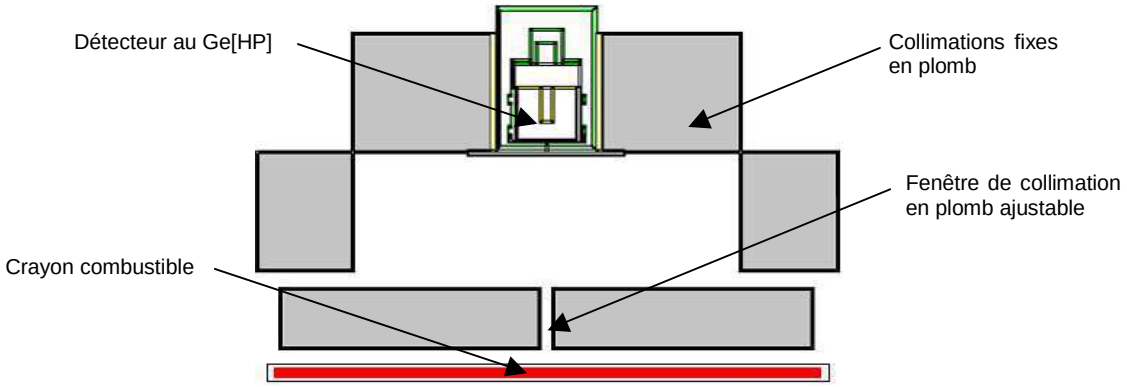

Fig. 19 : schéma du banc dédié aux mesures de profil axial de taux de fission

Sachant que le coefficient linéique d' atténuation du plomb pour des photons d' énergie 1 MeV est environ de $8.06.10^{-1}$ cm^{-1}, un calcul élémentaire montre qu' environ 2% d' entre eux traversent les 50 mm d' épaisseur de collimation sans subir d' interaction. Si, de plus, on tient compte des photons diffusés qui contribuent au spectre intégral enregistré et si on note que la tranche visée représente à peine plus de 1% de la longueur totale d' un crayon EOLE (800 mm), on comprend aisément que le flux total reçu par le détecteur n' est pas parfaitement directif et qu' une part non négligeable de photons diffusés en provenance du reste du crayon atteignent le détecteur. Le dimensionnement inadapté des collimations de ce banc risque donc d' influer significativement sur le profil axial mesuré.

Il est par conséquent fondamental de connaître la « résolution spatiale » de la fenêtre de collimation (i.e. la largeur utile réellement vue par le détecteur). Dans le chapitre 2 de la partie III, le code MCNP sera mis à profit pour optimiser la configuration du banc de mesure, afin de réduire la contribution des photons diffusés, et pour la quantification des erreurs commises.

4.2 Estimation et réduction des incertitudes

En se basant sur les programmes expérimentaux MISTRAL et BASALA, les incertitudes moyennes reportées sur les mesures réalisées par spectrométrie γ de pic particulier étaient :

- de l' ordre de 2% pour les recalages de taux de fission obtenus à partir du lanthane 140,
- de l' ordre de 5% pour les recalages de taux de fission obtenus à partir du strontium 92,
- de l' ordre de 3% pour les taux de conversion de l' uranium 238.

Ces incertitudes intègrent une composante liée aux calculs de facteurs correctifs et aux données nucléaires de base utilisées ainsi qu'une composante liée à la mesure des surfaces nettes et à l'étalonnage en rendement du détecteur. La définition d'une méthodologie rigoureuse de propagation des incertitudes sur ces différents paramètres et de combinaison de plusieurs mesurages du mesurande, doit permettre de réduire l'incertitude finale sur le résultat de mesure. Ce travail constitue l'un des objectifs principaux de ce travail de thèse et fera l'objet du chapitre 3 de la partie II. In fine, les progrès réalisés sur l'évaluation des incertitudes auront une répercussion directe sur la qualification des formulaires de calcul associés et en particulier sur la connaissance de certaines données nucléaires de base : sections efficaces, données de décroissance (rendements de fission, périodes radioactives, probabilités d'émission γ). Les parties IV et V seront dédiées à ces applications.

4.2.1 Estimation des incertitudes

Les références **[43]** et **[45]** décrivent les méthodologies utilisées jusqu'alors pour le traitement et la propagation des incertitudes des mesures de recalage de taux de fission et de taux de conversion. Tout en gardant à l'esprit qu'une valeur exacte de l'incertitude est impossible à obtenir, l'analyse de certaines sources d'incertitude était parfois trop approximative.

Tout d'abord, concernant la composante statistique de comptage liée au caractère aléatoire de la désintégration radioactive, le calcul de l'incertitude absolue sur la surface nette N d'un pic était reportée égale à $\sqrt{N}$. Or, ce résultat, dérivé de la loi de Poisson, n'est valable que pour des comptages directs, c'est-à-dire soit pour la somme des évènements d'un canal, soit pour la somme de tous les évènements enregistrés dans le spectre. La surface nette d'un pic étant la différence entre un comptage direct et un comptage estimé dû au fond continu, il faut tenir compte de ces deux composantes dans le calcul d'incertitude. Si l'approche passée s'avèrait suffisante pour la mesure des pics à haute énergie (> 1 MeV) où le continuum est faible devant la hauteur du pic (< 10^{-2}), ce n'est plus du tout le cas pour la mesure de raies γ à plus faible énergie, notamment les pics caractéristiques du taux de conversion de l'uranium 238 aux énergies 277.6 et 293.3 keV et la sous-estimation de l'incertitude peut atteindre un facteur 2. L'acquisition récente du logiciel GENIE 2000 **[36]** constitue un apport important pour obtenir une évaluation plus pertinente de l'incertitude liée au comptage. Sa représentativité sera discutée dans le chapitre 1 de la partie II.

Ensuite, en l'absence d'outils informatiques adaptés, l'incertitude associée au rendement d'absorption totale était estimée par une approche « enveloppe », d'après l'écart moyen des points d'étalonnage par rapport à la courbe ajustée. Elle conduisait alors à des incertitudes de l'ordre de 2 à 3%, alors que la plupart des études disponibles dans la littérature reportent des valeurs meilleures que 1%. La réduction de cette composante de l'incertitude, qui va également dans le sens d'une meilleure représentativité, constitue un enjeu majeur. Elle passe par l'expression de la matrice de variance du problème qui permet de tenir compte des incertitudes et des corrélations entre les différentes sources d'étalonnage utilisées. Ce point sera détaillé dans le chapitre 2 de la partie II.

4.2.2 Propagation des incertitudes

Pour des questions de commodités, la propagation des variances réalisée par le passé et décrite dans les références **[39]** et **[43]**, ne prenait en compte aucune covariance entre les différentes variables intervenant dans les équations d'analyse. Cette simplification était justifiée pour les mesures de taux

de comptage, pour les probabilités d'émission γ associées à deux radionucléides différents ou pour les la convergence des calculs de type Monte-Carlo. Néanmoins, cette approche simplifiée conduisait toujours à une sur-estimation de l'incertitude sur le résultat final pour deux raisons.

Tout d'abord, il s'avère que l'incertitude sur le rapport des rendements d'absorption totale, qui intervient dans l'expression du taux de conversion de l'uranium 238 (cf. chapitre 3 de la partie II), ne peut être estimée sous la forme d'une somme quadratique simple des incertitudes individuelles. En effet, ces rendements étant déterminés à partir d'un même étalonnage expérimental, il existe une forte corrélation entre deux points issus de la même courbe de calibration. De plus, on comprend intuitivement que l'incertitude sur ce rapport est nécessairement plus faible pour deux énergies proches (par exemple : 277.6 keV et 293.3 keV) que pour deux énergies éloignées (par exemple : 277.6 keV et 1596.2 keV), ce que ne prenait pas en compte l'approche décrite dans la référence **[39]**.

Ensuite, pour les mesures de distribution de taux de fission entre plusieurs combustibles, il est fréquent que des données nucléaires de bases communes aux différentes mesures, soient utilisées. En particulier, qu'ils s'agissent de combustibles MOX ou UO_2, le rapport des taux de fission (encore appelé « facteur de recalage ») fait systématiquement intervenir un rapport de rendements de fission. Chaque terme est évalué à partir de données nucléaires relatives aux différentes réactions de fission et notamment : $^{235}U(n,f)$ et $^{238}U(n,f)$. Il existe donc une forte corrélation entre les mesures de taux de fission entre différents combustibles que l'approche utilisée par le passé ne prenait pas en compte.

4.2.3 Intercomparaison et combinaison de résultats de mesure

Le dernier point de l'analyse critique des méthodes de traitement des incertitudes concerne la combinaison de plusieurs résultats de mesure. Il peut s'agir de:

- combinaisons de résultats de mesure obtenus à partir d'une même raie γ et dans les mêmes conditions expérimentales (comparaison en terme de répétabilité[20]),
- combinaisons des résultats obtenus à partir de plusieurs raies γ et/ou produits de fission représentatifs du même mesurande (comparaison en terme de reproductibilité).

Par le passé et dans la plupart des cas, les mesures par spectrométrie γ consistaient en des séries de 2 à 4 mesurages d'un même échantillon. Elles permettaient de contrôler la reproductibilité de la mesure de taux de comptage en vérifiant que l'écart-type de l'échantillon de résultats était du même ordre de grandeur que l'incertitude individuelle d'un comptage. Ces résultats étaient ensuite combinés par une moyenne pondérée et une incertitude calculée à partir de la variance interne de la moyenne.

En revanche, peu d'études étaient consacrées à la comparaison de taux de réactions issus de différentes raies γ et/ou produits de fission. Par exemple, pour les mesures de taux de conversion, un écart de 2% est observé sur l'évaluation de la probabilité d'émission de la raie γ à 293.3 keV du cérium 143, entre les bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JEF2.2 et se répercute directement sur le résultat de la mesure. La combinaison de plusieurs produits de fission et l'analyse d'autres raies γ caractéristiques permettraient d'aboutir à une incertitude réduite sur le résultat de la mesure et moins dépendante des données nucléaires de base utilisées.

Des méthodes de combinaison de résultats de mesure seront donc proposées et formalisées dans le chapitre 3 de la partie II et l'apport du travail quantifié dans les parties III, IV et V.

[20] En toute rigueur on devrait parler de reproductibilité et non de répétabilité car les séries de mesurages successifs d'un même radionucléide nécessitent généralement le calcul d'une correction de décroissance entre chacun d'eux qui introduit une source d'incertitude supplémentaire.

5 CONCLUSION

Dans ce chapitre, les bancs de spectrométrie γ associés aux réacteurs EOLE et MINERVE et les principales techniques de mesure ont été présentés. Une analyse qualitative de l' instrumentation, des méthodes de traitement et de propagation des incertitudes, révèle un certain nombre d' améliorations à apporter sur les mesures par spectrométrie γ réalisées par le passé, notamment :

- **la correction non optimale du temps mort**, liée aux cartes codeur/analyseur PCA3 utilisées jusqu' alors, responsable d' un biais systématique sur les mesures de taux de comptage, proportionnel à l' activité de l' échantillon,
- **la configuration inadaptée des bancs de spectrométrie γ** pour la réalisation de certaines expériences, en raison de l' inefficacité des collimationsutilisées ou de la présence de raies de fluorescence X du plomb perturbant la mesure,
- **l' utilisation de méthodes « enveloppes » pour le traitementdes incertitudes** par l' absence de prise en compte des corrélations entre les différentes variables.

Le travail mené au cours de la thèse s' appuiera sur ces différents besoins. Il aura pour objectifs de minimiser les erreurs systématiques et de réduire les incertitudes expérimentales par l' utilisation d' instrumentations et de méthodes de traitement optimisées.

CONCLUSION

Cette première partie a permis tout d'abord d'introduire le contexte général dans lequel s'inscrit cette thèse. Répondant à un besoin croissant de qualification des formulaires de calcul et de maîtrise des incertitudes, l'amélioration des expériences réalisées dans les maquettes critiques EOLE et MINERVE est primordiale. Dans ce contexte, la mise en place d'un travail de thèse consacré à l'optimisation des techniques de spectrométrie γ s'appuie sur des besoins clairement identifiés et dont la finalité présente des répercutions qui dépassent largement les missions du SPEx.

Il s'agissait ensuite d'introduire les principes de base de la spectrométrie γ et en particulier ses limitations majeures. Les problématiques de correction de temps mort, d'analyse de spectres et d'évaluation des facteurs correctifs à appliquer aux données brutes, ont notamment été évoquées. Elles ont ensuite servi à l'analyse critique des techniques de spectrométrie γ utilisées jusqu'alors au SPEx et à l'identification précise des besoins auxquels cette thèse va être amenée à répondre, en particulier :

- **la maîtrise des erreurs systématiques**, liées à l'instrumentation et à la configuration des bancs de mesure utilisées jusqu'alors,
- **la réduction des incertitudes**, obtenue par une meilleure évaluation des paramètres de sensibilité, une propagation rigoureuse des incertitudes et enfin une combinaison judicieuse de plusieurs résultats de mesure représentatifs du même mesurande.

Ces deux objectifs majeurs de la thèse font l'objet de la partie suivante. Les enseignements et résultats qui en découlent seront ensuite appliqués à des mesures de distribution de taux de fission dans la partie III et au développement de mesures contribuant à la qualification de données nucléaires de base dans les parties IV et V.

PARTIE II :
DEVELOPPEMENT ET OPTIMISATION DE TECHNIQUES DE MESURE PAR SPECTROMETRIE γ

N'a de convictions que celui qui n'a rien approfondi.

Émile-Michel CIORAN

INTRODUCTION

La première partie a permis de mettre en lumière les enjeux liés à une meilleure maîtrise des techniques de mesure. Cette deuxième partie est maintenant consacrée à la présentation du travail effectué pour répondre à ce besoin. Elle a pour finalité la mise à niveau de l'instrumentation pour la spectrométrie γ et le développement de méthodes figées d'analyse des données brutes et de traitement des incertitudes. L'ensemble des éléments développés sera ensuite appliqué à des mesures de paramètres d'intérêt de la physique des réacteurs, dans les parties III, IV et V.

Le premier chapitre s'intéresse à l'**optimisation de l'instrumentation par spectrométrie γ** ainsi qu'à la caractérisation du logiciel de traitement des spectres. Une analyse comparative de différentes chaînes électroniques est réalisée. Elle conduit à la définition du dispositif le plus adapté pour répondre aux besoins de minimisation des erreurs systématiques dues au temps mort et à la quantification des performances atteintes. Une méthode de caractérisation de la justesse des calculs de surface nette réalisés par le logiciel GENIE 2000, est ensuite mise en place. Elle aboutit à l'émission de recommandations sur le choix des paramètres d'analyse du logiciel et à l'identification de ses limitations pour les cas les plus sensibles.

Les chaînes de mesure étant caractérisées et maîtrisées, le chapitre suivant est consacré au développement d'une **méthodologie générale de traitement des données brutes de mesure**, permettant d'accéder à des taux de réaction d'intérêt. Les équations générales d'évolution régissant les différentes phases de mesure sont présentées, ainsi que les méthodes d'évaluation optimisées des facteurs correctifs, développées au cours de la thèse.

Dans le troisième chapitre, cette méthodologie générale est appliquée aux cas particuliers des mesures relatives de taux de réaction réalisées sur EOLE et MINERVE (recalage de taux de fission et indice de capture). **Des méthodes rigoureuses d'évaluation et de propagation des variances** sont proposées afin d'aboutir à des incertitudes réduites sur les résultats de mesure et mieux maîtrisées qu'auparavant.

CHAPITRE 1 : OPTIMISATION DE L' INSTRUMENTATION PAR SPECTROMETRIE γ

1 INTRODUCTION

Dans tous les domaines de la métrologie de la radioactivité (exemples : scintillation liquide, spectrométrie de masse), il n' est pas de mesures précises sans une analyse approfondie de l' instrumentation qui fait le lien entre le phénomène physique étudié (la désintégration radioactive) et la donnée brute obtenue (un nombre d' évènements par unité de temps). Il est essentiel de bien connaître les domaines de validité, les effets limitatifs (temps mort, résolution), qu' ils soient systématiques ou aléatoires (instabilité, dérive en fonction de la température).

Aussi, le travail d' optimisation des techniques de mesure par spectrométrie γ sur combustible irradié passe-t-il en premier lieu par la caractérisation des chaînes électroniques utilisées pour le traitement des signaux générés par le détecteur et leur discrimination sous forme de spectre d' amplitude. La première partie a permis de mettre en évidence les erreurs induites par les cartes PCA3, incapables de gérer les signaux de rejet d' empilements délivrés par les amplificateurs.

Ce chapitre a donc pour objectif de comparer différentes électroniques de mesure disposant de cette fonctionnalité et de caractériser les performances atteintes en terme de compromis entre la résolution et la capacité de traitement (i.e. le taux de comptage en sortie de chaîne en fonction du taux de comptage généré par le détecteur). Pour le système le plus apte à répondre aux besoins du SPEx, une méthodologie d' optimisation de ses réglages est ensuite proposée pour le banc dédié aux mesures de taux de conversion de l' uranium 238. Enfin, une méthode expérimentale de qualification des calculs de surface nette réalisés par le logiciel GENIE 2000 est mise en place et permet de vérifier la représentativité de l' incertitude annoncée compte tenu des écarts observés entre la valeur vraie de la surface nette et le résultat donné par le logiciel.

2 ETUDE COMPARATIVE D' ELECTRONIQUES DE MESURE

L' étude comparative, présentée dans cette section, est basée sur différentes électroniques de mesure à disposition au moment de la réalisation de l' étude (**Fig. 20**) :

- 2 amplificateurs analogiques, modèles CANBERRA 2024 et 2026,
- 2 cartes codeur/analyseur, modèles PCA3-8K et MP2,
- 1 chaîne numérique assurant l' amplification et le codage, modèle CANBERRA DSP 2060.

A noter que d' autres systèmes auraient pu être utilisés, notamment la chaîne ADONIS développée par le CEA/DRT/DETECS pour la mesure des très hauts taux de comptage ($> 10^6$ s^{-1}). Toutefois comme les émissions γ des combustibles EOLE et MINERVE sont limitées pour des questions de radioprotection, les électroniques sus-citées sont à même de répondre aux besoins.

Avant de caractériser le fonctionnement qualitatif et quantitatif de chacune d'elles, un descriptif des fonctionnalités de ces appareils va tout d'abord être établi **[46]**.

Fig. 20 : vue des différents dispositifs de mesure utilisés dans le cadre de l'étude comparative. De gauche à droite : amplificateur 2026, amplificateur 2024, DSP 2060, carte PCA3, carte MP2.

2.1 Présentation des électroniques de mesure

L'amplificateur 2026 [47] est le modèle de base, utilisé jusqu'à présent. Il dispose d'une entrée acceptant les signaux délivrés par les préamplificateurs de charge et d'une entrée d'inhibition pour les modèles utilisant une contre-réaction transistorée. En sortie, des signaux gaussiens unipolaires ou bipolaires sont générés, ainsi que des signaux TTL (*Transistor-Transistor Logic*), par les connecteurs DT (*Dead Time*) et PUR (*Pile Up Rejection*), pour exploiter les fonctionnalités de rejet d'empilements. Il dispose également d'une sortie ICR (*Incoming Count Rate*), qui correspond au taux d'impulsions reçu en entrée du dispositif. Sur sa face avant, il est pourvu des réglages suivants :

- *le gain :* trois potentiomètres d'ajustement sont à disposition, correspondant à trois gammes de réglage (*coarse* de 5 à 1000, *fine* de 0.5 à 1.5 et *super fine* avec un pas de 1/16000).
- *le shaping time* : le potentiomètre permet de sélectionner une constante de temps de mise en forme parmi les valeurs suivantes : 0.5, 1, 2, 4, 6 et 12 µs.
- *le P/Z* : une vis de réglage du pôle zéro permet de corriger les défauts de retour à la ligne de base, liés à la mise en forme de type CR-RC réalisée par l'amplificateur (cf §2.2.1).

L'amplificateur 2024 [48] est similaire au modèle 2026 mais comporte davantage de réglages. Sur la face avant du système, on trouve notamment un potentiomètre qui permet d'ajuster son seuil de discrimination (i.e. sensibilité au rejet d'empilements). On dispose également d'une plus large gamme de réglage du gain (de 3 à 3900) et de constantes de mise en forme (jusqu'à 0.25 µs) pour traiter les cas de forts taux de comptage (> 10^5 s^{-1}).

La carte d'acquisition de base, réalisant les opérations de codage et d'analyse multicanaux, est de modèle **PCA3-8K [49]**. Elle utilise un codeur de type Wilkinson de fréquence 100 MHz. L'analyseur dispose de 8192 canaux et le choix entre 6 gains de conversion : 256, 512, 1024, 2048, 4096, 8192. La carte peut être utilisée en mode PHA (*Pulse Height Analysis*) pour l'analyse des spectres en énergie et en mode MCS (*Multi Channel Scaling*) pour les mesures dynamiques. En face avant de la carte, on dispose de deux vis de réglage du discriminateur d'amplitude (i.e. coupure basse et haute en énergie) : LLD (*Low Level Discriminator*) et HLD (*High Level Discriminator*).

Un autre système d'acquisition, dénommé **Multiport II (MP2) [50]**, est également à disposition. Il est basé sur un codeur à poids, avec un temps d'analyse fixe de 0.9 µs. L'analyseur utilise jusqu'à 16384 canaux et dispose de tous les gains de conversion possibles entre 256 et 16384. Il permet également d'utiliser les modes PHA et MCS, tous les paramètres étant configurables depuis le PC d'acquisition. A la différence de la carte PCA3-8K il accepte les signaux TTL délivrés par les sorties PUR et DT pour le traitement des empilements électroniques. En outre, il peut être connecté au PC via une liaison USB ou Ethernet, ce qui le rend très souple d'utilisation.

Enfin, le **Digital Signal Processor 2060 (DSP) [51]**, est un système numérique prenant en charge les impulsions fournies par le préamplificateur et assurant leur mise en forme et leur conversion analogique/numérique afin d'être directement exploitables par l'analyseur multicanaux. Les réglages disponibles sont nombreux et permettent d'optimiser la réponse quantitative du système. Sans détailler toutes les fonctions disponibles, certaines caractéristiques sont propres à ce système. Le DSP réalise notamment une mise en forme trapézoïdale, caractérisée par deux constantes de temps :

- *le temps de montée* T_r (ou RT pour *rise time*), qui impose la durée de montée et de descente du signal. La gamme de réglage s'étend de 0.4 µs à 28 µs. Il conditionne la capacité de traitement du système et représente l'équivalent du *shaping time*.
- *le temps du plateau* T_f (ou FT pour *flat top*), qui impose la durée pendant laquelle le signal reste à son maximum. La gamme de réglage s'étend de 0 µs à 3 µs. Cette durée permet de mieux prendre en compte les effets balistiques dans le détecteur.

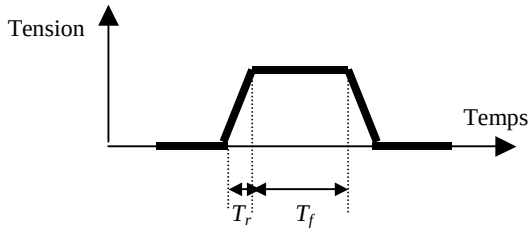

Fig. 21 : mise en forme des signaux réalisée par le DSP

Le DSP permet l'activation ou non du mode de rejet d'empilements, ainsi que le choix du mode automatique ou manuel pour le réglage du seuil de discrimination. En plus de ces options, il dispose de fonctionnalités plus poussées pour ajuster finement la correction de temps mort :

- *le PUR Guard* : il correspond à un temps de scrutation pendant lequel la présence d'une post impulsion peut être détectée lorsque le signal est en cours de traitement. Le réglage de ce paramètre permet d'ajuster la durée pendant laquelle le signal en cours de traitement ne doit pas être perturbé par l'arrivée d'une post impulsion. Si celle-ci se présente au cours de ce laps de temps interdit, les deux signaux seront traités comme une impulsion empilée et non comme une impulsion unique. La dynamique de ce réglage s'étend de 1.1 à 2.5 (facteur multiplicatif de la durée $T_r + T_f$)
- *le LT Trim* : il s'agit d'un paramètre qui permet d'optimiser la correction en temps actif. En effet, lorsqu'une impulsion empilée est détectée, elle est rejetée et l'électronique corrige la durée d'acquisition du temps perdu à traiter cette mauvaise impulsion. Il peut arriver que le facteur correctif de temps mort ne parvienne pas à corriger exactement la perte de temps occasionnée par le traitement de l'empilement. Le paramètre LT Trim permet alors de réaliser un ajustement fin de cette durée, avec une dynamique de réglage qui s'étend de 0 à 1000.

2.2 Fonctionnement qualitatif

Ces différentes électroniques vont maintenant être associées sous forme de chaîne de mesure (i.e. amplificateur + codeur + analyseur) afin d'étudier leur comportement qualitatif et quantitatif. A partir d'un détecteur coaxial d'efficacité relative 15%, les configurations suivantes sont considérées :

- amplificateur 2026 + carte PCA3-8K (soit la chaîne de mesure de base utilisée jusqu'alors),
- amplificateur 2026 + carte MP2,
- amplificateur 2024 + carte MP2,
- système numérique DSP + carte PCA3-8K (seulement l'étage d'analyseur multicanaux).

Chacune de ces configurations est successivement connectée et caractérisée en fonction des différents réglages disponibles.

2.2.1 Pôle zéro

Avant toute étude sur les paramètres de gain et de constante d'intégration, il est nécessaire de réaliser un ajustement du PZ (Pôle Zéro) pour les corrections de remise à zéro du signal généré par l'amplificateur. En effet, le circuit dérivateur-intégrateur CR-RC utilisé par l'amplificateur fait apparaître un écart à la ligne de base qui tend vers zéro avec une constante de temps identique au *shaping time*. Une résistance, placée en parallèle de la capacité du circuit dérivateur, peut être ajustée pour compenser ce phénomène qui conduit à une déformation de l'aspect gaussien des pics (**Fig. 22**).

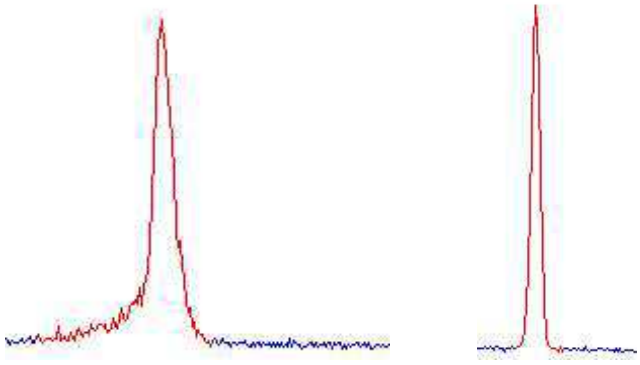

Fig. 22 : allure des pics du spectre, dans le cas d'une sous-compensation du PZ (*à gauche*) et d'une compensation correcte du PZ (*à droite*)

Sur les systèmes analogiques, cet ajustement est réalisé à partir d'une vis mécanique. Un contrôle à l'oscilloscope est réalisé pour ajuster au mieux le retour de la ligne de base. Pour les chaînes de mesure utilisant un amplificateur analogique, le réglage du PZ doit être vérifié et réajusté après toute modification des paramètres de mise en forme du signal (gain et *shaping time*).

Le DSP dispose quant à lui d'un réglage digital avec une plage de 0 à 4095 qui autorise un ajustement plus fin et plus reproductible. De plus, il s'avère que pour ce système, le réglage du PZ est pratiquement insensible aux modifications des constantes de mise en forme et de gain, ce qui le rend plus souple d'utilisation.

2.2.2 Gain de l' amplificateur

Il s' agit maintenant d' évaluer, pour une constante de mise en forme fixée (2 µs), l' influence du gain sur chaque chaîne de mesure, en terme de temps mort et de résolution en énergie. Une source de cobalt 60, dont on étudie la raie à 1173.2 keV, est placée sur le banc de mesure. La distance est adaptée pour que le taux de comptage en entrée de la chaîne de mesure (ICR) soit d' environ 3×10^3 s^{-1}. On identifie alors les comportements suivants (**Fig. 23**) :

- la résolution en énergie est améliorée (réduction de la LTMH d' un facteur 1.4 à 2), car l' augmentation du gain améliore le rapport signal sur bruit électronique. On note également qu' à gain identique, la meilleure résolution est obtenue pour la chaîne DSP+PCA3.
- le temps mort est proportionnel au gain pour la chaîne 2026+PCA3 qui utilise un codeur Wilkinson. En effet, le temps de décharge du condensateur, qui permet de réaliser la conversion analogique/numérique, est proportionnel à l' amplitude du signal et donc au gain de l' amplificateur. En revanche, pour les chaînes MP2 et DSP qui utilisent un codeur à poids, le temps de conversion est fixe et le temps mort est pratiquement constant en fonction du gain.

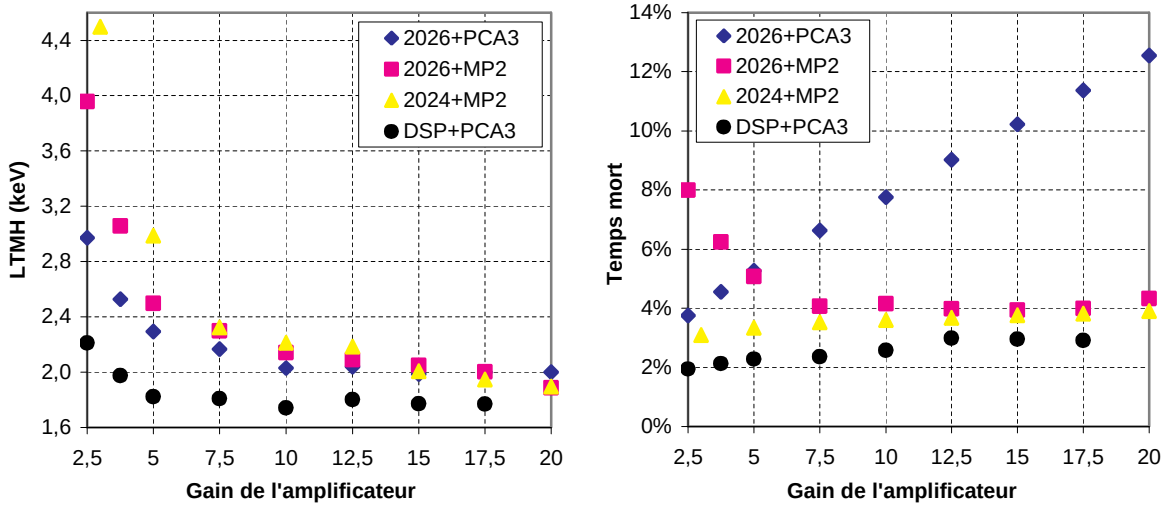

Fig. 23 : influence du gain sur la résolution (*à gauche*) et sur le temps mort (*à droite*)

2.2.3 Constantes de temps

En retenant une valeur de gain de 10 qui permet un bon compromis entre la résolution et le temps mort, chaque électronique est ensuite caractérisée en fonction de la constante de temps pour la mise en forme du signal. En se basant sur la même approche expérimentale qu' au §2.2.2, on observe, pour les trois chaînes utilisant des amplificateurs analogiques (**Fig. 24**), que :

- la résolution en énergie est fortement dégradée pour des *shaping times* inférieurs à 2 µs. En effet, l' utilisation de valeurs plus courtes conduit à une réduction de la capacité de filtration du bruit et à l' apparition d' effets balistiques liés aux défauts de collection de charges.
- le taux de temps mort évolue proportionnellement au *shaping time* car la durée que met l' étage d' entrée du codeur pour lire le signal et le comparer aux niveaux bas (LLD) et haut (HLD) est de l' ordre de 2.6 fois la constante d' intégration de l' amplificateur **[15]**.

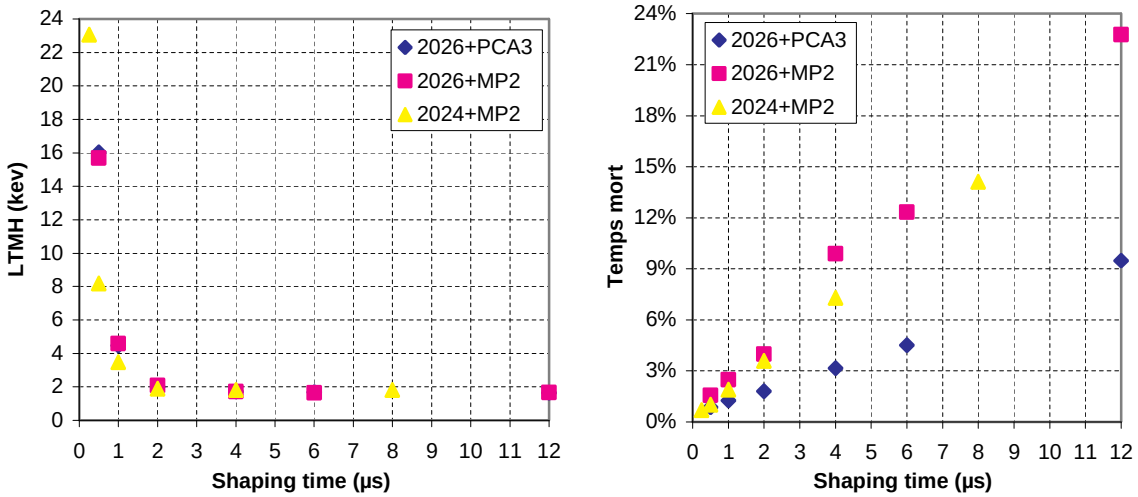

Fig. 24 : influence du *shaping time* sur la résolution (*à gauche*) et sur le temps mort (*à droite*) pour les chaînes de mesure utilisant un amplificateur analogique

L' influence des deux paramètres de mise en forme du DSP surle comportement de la chaîne de mesure se présente comme suit (**Fig. 25** et **Fig. 26**) :

- La résolution en énergie dépend presque exclusivement du *rise time*. Contrairement aux deux systèmes analogiques précédents, la résolution reste excellente avec des temps d' intégration courts : la comparaison des résolutions obtenues à 12 µs et à 0.5 µs montre une dégradation d' un facteur 1.6 pour le DSP et d' un facteur 5 à 10 pour les amplificateurs 2024 et 2026. Le temps de plateau est quant à lui utilisé pour s' affranchir des défauts balistiques. Un réglage à la valeur de 0.8 µs permet un bon compromis entre la capacité de traitement et la résolution.
- Le temps mort évolue de façon proportionnelle aux deux constantes de mise en forme. On remarque également que le traitement réalisé par le DSP conduit, pour une constante de mise en forme équivalente[21] à celle utilisée sur des systèmes analogiques, à un temps mort de l' électronique plus faible.

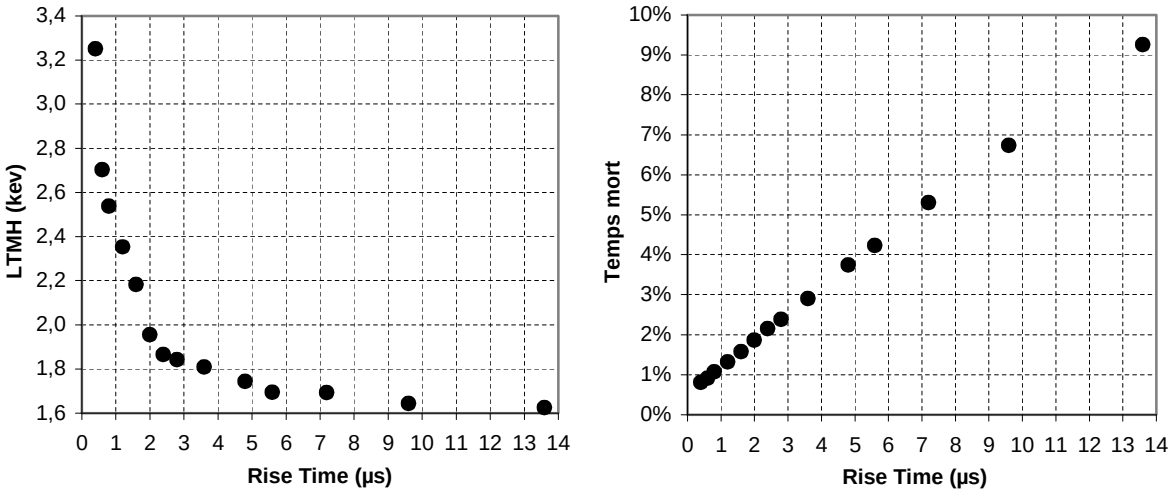

Fig. 25 : influence du *rise time* du DSP sur la résolution (*à gauche*) et le temps mort (*à droite*)

[21] Table d' équivalence donnée dans la référence **[51]**. Par exemple, RT = 1.2 µs et FT = 0.6 µs sont équivalents à un *shaping time* de 1 µs.

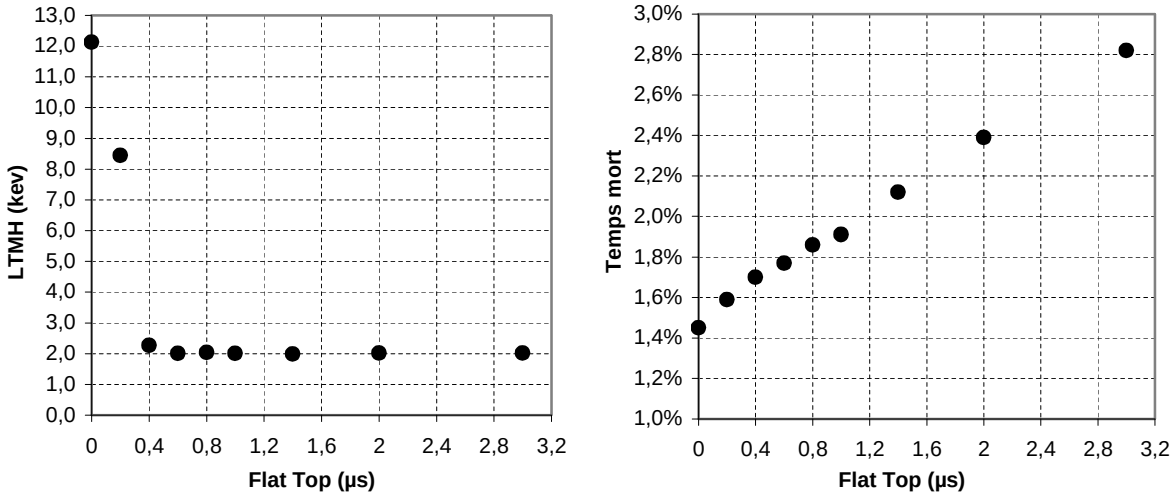

Fig. 26 : influence du *flat top* du DSP sur la résolution (*à gauche*) et le temps mort (*à droite*)

2.2.4 Synthèse des réglages de forme

Pour les mesures réalisées sur les réacteurs EOLE et MINERVE, les taux de comptage en entrée de la chaîne de mesure peuvent atteindre 10^5 s^{-1}. Dans ces conditions, un fonctionnement à faible constante d' intégration est nécessaire. Cependant, la complexité des spectres de produits de fission impose une résolution optimale pour permettre une séparation précise de pics proches.

A l' issu de cette étude sur le comportement de chaque électronique, le meilleur compromis, selon qu' on privilégie la résolution ou la capacité de traitement, est obtenu pour les réglages suivants :

Chaîne de mesure	Gain	*shaping time* ou RT / FT	
		Capacité de traitement optimale	Résolution en énergie optimale
2026+PCA3	10	2 µs	4 µs
2026+MP2	10	2 µs	4 µs
2024+MP2	10	2 µs	4 µs
DSP+PCA3	10	1.2 µs / 0.8 µs	4.8 µs / 0.8 µs

Tab. 1 : synthèse des réglages de forme optimums

2.3 Performances quantitatives

Après cette étude qui a permis de déterminer les paramètres de forme les plus adaptés pour chaque électronique, les performances quantitatives vont maintenant être caractérisées.

2.3.1 Circuit de rejet d' empilements

L' apport du circuit de rejet d' empilements peut-être visualisé par la superposition du spectre d' une source de cobalt 60 et de césium 137, obtenu tout d' abord à partir de la chaîne 2026+PCA3 sans utilisation du PUR, puis à partir la chaîne 2024+MP2 avec utilisation du PUR (**Fig. 27**) :

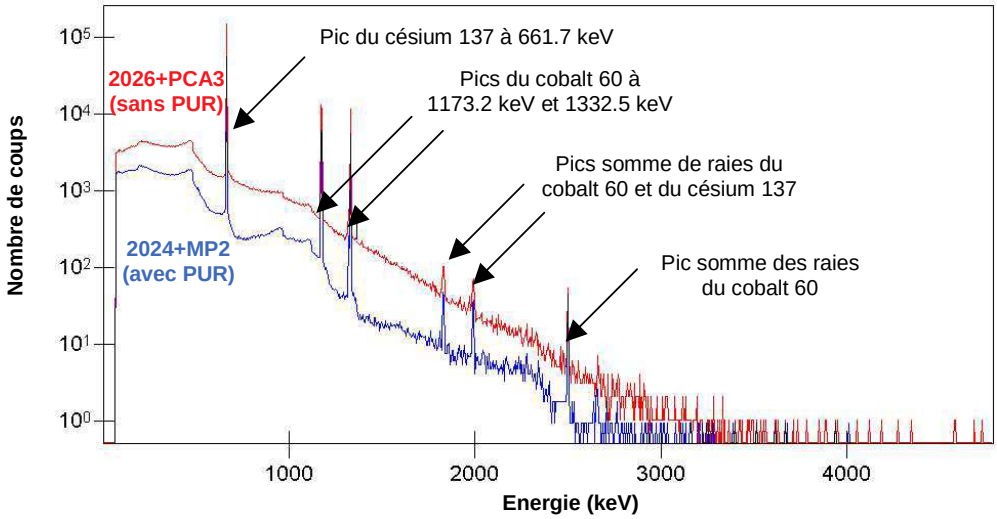

Fig. 27 : influence du circuit de rejet d' empilements sur la hauteur du fond continu

On observe que l' utilisation du circuit de rejet d' empilements permet une diminution très sensible du fond continu, notamment aux énergies supérieures aux deux raies du cobalt 60 (E > 1332 keV) où sa hauteur est réduite d' un facteur 10. Une meilleure définition des pics est également obtenue et facilite leur traitement par le logiciel. On note enfin que les pics sommes, obtenus par coïncidences vraies, présentent une excellente définition ce qui atteste de l' efficacité du système (leur résolution dépend de la capacité du circuit de PUR à détecter des empilements).

2.3.2 Seuil de discrimination rapide

Le réglage du seuil de discrimination rapide joue un rôle prépondérant pour la correction des empilements électroniques car il permet d' en ajuster la sensibilité. L' amplificateur 2026 et le DSP disposent d' un mode d' ajustement automatique à la différence de l' amplificateur 2024 dont le réglage est réalisé manuellement. Dans un premier temps, ce dernier est ajusté selon les recommandations formulées dans le manuel d' utilisation **[48]**.

Pour vérifier que le réglage du seuil de discrimination rapide conduit à une réponse quantitative satisfaisante, on a recours à la méthode des 2 sources à partir d' un étalon de référence de cobalt 60 et d' un étalon perturbateur de césium 137, pour un taux de comptage de $5\times10^4\ s^{-1}$ (**Tab. 2**) :

Chaîne de mesure	Temps mort	Pertes de comptage
2026+PCA3	35.2%	(-22.0 ± 1.4)%
2026+MP2	48.2%	(-16.9 ± 1.4)%
2024+MP2	43.5%	(+1.4 ± 1.4)%
DSP+PCA3	25.1%	(-1.1 ± 1.4)%

Tab. 2 : pertes de comptage par temps mort pour les différentes chaînes de mesure

Les résultats obtenus pour les chaînes 2024+MP2 et DSP+PCA3 attestent de l' efficacité du circuit de PUR et de l' ajustement du seuil de discrimination rapide puisque les pertes de comptage par temps mort sont nulles à l' incertitude de comptage près.

En revanche, pour les deux systèmes qui utilisent l'amplificateur 2026, un biais systématique est observé. Des études complémentaires, réalisées sur d'autres détecteurs et d'autres exemplaires du même amplificateur, ont permis d'identifier des problèmes de répétabilité de sa réponse quantitative. En effet, deux mesurages successifs d'une même raie γ conduisent parfois à des écarts 10 fois supérieurs à l'incertitude de comptage. Il ressort des essais réalisés que le circuit de rejet d'empilements, et en particulier le réglage automatique du seuil de discrimination rapide, n'est pas fiable sur cette électronique. Les deux chaînes qui utilisent l'amplificateur 2026 ont donc été écartées de l'étude comparative car elles ne satisfont par aux exigences de précision attendues.

2.3.3 Précision de la correction de temps mort

Pour les deux électroniques de mesure qui montrent une réponse quantitative satisfaisante, les performances ont été caractérisées par la méthode des 2 sources (cf. §2.3.2), pour une gamme de temps mort allant de 5 à 55% (**Fig. 28**) :

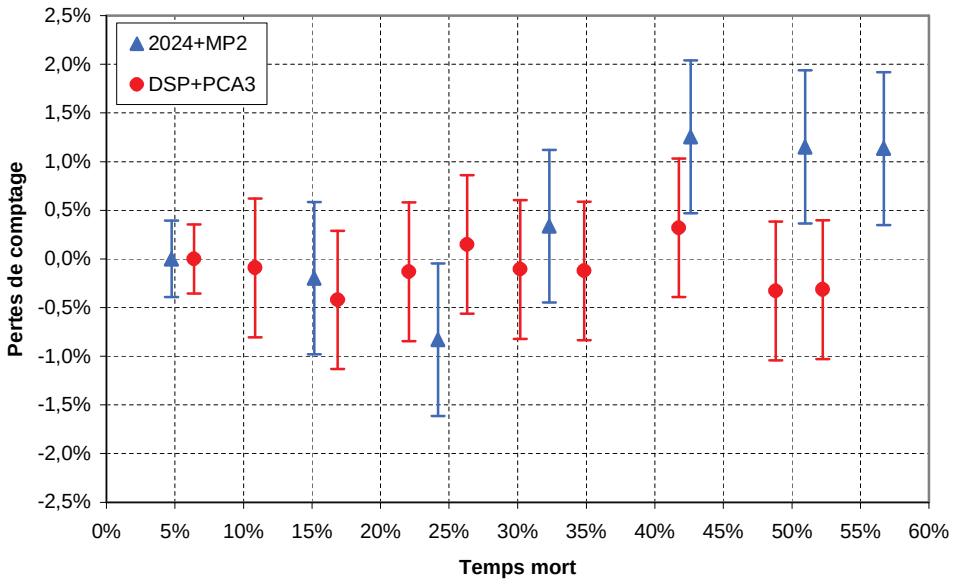

Fig. 28 : caractérisation des performances quantitatives de correction de temps mort

La figure ci-dessus illustre l'absence de biais systématique, pour les deux électroniques et pour un facteur $k = 2$, jusqu'à des temps mort de 55%. On remarque cependant que la reproductibilité de la mesure en fonction du temps mort est toujours inférieure à 0.5% pour la chaîne DSP+PCA3 alors qu'elle dépasse 1% pour la chaîne analogique 2024+MP2. Cette constatation tend à prouver une plus grande fiabilité du système numérique pour la prise en compte des empilements électroniques.

2.3.4 Capacité de traitement

La capacité de traitement d'une chaîne de mesure, qui représente son aptitude à traiter un grand nombre d'informations en un minimum de temps, peut être caractérisée par la relation entre le temps mort et le taux de comptage entrant. Pour évaluer les performances atteintes par les deux chaînes de mesure précédentes, on utilise une source de cobalt 60 qu'on rapproche progressivement du détecteur, afin de générer des taux de comptage allant de 10^3 s^{-1} à 10^5 s^{-1} (**Fig. 29**) :

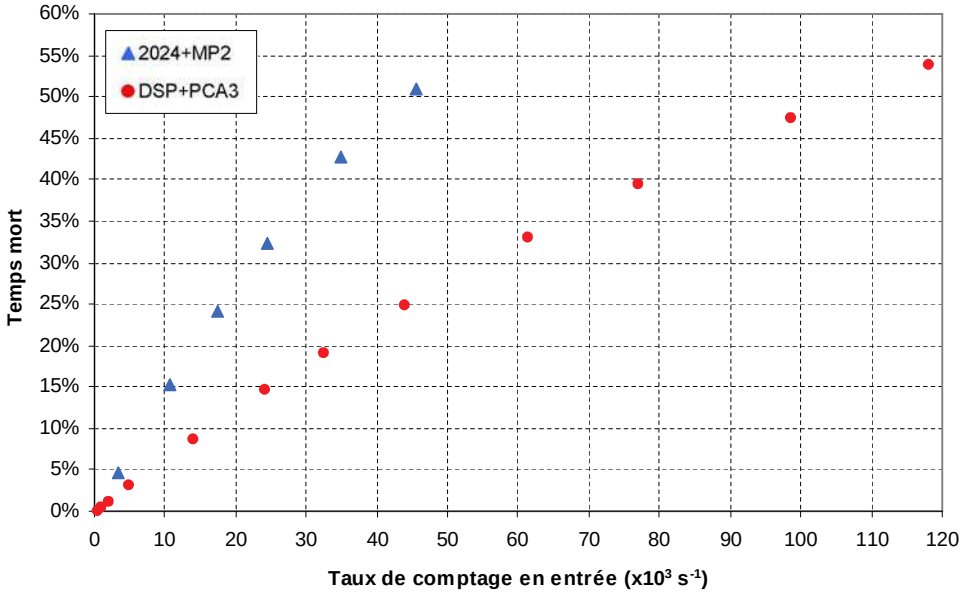

Fig. 29 : caractérisation des capacités de traitement

Comme le montre la figure ci-dessus, l'utilisation d'une constante de temps plus courte sur le DSP permet d'obtenir une capacité de traitement deux fois plus élevée qu'avec le 2024. Autrement dit, pour un temps mort donné, la chaîne DSP+PCA3 traite deux fois plus d'informations que la chaîne 2024+MP2. Ces performances ont des applications en terme de réduction des durées de mesure (pour une même incertitude de comptage) ou en terme de réduction des incertitudes de comptage (pour une même durée de mesure).

2.4 Conclusion de l'étude comparative

En se basant sur des critères de performances quantitatives et de souplesse d'utilisation, ainsi que sur le retour d'expérience de nombreux utilisateurs **[52][53]**, l'électronique numérique DSP apparaît donc comme le choix le plus adapté pour répondre aux besoins de minimisation des erreurs systématiques sur les mesures par spectrométrie γ réalisées au SPEx. De plus, la possibilité de sauvegarder les réglages de la chaîne de mesure constitue un atout essentiel en terme de fiabilité (i.e. reproductibilité des réglages) et de gain de temps lors de campagnes de mesure journalières où les paramètres des électroniques doivent être modifiés avant chaque expérience.

Suite à cette étude comparative **[46]**, le SPEx a donc fait l'acquisition de 5 DSP pour équiper tous les bancs de spectrométrie γ utilisés sur EOLE et MINERVE. En association avec ces électroniques, deux étages CANBERRA AIM 556, constitués chacun de deux analyseurs multicanaux, ont également été acquis. Chaque étage dispose d'une taille mémoire de 64 Ko qui peut être divisée en deux échelles d'analyse différentes. Il permet ainsi d'exploiter les 16384 canaux que le DSP est en mesure de délivrer.

A partir de l'étude de caractérisation du DSP qui vient d'être présentée, un travail d'optimisation de ses réglages a ensuite été mené **[54]** pour une expérience particulière. Il fait l'objet de la section §3 suivante.

3 OPTIMISATION DES REGLAGES DE LA CHAINE DSP 2060

Le banc de spectrométrie γ équipé du détecteur planaire a été spécifiquement conçu pour la mesure du taux de conversion de l' uranium 238 **[39]**. Il présente de nombreux avantages en terme de souplesse d' utilisation (tous les éléments mécaniques sont aisément démontables) et de performances (excellente résolution en énergie: 526 eV à 121.7 keV). Aussi, pour le développement de mesures participant à la qualification de données nucléaires de base, qui fera l' objet des parties IV et V, la majorité des expériences sera réalisée sur ce banc. Il est donc essentiel de bien maîtriser le fonctionnement de son électronique et de déterminer ses limites de fonctionnement.

Une méthodologie d' optimisation des réglages a donc été conçue **[54]** pour répondre à ce besoin et faciliter le paramétrage des quatre autres bancs de mesure, équipés des mêmes électroniques.

3.1 Optimisation qualitative

3.1.1 Réglages préliminaires du DSP

Avant d' entrer dans le détail des réglages du DSP, certains paramètres doivent être imposés avant toute utilisation. Tout d' abord, le préamplificateur qui équipe le détecteur a la particularité de délivrer des tensions négatives. Le DSP doit donc être configuré de la façon suivante :

INP POLARITY
NEGATIVE

Le préamplificateur étant de type « résistif », les signaux d' inhibition du DSP ne sont pas utilisés et le réglage du pôle zéro doit se faire manuellement :

POLE/ZERO
MANUAL

Un premier ajustement du pôle zéro est réalisé selon la technique habituelle **[55]**, en connectant un oscilloscope sur la sortie MONITOR OUT et en approchant une source du détecteur afin de déterminer le réglage qui permet d' obtenir un signal symétrique. L' ajustement visuel conduit à PZ = 1650, valeur qui sera ensuite plus finement ajustée.

3.1.2 Constantes de temps

L' étude comparative précédente a montré un excellent compromis entre la résolution et la capacité de traitement pour la chaîne DSP+PCA3. En minimisant le bruit électronique généré par les câbles et les différentes connexions électriques, la résolution est améliorée, autorisant l' utilisation de constantes de mise en forme plus courtes qu' avec une électronique analogique, pour une résolution équivalente.

En fixant un critère de temps mort maximum de 50% et sachant que pour des mesures effectuées quelques heures après irradiation en réacteur, le taux de comptage obtenu est de 10^5 s^{-1} au maximum, les constantes de mise en forme suivantes sont imposées :

RISE TIME	FLAT TOP
1.2 µs	0.8 µs

3.1.3 Gain

Pour les mesures de taux de fission réalisées à partir de la raie γ à 1596.2 keV émise par le lanthane 140 **[56]**, une limite d'acquisition en énergie du spectre d'au moins 1.6 MeV est nécessaire. Le gain est donc ajusté de telle façon que la gamme acquise couvre un domaine allant de 0 à 2 MeV. En réalisant plusieurs acquisitions de spectre et par approches successives, on détermine les réglages optimums suivants :

COARSE GAIN	FINE GAIN	SUPER FINE GAIN
5	0.5380	0.0000e-2

Enfin, compte tenu de la diminution du rendement du détecteur aux énergies de l'ordre de la dizaine de keV et de la difficulté d'une mesure quantitative précise dans ce domaine (raies X, phénomènes de diffusion cohérente, *K-edge* du germanium à 11.104 keV), une coupure basse en énergie à 15 keV est imposée. Pour cela, le paramètre LLD est ajusté à la valeur suivante :

LLD
0.751%

3.1.4 Nombre de canaux

L'optimisation du nombre de canaux du spectre est un point fréquemment négligé. Un critère généralement admis consiste à utiliser une échelle telle que la largeur totale à mi-hauteur (LTMH) du pic étudié corresponde à environ 4 canaux **[15]**. Compte tenu de la dépendance de la résolution avec l'énergie, le choix de l'échelle en canaux est directement fonction de la raie γ étudiée.

Dans le cas particulier de la mesure du taux de conversion de l'uranium 238, les pics à 277.6 et 293.3 keV, respectivement caractéristiques du neptunium 239 et du cérium 143, ont une LTMH d'environ 1 keV. Sur la base du critère énoncé ci-dessus et sachant que le domaine d'acquisition s'étale jusqu'à 2 MeV, le nombre de canaux retenu est alors le suivant :

CONVERSION GAIN	MCA GAIN
8192	8192

A noter que, dans le cas de la mesure de la raie γ à 1596.2 keV émise par le lanthane 140, la LTMH du pic est d'environ 2 keV ce qui conduit à une échelle plus adaptée de 4096 canaux.

3.1.5 Pôle zéro

L'ajustement du pôle zéro est beaucoup plus précis pour le DSP que pour un système analogique, grâce à l'affichage digital de la valeur et grâce au pas de réglage fin associé (de 0 à 3500 par pas de 1). Son optimisation est cruciale, tant d'un point de vue qualitatif (amélioration de la résolution en énergie) que quantitatif (calcul de surface nette par l'algorithme d'ajustement : cf. §4).

Lorsque le réglage du PZ est optimum, la forme des pics du spectre doit être proche d'une gaussienne. L'adéquation entre la forme des pics et ce modèle mathématique peut être contrôlée par une grandeur affichée par logiciel, appelée « coefficient gaussien », et qui converge vers l'unité lorsque le PZ est bien ajusté **[57]**. A l'aide d'une source de césium 137, on caractérise donc l'évolution de ce paramètre sur une large plage de réglage (**Fig. 30**) :

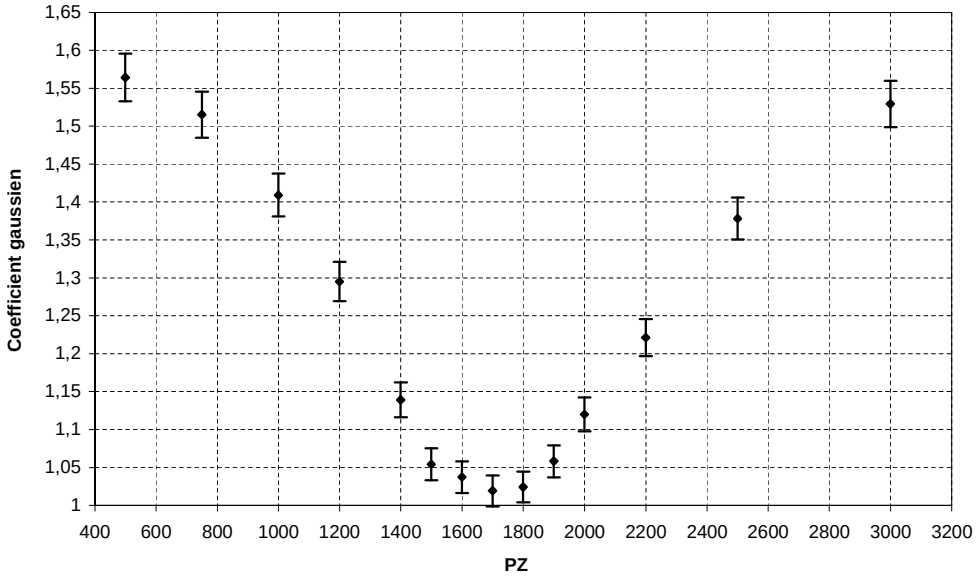

Fig. 30 : influence du réglage du pôle zéro sur le coefficient gaussien

La figure ci-dessus montre que la gamme de réglages optimums du PZ est cohérente avec l'ajustement visuel réalisé à l'oscilloscope. Une étude plus fine, par incrément unitaire, conduit au réglage optimum suivant :

PZ Setting
1690

3.1.6 Etalonnage de l'échelle en canaux et des paramètres de forme des pics

Les paramètres de forme du signal étant optimisés, un étalonnage complet de la chaîne de mesure est ensuite réalisé. Il est effectué à l'aide de diverses sources γ - manganèse 54, cobalt 57 et 60, yttrium 88, cadmium 109, baryum 133, césium 137, europium 152 et américium 241 - permettant de couvrir une gamme en énergie allant de 53 keV à 1836 keV.

La méthode consiste à mesurer individuellement chacune des sources, sur une durée suffisamment longue pour avoir au moins 10^6 coups (i.e. incertitude statistique inférieure à 0.1%) pour chaque pic étudié. Après avoir spécifié l'option *low tail* dans les paramètres d'étalonnage, permettant de prendre en compte la traîne caractéristique des détecteurs au Ge[HP], obtenue sur la partie gauche des pics, on utilise le module d'étalonnage du logiciel qui établit la correspondance entre le canal et l'énergie, tout en évaluant les paramètres de forme (LTMH et *tail*) des différents pics (**Fig. 31**).

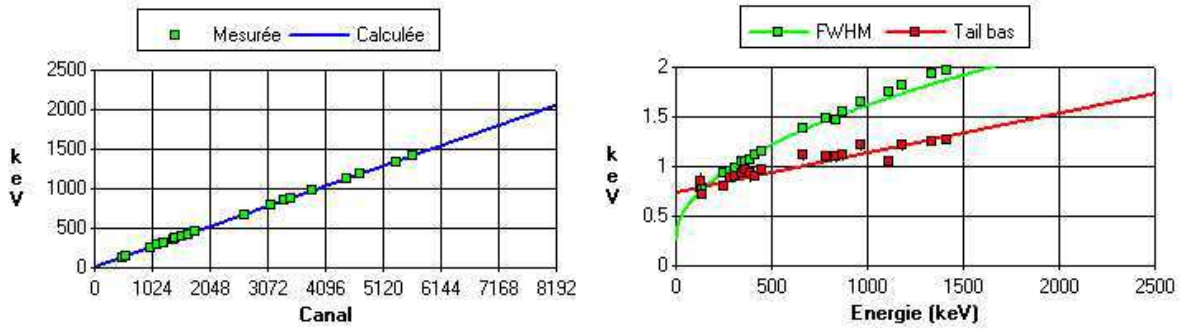

Fig. 31 : courbes d'étalonnage de l'énergie (*gauche*) et des paramètres de forme (*à droite*)

L'énergie E est une fonction quasi-linéaire du numéro de canal C. La relation déterminée par régression est la suivante :

$$E = -0.2240 + 0.2497 \times C \ \ (keV)$$

La LTMH (ou FWHM) d'un pic dépend du bruit électronique (indépendant de l'énergie), des défauts de collection de charge (proportionnels à l'énergie) et des fluctuations statistiques du nombre de porteurs de charge (proportionnelles à la racine carrée de l'énergie). Cette dernière contribution est négligée par GENIE 2000 qui utilise le modèle simplifié suivant :

$$LTMH = 0.2638 + 0.04253 \times \sqrt{E} \ \ (keV)$$

Enfin, le paramètre d'asymétrie *tail* est caractérisé par une évolution proportionnelle à l'énergie, dont l'expression est :

$$tail = 0.7292 + 0.000398 \times E \ \ (keV)$$

La chaîne de mesure est désormais convenablement réglée d'un point de vue qualitatif. Il reste à caractériser sa capacité de traitement et à finaliser les réglages de la correction de temps mort afin d'obtenir un fonctionnement quantitatif répondant aux besoins initialement exprimés.

3.2 Performances quantitatives

3.2.1 Capacité de traitement

Les paramètres de forme du signal étant figés, le comportement de la chaîne de mesure va maintenant être décrit sur une large gamme d'activité. Les fonctionnalités d'affichage du taux de comptage en entrée et en sortie du DSP sont alors mises à profit pour évaluer sa capacité de traitement, à l'aide d'une source placée à différentes distances du détecteur (**Fig. 32**). L'étude est réalisée à partir du baryum 133 et du cobalt 60 afin d'évaluer l'influence de l'énergie sur la réponse de l'électronique.

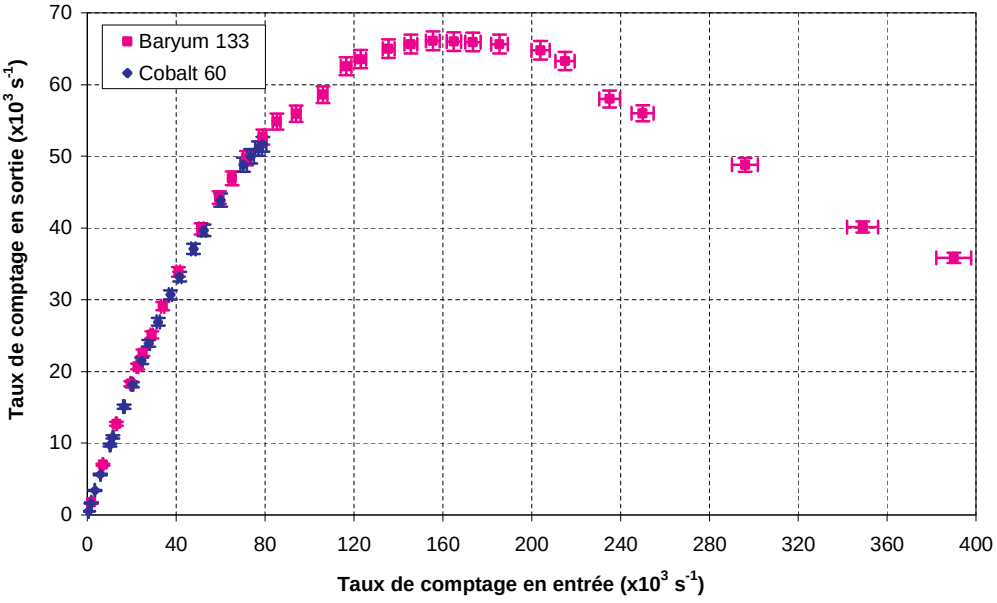

Fig. 32 : taux de comptage en sortie en fonction du taux de comptage en entrée

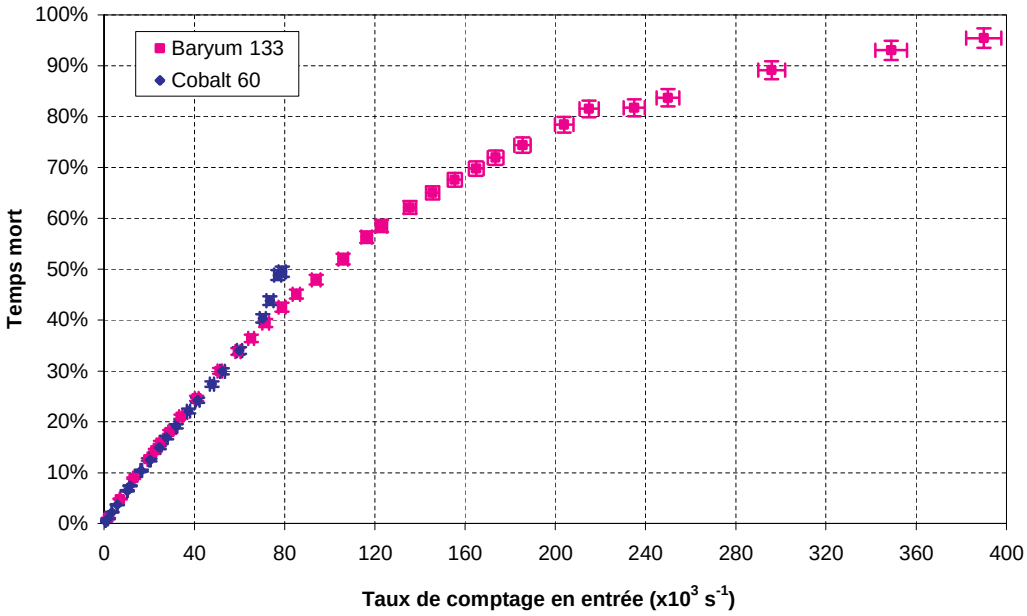

Fig. 33 : temps mort en fonction du taux de comptage en entrée

Tout d' abord, on remarque l' existence d' un maximum de taux de comptage sortant pour un taux de comptage entrant d' environ 1.5×10^5 s^{-1} (**Fig. 32**). En effet, la compétition entre l' augmentation de l' activité et la limitation induite par le phénomène de temps mort est favorable à la statistique de comptage jusqu' à cette valeur et défavorable au-delà. Compte tenu des taux de comptage obtenus pour les mesures sur crayon combustible (< 10^5 s^{-1}), le rapprochement de la source du détecteur se fait toujours au profit de l' incertitude de comptage, pour une durée de mesure équivalente.

On remarque ensuite que la courbe de capacité de traitement obtenue à partir du cobalt 60 ne couvre que la gamme allant de 10^3 à 8×10^4 s^{-1}. Pour des activités plus élevées, le DSP affiche un taux de comptage nul en entrée. Ce phénomène s' explique par la saturation du préamplificateur qui est d' autant plus probable que l' énergie moyenne déposée dans le détecteur (i.e. l' amplitude des signaux générés) est élevée. En notant N_i le nombre de coups dans le canal i et E_i l' énergie associée, l' énergie moyenne $\overline{E}$ du spectre γ peut être définie par :

$$\overline{E} = \frac{\sum_{i=1}^{8192} N_i E_i}{\sum_{i=1}^{8192} N_i}$$

Pour une source de baryum 133, l' énergie moyenne est d' environ 100 keV et dans le cas du cobalt 60, de l' ordre de 600 keV. Autrement dit, la probabilité de saturation du préamplificateur est dans un rapport 6 entre les deux sources, d' où les limites de fonctionnement observées.

Pour un spectre de produits de fission obtenu à partir d' un crayon combustible mesuré quelques jours après irradiation dans EOLE ou MINERVE, l' énergie moyenne du spectre γ est d' environ 300 keV. On peut donc estimer que la limite de fonctionnementest de 2×10^5 s^{-1}, soit bien au-delà des valeurs habituellement rencontrées. La saturation du préamplificateur ne constitue donc pas un phénomène limitatif pour les expériences habituellement réalisées.

3.2.2 Optimisation de la correction de temps mort

3.2.2.1 Ajustement des paramètres

Le DSP dispose de trois paramètres permettant d'optimiser la correction de temps mort, à savoir le PUR GUARD, le LT TRIM et le DISC THRESHOLD. Dans un premier temps, en se basant sur les recommandations de la littérature **[52]**, deux d'entre eux sont figés aux valeurs suivantes :

PUR GUARD	DISC THRESHOLD
×2.5	AUTO

La valeur maximale du PUR GUARD permet d'assurer un temps de scrutation suffisant pour prendre en compte l'arrivée d'une post-impulsion pendant qu'un signal est en cours de traitement. En outre, le mode automatique d'ajustement DISC THRESHOLD semble montrer un fonctionnement quantitatif satisfaisant d'après l'étude menée dans la section précédente.

On va donc chercher à optimiser le réglage du LT TRIM, paramètre qui permet d'ajuster finement le temps mort de l'électronique en cas de mauvaise évaluation de la durée de traitement des empilements électroniques. Pour déterminer la valeur conduisant au meilleur comportement quantitatif, on effectue des essais par la méthode des 2 sources pour différentes valeurs de ce paramètre. On utilise pour cela une source de référence de cobalt 60 qu'on perturbe par une source de baryum 133, pour un taux de comptage de l'ordre de 6×10^4 s^{-1}. On évalue alors les pertes de comptage obtenues dans les pics à 1173.2 keV et 1332.5 keV. Le choix du baryum 133 permet de réaliser la mesure dans des conditions optimales de reproductibilité où le seul paramètre changeant est la correction de temps mort, puisque les raies de référence ne sont perturbées ni par l'adjonction d'un fond Compton supplémentaire, ni par l'interférence avec des pics créés par empilements de signaux. Pour chaque valeur du LT TRIM, on réalise trois acquisitions dans des conditions de répétabilité et pendant une durée suffisante pour avoir une incertitude de comptage inférieure à 0.5%. Les pertes de comptage par temps mort en fonction du LT TRIM sont représentées ci-dessous (**Fig. 34**) :

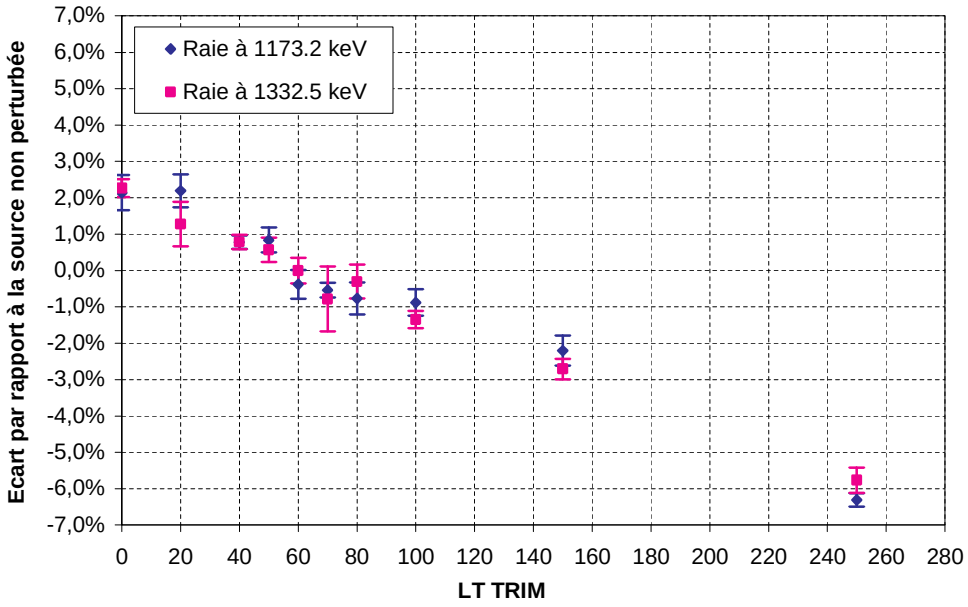

Fig. 34 : pertes de comptage par temps mort en fonction du LT TRIM

Comme on peut le constater, le réglage du LT TRIM à 250, tel que le recommande le manuel d' utilisation**[51]**, conduit à un sous-compensation du temps mort d' environ 6%. En remarquantun comportement linéaire du biais en fonction du LT TRIM, on détermine le réglage optimum suivant :

LT TRIM
65

3.2.2.2 Analyse quantitative

Après avoir optimisé les trois paramètres d' influence de lacorrection de temps mort, il reste à vérifier la justesse de cette correction sur une large gamme de taux de comptage (**Fig. 35**) :

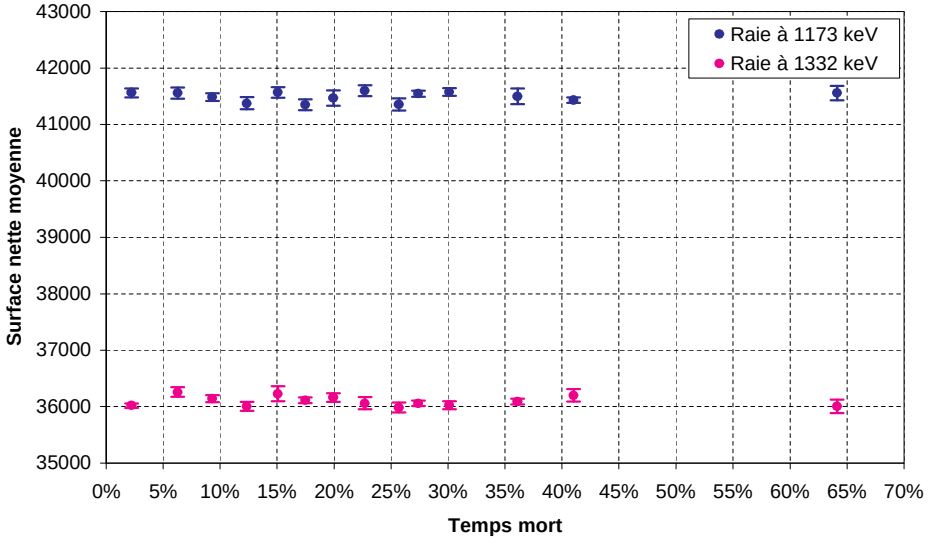

Fig. 35 : caractérisation de la justesse de la correction de temps mort

La méthode expérimentale mise en oeuvre montre l' absence d' erreursystématique jusqu' à des temps mort de 65%, soit un taux de comptage en entrée d' environ 1.5×10^5 s^{-1} (**Fig. 33**).

Toutefois, il est prudent d' associer une incertitude à cette corection afin de tenir compte des imperfections technologiques du système. Une méthode d' estimation a été proposée, basée sur la comparaison des variances de répétabilité et de reproductibilité. En notant $N_{i,j}$ la surface nette du pic obtenue pour la *i*-ème répétition de la mesure réalisée à un taux de comptage d' indice*j*, une analyse de variance est réalisée sur l' échantillon des $(N_{i,j})_{i=1..n,\ j=1..p}$ en estimant :

- *La variance de répétabilité,* obtenue à partir des *n* acquisitions de spectre réalisées dans des conditions expérimentales idéales (i.e. temps mort inférieur à 5%) et identiques (i.e. pour un taux de comptage fixe). Elle est définie par :

$$s^2_{répétabilté} = \frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(N_i - \overline{N})^2 \qquad \textbf{(10)}$$

- *La variance de reproductibilité,* obtenue en faisant varier *p* fois l' une des conditions de mesure, à savoir le taux de comptage induit par la source perturbatrice. Elle est définie par :

$$s^2_{reproductibilité} = \frac{1}{p-1}\sum_{j=1}^{p}(N_j - \overline{N})^2 \qquad \textbf{(11)}$$

L'incertitude sur la correction de temps mort C_θ est alors estimée à partir de la différence entre ces deux variances :

$$\frac{u(C_\theta)}{C_\theta} = \sqrt{\frac{s^2_{reproductibilité} - s^2_{répétabilité}}{\overline{N}}} \qquad \textbf{(12)}$$

Cette méthode d'analyse permet d'aboutir à une incertitude sur la correction de temps mort de l'ordre de 0.2%. Cette valeur est nettement meilleure que celle annoncée par la notice du DSP qui reporte une incertitude de 3% jusqu'à 50% de temps mort **[51]**. Néanmoins, il faut noter que compte tenu de la petite taille de l'échantillon statistique considéré (ν = 83), l'incertitude sur cette estimation d'écart-type (i.e. le moment d'ordre 2) est telle qu'une approche prudente conduit à retenir un majorant de 0.5% de l'incertitude sur la correction de temps mort.

3.2.2.3 Indépendance énergétique

Le DSP utilise un codage à poids dont l'une des caractéristiques est l'indépendance du temps de traitement en fonction de l'amplitude du signal à coder. Par ailleurs, on a montré au §3.2.1 que pour des taux de comptage inférieurs à 1.5×10^5 s^{-1}, la saturation du préamplificateur était négligeable. Ainsi, la réponse de la chaîne est censée être indépendante de l'énergie.

Afin de vérifier expérimentalement cette caractéristique, la méthodes des 2 sources est mise en œuvre à partir de différents étalons de référence et perturbateurs, pour un taux de comptage de l'ordre de 10^5 s^{-1} (50% de temps mort). Pour chaque cas étudié, on compare les réponses quantitatives pour un seuil de discrimination rapide ajusté de façon automatique et manuelle (**Tab. 3**) :

		Perte de comptage par rapport à la source seule	
Raie γ de référence	Sources perturbatrices	Réglage automatique du DISC THRESHOLD	Réglage manuel du DISC THRESHOLD
1332.5 keV (^{60}Co)	^{139}Ce + ^{137}Cs + ^{54}Mn	(-0.12 ± 0.49)%	(0.18 ± 0.51)%
964.1 keV (^{152}Eu)	^{241}Am + ^{109}Cd + ^{57}Co	(-1.98 ± 1.01)%	(-0.74 ± 1.01)%
1112.1 keV (^{152}Eu)	^{241}Am + ^{109}Cd + ^{57}Co	(-1.87 ± 1.03)%	(-0.50 ± 1.04)%
1408.0 keV (^{152}Eu)	^{241}Am + ^{109}Cd + ^{57}Co	(-2.31 ± 0.91)%	(-0.07 ± 0.90)%

Tab. 3 : estimateur de type A de l'incertitude sur la correction de temps mort

Dans le cas où l'on utilise un ensemble de sources perturbatrices – cérium 139 (165.4 keV), césium 137 (661.7 keV), manganèse 54 (834.8 keV) – dont l'énergie moyenne est proche de celle d'un spectre γ de produits de fission, le réglage automatique du DISC THRESHOLD conduit à un fonctionnement quantitatif satisfaisant. En revanche, le système montre ses limites lorsqu'il s'agit de détecter des empilements générés par des sources de faible énergie – américium 241 (59.5 keV), cadmium 109 (88.0 keV) et cobalt 57 (122.1 et 136.5 keV) –. L'utilisation du mode manuel conduit alors à des résultats nettement plus satisfaisants puisque les écarts observés sont compatibles à k = 1 avec l'incertitude de comptage. Suite à cette modification du seuil de discrimination rapide, une étude a été reprise pour s'assurer que la valeur optimale du LT TRIM reste inchangée.

A noter que le réglage manuel du seuil de discrimination est à utiliser avec prudence car il correspond à un jeu de paramètres de forme donné. Toute modification du gain et/ou des constantes de temps conduirait à reprendre la même étude que ci-dessus, pour vérifier l'ajustement du seuil.

4 METHODOLOGIE D'ANALYSE DES SPECTRES γ

Après avoir optimisé et figé les réglages de l'électronique, il reste à caractériser le logiciel d'analyse GENIE 2000 qui permet d'extraire les informations utiles, à savoir les surfaces nettes des pics, et ainsi faire le lien entre les évènements enregistrés par l'analyseur multicanaux et l'activité recherchée. L'étude qui fait l'objet de cette section comporte deux volets essentiels :

- *La sensibilité aux paramètres d'analyse* et en particulier, l'émission de recommandation sur les méthodes de calcul de surface nette selon le type de pic rencontré,
- *La fiabilité du résultat de mesure*, en terme de justesse de la valeur et de représentativité de l'incertitude associée.

L'optimisation de la phase d'analyse des pics est primordiale compte tenu de la complexité des spectres de produits de fission rencontrés (cas de pics noyés dans un fond continu élevé, déconvolution[22] de pics superposés). Les études de sensibilité qui vont suivre ont pour objectif de mieux maîtriser les différentes options du logiciel, afin de limiter « l'effet utilisateur ».

4.1 Méthodes de traitement des spectres

Le logiciel GENIE 2000 permet l'exploitation des spectres depuis l'identification des radionucléides jusqu'au calcul des activités γ caractéristiques. Le calcul des surfaces nettes des pics du spectre peut se faire par deux méthodes **[58]** :

- *l'algorithme de sommation* consiste à calculer le nombre de coups dans la région d'intérêt (RI) qui contient le pic, puis de lui soustraire l'intégrale du continuum sur la même région, évaluée à partir de sa valeur moyenne autour de la RI.

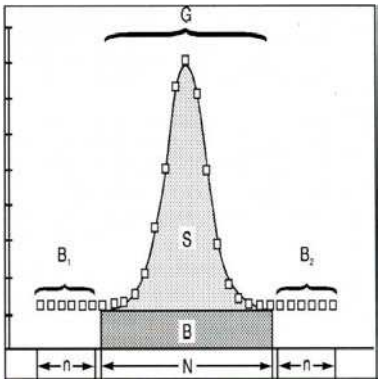

Fig. 36 : principe de la méthode de sommation pour le calcul de surface nette d'un pic

En notant G l'intégrale brute de la RI (N canaux), B_1 et B_2 les intégrales du fond continu évaluées à gauche et à droite de la RI (n canaux), et en utilisant un modèle de soustraction linéaire du fond continu, la surface nette S est estimée par :

$$S = G - \left(\frac{N}{2n}\right)(B_1 + B_2) \qquad \textbf{(13)}$$

[22] On utilise par abus l'appellation de « déconvolution » pour désigner le processus de séparation des pics superposés, différente de la notion rencontrée en traitement du signal.

- *l' algorithme d' ajustement* consiste à déterminer une fonction qui approche la forme du pic et à évaluer analytiquement son intégrale. Pour des détecteurs au Ge[HP], le modèle usuel est une gaussienne à laquelle on ajoute un paramètre d' asymétrie, appelé « *tail* », soit :

$$F(x_i) = \begin{cases} H \exp\left(-\frac{(x_i - c_p)^2}{2\sigma^2}\right) & pour \quad x_i \geq c_p - \tau \\ H \exp\left(\frac{\tau(2x_i - 2c_p + \tau)}{2\sigma^2}\right) & pour \quad x_i \leq c_p - \tau \end{cases}$$

avec : $F(x_i)$ la valeur de la fonction d' ajustement au canal x_i,

H la hauteur du pic,

c_p le centroïde du pic,

σ la largeur de la gaussienne ($\sigma = 0.425 \times$ LTMH),

τ le paramètre *tail* (point de jonction entre la partie exponentielle et gaussienne).

La figure suivante illustre la dissymétrie obtenue sur le pic pour un détecteur de type coaxial où *tail* $\cong 0.3 \times$ LTMH (A) et pour un détecteur de type planaire où *tail* $\cong 0.7 \times$ LTMH (B) :

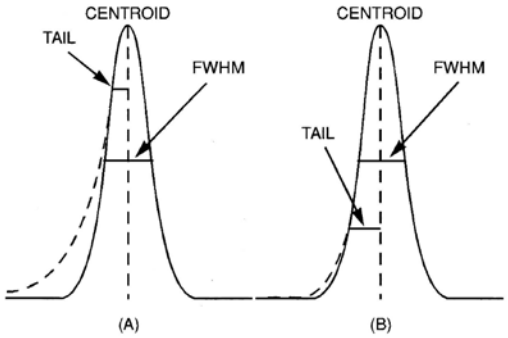

Fig. 37 : dissymétrie des pics obtenue pour un détecteur au Ge[HP]

Le logiciel dispose de différentes options qui permettent d' intervenir sur le traitement des pics, en particulier :

- *la largeur de la RI*, comptée en unités de LTMH,
- *la largeur d' évaluation du fond continu*, comptée en canaux ou en unités de LTMH,
- *le modèle de soustraction du fond continu* : linéaire ou escalier.
- *le méthode de détermination des paramètres de forme* (LTMH et *tail*) : fixe (étalonnage en fonction de l' énergie partir de pics bien définis) ou variable (ajustement par moindres carrés).

L' incertitude associée à la surface nette dépend de l' algorithme retenu et du modèle de soustraction du fond continu :

- pour la méthode de sommation, elle découle directement de la distribution de Poisson qui caractérise le processus de désintégration radioactive, et donc d' émission γ. Dans le cas d' un modèle de soustraction linéaire, elle est estimée par la relation suivante :

$$u(S) = \sqrt{G + \left(\frac{N}{2n}\right)^2 (B_1 + B_2)} \qquad \textbf{(14)}$$

- pour la méthode d'ajustement en revanche, l'incertitude annoncée est une incertitude « procédé » qui tient compte de deux composantes, une liée à la probabilité d'émission γ de la source et une provenant de l'inversion de la matrice variance/ covariance d'ajustement des paramètres de forme (H, c_p, σ, τ). L'expression exacte fait appel à des intégrations numériques et nécessite de connaître des variables auxquelles l'utilisateur ne peut avoir accès **[58]**.

Enfin, à noter que la version du logiciel dont dispose le SPEx comporte un module optionnel « Interactive Peak Fit », qui permet la visualisation des pics à analyser et la représentation des résidus lors de l'ajustement des pics du spectre par le modèle mathématique.

4.2 Etude de sensibilité aux paramètres d'analyse

L'étude suivante est basée sur quelques spectres représentatifs de la plupart des cas rencontrés. Pour chacun d'eux, une étude de sensibilité a été réalisée en testant l'influence de différentes options sur le calcul de surface nette, notamment la largeur de RI et la méthode d'évaluation du fond continu.

4.2.1 Influence de la largeur de RI

Après avoir identifié la présence et la position des pics dans le spectre, le logiciel doit définir des RI encadrant chacun d'eux. Par défaut, cette opération estréalisée automatiquement en imposant une largeur de 6× LTMH. Cette valeur est adaptée pour des pics bien définis présentant un fort ratio pic sur fond (> 10) mais pour certains cas spécifiques, il peut être judicieux de la modifier.

En particulier dans le cas de la méthode de sommation, la relation **(14)** montre que l'incertitude sur la surface nette augmente avec la largeurde RI, d'un facteur d'autant plus important que le fond continu est élevé. Il est donc judicieux de rechercher la valeur limite qui minimise l'incertitude tout en englobant la totalité du pic. Analytiquement, on peut montrer que l'intégrale d'une gaussienne atteint 99.9% de sa valeur totale pour une largeur de 3.5× LTMH. En tenant compte également du paramètre d'asymétrie *tail* et de sa dépendance en énergie (**Fig. 31**), on en conclut qu'une largeur de 4× LTMH est suffisante pour contenir les pics avec une erreur inférieure à 0.1%.

Le choix de la largeur de RI est particulièrement important pour la mesure de pics de faible énergie (E < 200 keV), où l'on observe une forte discontinuité du fondcontinu entre la partie gauche et droite des pics ainsi qu'une forme plus complexe (**Fig. 38**) du fait de phénomènes spécifiques à cette gamme d'énergie : diffusions multi-compton, perturbations par des électrons Auger, inhomogénéités du champ électrique, pics d'échappement du germanium.

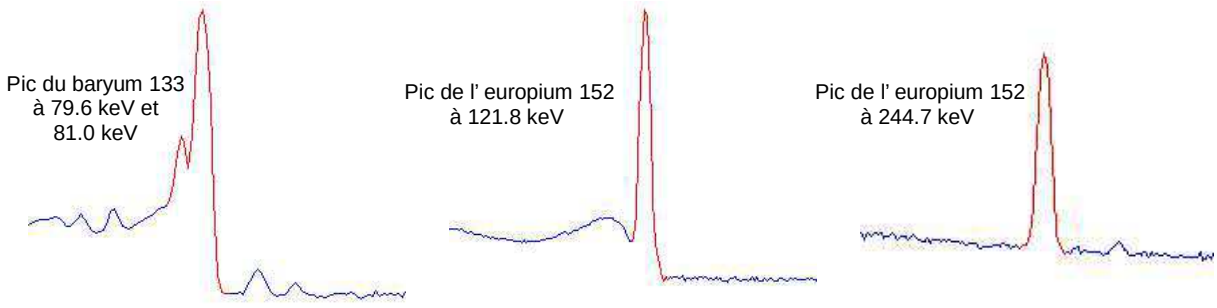

Fig. 38 : allure des pics observée sur un détecteur au Ge[HP] en fonction de l'énergie

L' analyse quantitative est alors rendue beaucoup plus délicate, comme le montre le tableau suivant qui synthétise les surfaces nettes des pics ci-dessus en fonction de la largeur de RI choisie :

Largeur de RI (en LTMH)	Surface nette relative à une RI de 4× LTMH		
	multiplet à 80.8 keV	singulet à 121.8 keV	singulet à 244.7 keV
4×	1.	1.	1.
5×	1.0071 ± 0.0010	0.9920 ± 0.0010	0.9981 ± 0.0044
6×	1.0131 ± 0.0012	0.9901 ± 0.0012	1.0018 ± 0.0046
7×	1.0213 ± 0.0014	0.9850 ± 0.0014	0.9993 ± 0.0049

Tab. 4 : influence de la largeur de RI sur le calcul de surface nette

Si pour le pic à 244.7 keV, les valeurs obtenues pour différentes RI sont compatibles à $k = 1$ avec l' incertitude annoncée, ce n' est pas le cas pour les pics de plus basse énergie. Cette sensibilité n' est cependant pas très pénalisante car la spectrométrie γ n' est pas une méthode « primaire » et toute mesure d' activité se rapporte nécessairement à celle d' une source de référence. Aussi est-il crucial de traiter tous les spectres étudiés avec la même largeur de RI afin de ne pas introduire un biais qui peut atteindre 2% pour des pics superposés à des fonds continus complexes.

4.2.2 Influence du modèle de soustraction du fond continu

Le fond continu observé dans les spectres γ de produits de fission est la superposition des fonds Compton générés par des dizaines de raies γ différentes. Ce phénomène a tendance à lisser la forme du fond continu (**Fig. 39**). Par conséquent, pour la plupart des raies étudiées d' énergie supérieure à 200 keV, il peut localement être assimilé à une droite.

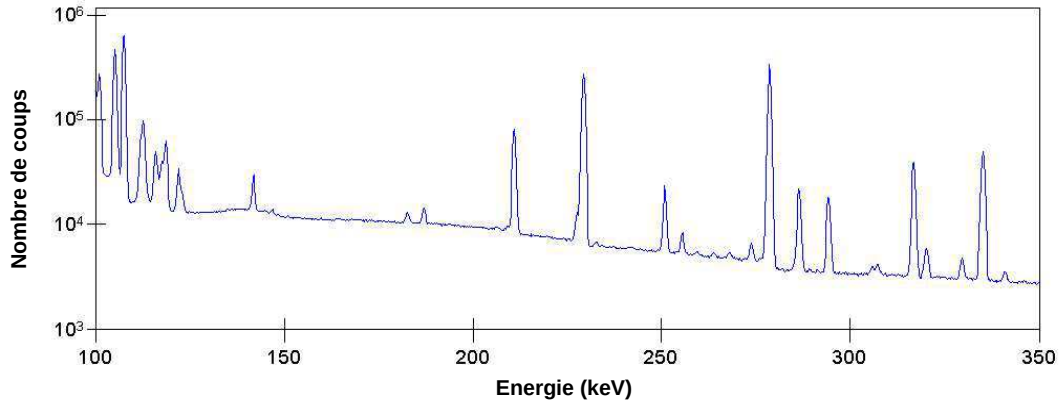

Fig. 39 : allure du fond continu d' un spectre de produits de fission

Le calcul de surface nette et de l' incertitude associée est alors pratiquement indépendants du modèle choisi, comme le montrent les résultats suivants :

Modèle de soustraction	Surface nette relative au modèle de soustraction linéaire		
	multiplet à 80.8 keV	pic à 121.8 keV	pic à 244.7 keV
Linéaire	1	1	1
Escalier	1.0005 ± 0.0080	1.0001 ± 0.0051	1.0010 ± 0.0079

Tab. 5 : influence du modèle de soustraction du fond continu sur le calcul de surface nette

4.2.3 Influence de la largeur d' évaluation du fond continu

Le choix de la largeur d' évaluation du fond continu est à sélectionner avec précaution. Idéalement, l' augmentation du nombre de canaux permet une meilleure évaluation de son niveau de part et d' autre du pic mais elle peut se faire au détriment de la validité du modèle de soustraction (l' approximation linéaire n' est valable que sur une largeur de quelques keV) ou induire un biais systématique dans le cas de la présence de pics voisins. Dans la plupart des cas, une évaluation du fond continu sur une largeur de 1× LTMH constitue un bon compromis.

Le module « Interactive Peak Fit » de GENIE 2000 fournit des critères statistiques aidant au choix de la largeur d' évaluation du fond continu, à partir de la figure des résidus. Sur l' exemple ci-dessous (**Fig. 40**), la largeur optimale est de 3 canaux (figure de gauche) car son élargissement conduit à l' inclusion d' une partie du pic voisin et à la divergence des résidus (figure de droite).

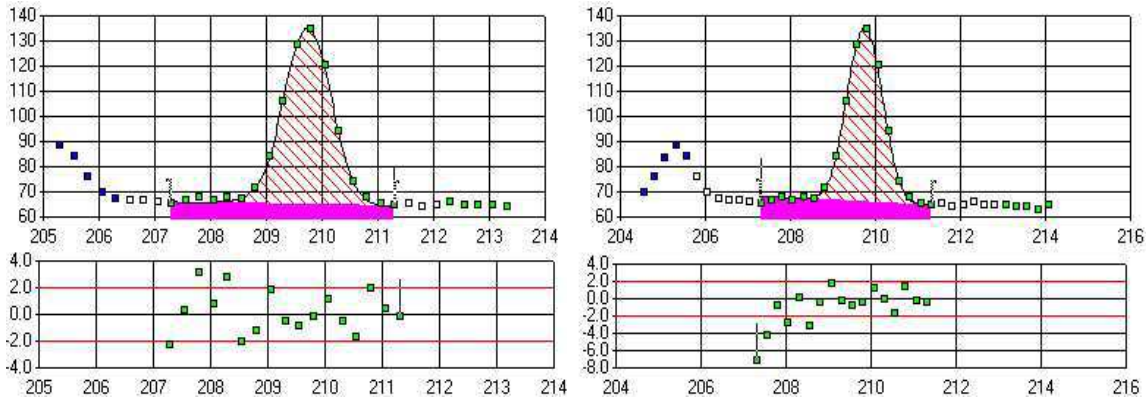

Fig. 40 : influence de la largeur d' évaluation du fond continu sur le calcul de surface nette

4.3 Comparaison des méthodes de calcul de surface nette

Une fois les paramètres d' analyse des pics figés, l' utilisateur a le choix entre deux méthodes de calcul de surface nette. Cette section s' attache à comparer les résultats obtenus à partir de chacune d' elles.

4.3.1 Cas d' un singulet « idéal »

Pour vérifier la pertinence du modèle utilisé par GENIE 2000 pour représenter la forme des canaux, il est nécessaire au préalable de s' assurer que la chaîne de mesure est correctement réglée, en particulier le pôle zéro qui joue un rôle prépondérant sur la forme des pics d' un spectre γ. Ensuite, on pose l' hypothèse que pour des singulets dont le rapport de la hauteur nette du fond H_f sur la hauteur net du pic H_p est très petit ($H_f / H_p < 10^{-3}$), le calcul de surface nette par la méthode de sommation est quasiment exact (i.e. indépendant des paramètres d' analyse utilisés). La comparaison à la méthode d' ajustement renseigne donc directement sur la pertinence du modèle utilisé pour représenter l' allure du pic.

En pratique, on utilise des sources monoénergétiques dont on réalise le comptage pendant une durée suffisante pour obtenir au moins 10^6 coups dans le pic principal (soit une incertitude statistique de comptage inférieure à 0.1%). Les écarts entre la méthode de sommation et d' ajustement avec paramètres de forme variables (PFV) ou fixes (PFF), obtenus pour le pic à 661.7 keV du césium 137, sont donnés ci-dessous :

Surface nette relative à la méthode de sommation			
Sommation	Ajustement gaussien pur (PFV)	Ajustement gaussien + *tail* (PFV)	Ajustement gaussien + *tail* (PFF)
1	0.9959 ± 0.0009	0.9993 ± 0.0011	0.9989 ± 0.0009

Tab. 6 : comparaison des méthodes d' ajustement et de sommation

Les écarts observés entre les méthodes d' ajustement et de sommation sont de l' ordre de 0.4% pour le modèle gaussien pur et de l' ordre 0.1% pour le modèle gaussien avec paramètre d' asymétrie. Cet exemple traduit la nécessité de prendre en compte la traîne provoquée par les défauts de collection de charges sur la partie gauche des pics et montre la pertinence du modèle utilisé par GENIE 2000 pour la représenter. Enfin, l' excellent accord obtenu entre les deux méthodes de calcul de surface nette permet de conclure que l' erreur systématique de modélisation est majorée par 0.1%.

4.3.2 Sensibilité à la valeur de la surface nette

On s' intéresse ensuite à l' influence de la valeur de la surface nette sur chaque méthode de calcul. Pour cela, on réalise des acquisitions de spectre d' une même source de césium 137, pendant des durées croissantes de 15 à 5000 secondes (soit des surfaces nettes allant de 1.7×10^4 à 6×10^6 coups), puis on évalue l' écart obtenu entre les deux méthodes :

Durée de mesure (s)	Surface nette relative à la méthode de sommation			
	Sommation	Ajustement gaussien pur (PFV)	Ajustement gaussien + *tail* (PFV)	Ajustement gaussien + *tail* (PFF)
15	1	0.9950 ± 0.0125	0.9991 ± 0.0125	0.9991 ± 0.0105
55	1	0.9959 ± 0.0069	1.0014 ± 0.0069	0.9989 ± 0.0055
300	1	0.9971 ± 0.0027	0.9991 ± 0.0027	0.9989 ± 0.0024
500	1	0.9963 ± 0.0020	0.9999 ± 0.0020	0.9989 ± 0.0018
2000	1	0.9961 ± 0.0010	1.0010 ± 0.0010	1.0008 ± 0.0009
5000	1	0.9962 ± 0.0007	1.0007 ± 0.0007	0.9997 ± 0.0009

Tab. 7 : influence de la valeur de surface nette sur l' ajustement du modèle

Des tendances semblables à celles obtenues dans la section précédente sont observées. En effet, un biais d' environ 0.4 % est obtenu pour le modèle gaussien pur et un accord meilleur que 0.1% pour le modèle avec paramètre d' asymétrie. Cette étude de sensibilité tend à confirmer la pertinence du modèle d' ajustement car l' augmentation de la surface nette, qui va dans le sens d' une réduction de l' incertitude sur la surface nette, permet d' affiner l' identification d' une erreur systématique de modélisation. Ce tableau permet donc de confirmer le majorant de 0.1% estimé précédemment.

4.3.3 Sensibilité à l'énergie de la raie γ

On reprend enfin la même méthode que dans les sections précédentes, mais avec des raies γ à différentes énergies (sources de cadmium 109, d'europium 152, de césium137, de manganèse 54, de cobalt 60 et de potassium 40). Les écarts à la méthode de sommation sont alors les suivants :

Energie (keV)	Surface nette relative à la méthode de sommation			
	Sommation	Ajustement gaussien pur (PFV)	Ajustement gaussien + *tail* (PFV)	Ajustement gaussien + *tail* (PFF)
88.0	1	0.9921 ± 0.0009	1.0000 ± 0.0011	0.9998 ± 0.0009
344.5	1	0.9950 ± 0.0009	1.0002 ± 0.0011	1.0015 ± 0.0009
661.7	1	0.9971 ± 0.0009	0.9994 ± 0.0011	0.9992 ± 0.0009
854.5	1	0.9969 ± 0.0009	1.0009 ± 0.0011	0.9979 ± 0.0009
1173.2	1	0.9981 ± 0.0009	1.0001 ± 0.0011	0.9953 ± 0.0009
1460.8	1	0.9998 ± 0.0009	1.0009 ± 0.0011	0.9899 ± 0.0009

Tab. 8 : influence de l'énergie des pics sur l'ajustement du modèle

On constate que le biais obtenu pour l'ajustement par un modèle gaussien pur diminue avec l'énergie car l'asymétrie du pic est moins prononcée (**Fig. 37**) lorsque les paramètres de *tail* et de LTMH sont proches (**Fig. 31**). Ce tableau montre également qu'un écart inférieur à 0.1% est obtenu pour la méthode ajustement avec PFV quel que soit le pic considéré, confirmant les tendances observées précédemment.

En revanche, on observe un biais atteignant 1% à haute énergie (E > 1 MeV) lorsque l'on impose les deux paramètres de forme du pic. En effet, l'étalonnage en LTMH montre que pour des énergies supérieures à 1 MeV, la loi d'interpolation de type $a + b \times E^{1/2}$ n'ajuste plus correctement les points expérimentaux (**Fig. 31**). La sous-estimation de la résolution induit alors un biais systématique négatif sur le calcul de surface nette.

On en conclut que l'étalonnage en paramètres de forme, pour le banc de mesure utilisant le détecteur planaire, n'est adapté que pour des pics d'énergie inférieure à 1 MeV et ne devrait être utilisé que dans des cas sensibles de pics noyés dans un fond continu élevé pour lesquels la réduction du nombre de degrés de liberté facilite la convergence de l'algorithme d'ajustement.

4.4 Limitations du logiciel d'analyse

Les différentes options ayant été caractérisées et le modèle d'ajustement des pics qualifié sur des cas usuels, cette section va maintenant montrer les limitations du logiciel GENIE 2000 pour certaines applications du SPEx. Elles concernent :

- la soustraction du fond continu pour des rapports fond / pic élevés (jusqu'à $H_f / H_p = 10$),
- la déconvolution des pics d'un multiplet,
- le post-traitement des spectres qui, à partir de la surface nette d'un pic, permet de déduire l'activité d'un radionucléide.

4.4.1 Soustraction de fond continu

4.4.1.1 Description de la méthode expérimentale

La technique mise en œuvre consiste à créer des pics de référence d'au moins 10^6 coups et de rapport fond sur pic H_f / H_p très faible ($< 10^{-3}$) de telle façon qu'on maîtrise parfaitement l'évaluation de la surface nette. On utilise pour cela une source de césium 137 (raie γ à 661.7 keV) et de zinc 65 (raie γ à 1115.5 keV), dont on réalise le comptage et qu'on enregistre dans deux fichiers séparés.

La second étape consiste à créer des fonds continus de hauteur croissante à partir d'une source de cobalt 60, puis à y superposer les spectres de pics de référence, en utilisant une fonctionnalité dédiée du logiciel. Pour chaque superposition qui correspond à un rapport H_f / H_p, on vérifie que la surface nette calculée par le logiciel est compatible avec la surface nette obtenue à partir de la source de référence seule. Pour vérifier la représentativité de l'incertitude calculée, on associe à chaque valeur de surface nette N_i une incertitude $u(N_i)$, estimée en retranchant quadratiquement de l'incertitude sur la mesure du pic superposé au fond continu $u_{pic\ sur\ fond}$, l'incertitude sur la mesure du pic seul $u_{pic\ seul}$:

$$u(N_i) = \sqrt{u^2_{pic\ sur\ fond} - u^2_{pic\ seul}}$$

Cette incertitude représente la composante liée à la soustraction du fond continu. Dans les exemples qui vont suivre, les pics de référence sont superposés à 2 types de fond continu (**Fig. 41**) :

- *fond continu linéaire* : le pic du césium 137 à 661.7 keV est situé dans une zone où le fond continu créé par la source de cobalt 60 peut être localement assimilé à une droite.
- *fond continu de type front Compton* : le pic du zinc 65 à 1115.5 keV est situé sur le front Compton de la raie à 1332.5 keV du cobalt 60 (photons rétrodiffusés d'un angle de 180°).

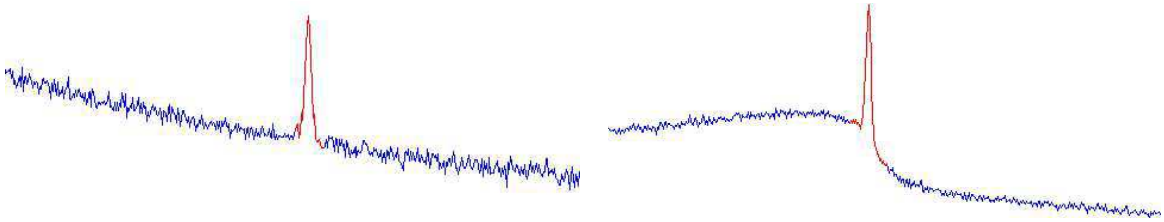

Fig. 41 : pics de référence sur un fond linéaire (*à gauche*) et sur un front Compton (*à droite*)

4.4.1.2 Soustraction d'un fond continu linéaire

Le premier cas étudié correspond à la superposition d'un pic sur un fond continu linéaire, représentatif de la plupart des pics rencontrés dans les spectres de produits de fission. La comparaison des méthodes de calcul de surface nette est réalisée sur la base des paramètres d'analyse suivants :

- RI de largeur totale 4× LTMH,
- Modèle de soustraction de fond continu de type linéaire,
- Largeur d'évaluation du fond continu de 1× LTMH.

La figure suivante illustre les écarts observés entre la surface nette évaluée après superposition du pic de référence sur le fond continu du cobalt 60, et la surface nette évaluée à partir du pic seul :

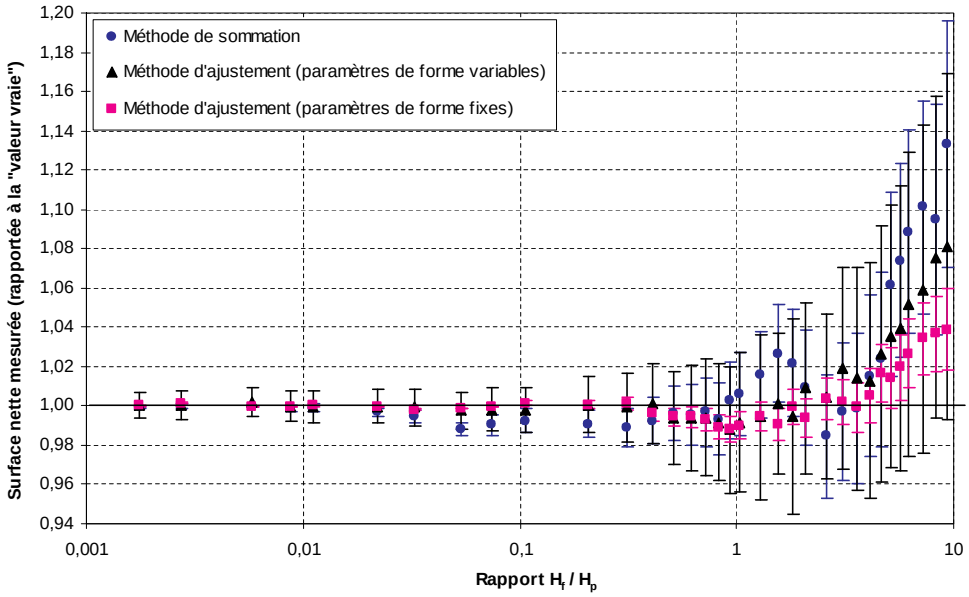

Fig. 42 : calcul de la surface nette d' un pic superposé à un fond linéaire de hauteur croissante

Les trois méthodes de calcul de surface nette sont cohérentes à $k = 2$ quel que soit le rapport fond sur pic. Toutefois, on peut distinguer deux comportements distincts :

- Pour un rapport $H_f / H_p < 4$, les deux méthodes d' ajustement conduisent à un meilleur accord entre la valeur vraie et calculée (< 0.5%) que pour la méthode de sommation (< 1 %).
- Pour un rapport $H_f / H_p > 4$, une sur-estimation de la surface nette est observée dans les trois cas. Néanmoins, l' utilisation de la méthode d' ajustement avec PFF permet de réduire l' erreur commise car la réduction du nombre de degrés de liberté de l' algorithme facilite sa convergence. Le bénéfice, en terme d' écart à la valeur vraie, atteint alors un facteur 3.

En terme de représentativité de l' incertitude associée à la soustraction du fond, la méthode de sommation montre une bonne cohérence entre les écarts à la valeur vraie et les incertitudes associées, jusqu' à un rapport $H_f / H_p < 4$. En effet, sur les 28 mesures correspondant à ce domaine, seul un point n' est pas compatible à $k = 2$ avec la valeur vraie, ce qui est tout à fait cohérent avec la loi de Poisson. Une remarque similaire peut être formulée pour la méthode d' ajustement avec PFF.

En revanche, la figure ci-dessus illustre une sur-estimation significative de l' incertitude estimée par la méthode d' ajustement avec PFV, quel que soit le rapport fond / pic. En particulier, pour les cas usuels où $H_f / H_p < 1$ et où les écarts à la valeur vraie restent inférieurs à 0.5%, l' incertitude liée à la soustraction du fond continu atteint jusqu' à 4%, soit 10 fois plus qu' avec la méthode de sommation. Des problèmes de répétabilité sur le calcul de l' incertitude ont également été observés puisque deux comptages successifs conduisent à des écarts allant jusqu' à un facteur 3.

La méthode d' ajustement avec PFF apparaît donc comme la meilleure solution pour traiter des cas de pics noyés dans un fond continu élevé. En pratique, il n' est pas toujours évident de pouvoir étalonner correctement les paramètres de forme des pics obtenus sur les spectres de produits de fission car ceux-ci évoluent au cours du temps avec la décroissance du taux de comptage. L' utilisation de la méthode d' ajustement avec PFV pour le calcul de surface nette constitue le meilleur compromis dans la plupart des cas rencontrés. En revanche, compte tenu de la sur-estimation de l' incertitude calculée par cette méthode, on pourra retenir la valeur estimée par la méthode de sommation qui, d' après cette étude, semble nettement plus réaliste.

4.4.1.3 Soustraction d' un front Compton

Le second cas étudié correspond au cas le plus défavorable susceptible d' être rencontré. Le pic est superposé sur le front Compton généré par une raie γ de plus haute énergie. Localement, le fond continu présente une forme arrondie qui ne correspond ni à un modèle linéaire, ni à un modèle en escalier. Une étude qualitative préliminaire montre que les paramètres d' analyse les plus adaptés sont les suivants :

- RI de largeur totale 3.5× LTMH,
- Modèle de soustraction de fond continu de type escalier,
- Largeur d' évaluation du fond continu de 0.5× LTMH.

La figure suivante illustre les écarts observés entre la surface nette évaluée après superposition du pic de référence sur le front Compton du zinc 65, et la surface nette évaluée à partir du pic seul :

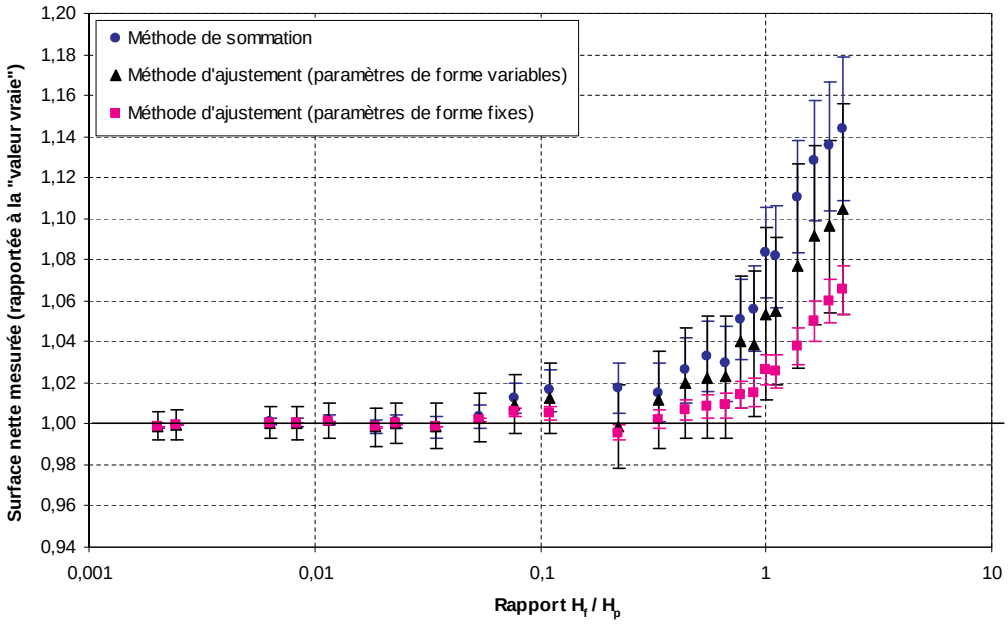

Fig. 43 : calcul de la surface nette d' un pic superposé à un front Compton de hauteur croissante

La limite de validité des calculs de surface nette est estimée pour un rapport H_f / H_p égal à 0.5 environ. Pour des valeurs plus élevées, les écarts à la valeur vraie atteignent jusqu' à 15% pour la méthode de sommation. Les meilleurs résultats sont obtenus avec la méthode d' ajustement avec PFF pour laquelle l' erreur est réduite d' un facteur 2.

Cet exemple met donc en avant les limitations du logiciel pour traiter ce type de cas extrême où les modèles de soustraction de fond continu deviennent inadaptés. Plus généralement, la méthode expérimentale qui vient d' être utilisée pour caractériser la justesse des calculs de surface nette peut être appliquée à tout autre cas pour lequel le logiciel serait mal adapté. Par exemple, si l' on s' intéresse à la raie à 81 keV émise par le xénon 133, on pourrait envisager de créer un pic de référence à 88 keV à partir d' une source de cadmium 109 et de le superposer au spectre étudié. Il est alors possible de contrôler la justesse du calcul de surface nette du pic du xénon 133 à partir du pic de référence de cadmium 109, et le cas échéant de réaliser une post-correction.

4.4.2 Déconvolution de multiplets

4.4.2.1 Description de la méthode expérimentale

La même étude peut être réalisé pour caractériser l'aptitude du logiciel à calculer les surfaces nettes individuelles des pics d'un multiplet. Il est possible de créer artificiellement de tels multiplets en réalisant le comptage d'une source seule, puis en répétant la mesure après avoir modifié le gain et/ou l'*offset* du DSP afin de décaler la position du pic dans le spectre. En utilisant la fonctionnalité de superposition, on obtient alors un multiplet dont on peut contrôler l'écart entre les pics et les surfaces nettes relatives en ajustant les durées de comptage et l'amplitude des réglages (**Fig. 44**).

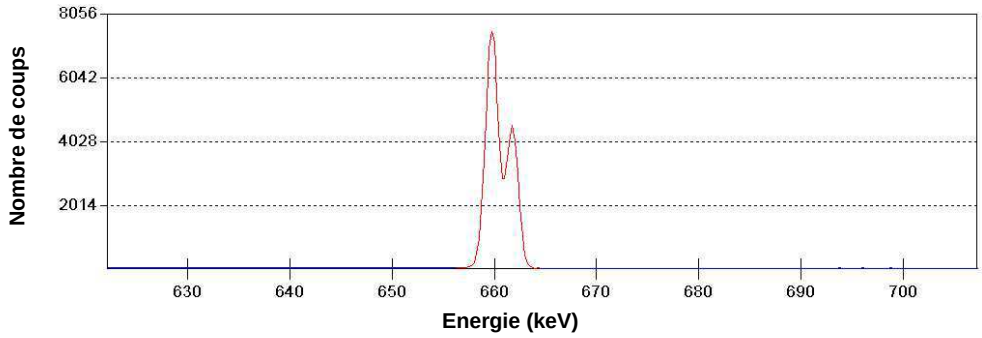

Fig. 44 : exemple de multiplet créé artificiellement pour qualifier les calculs de surface nette

4.4.2.2 Influence de l'écart en énergie

On étudie en premier lieu, l'influence de l'écart en énergie sur la déconvolution d'un multiplet constitué de deux pics de même surface nette (environ 10^5 coups), dont l'un a été déplacé d'un écart en énergie allant de 1× à 4× LTMH. Les paramètres d'analyse utilisés sont les mêmes qu'au §4.4.1.2.

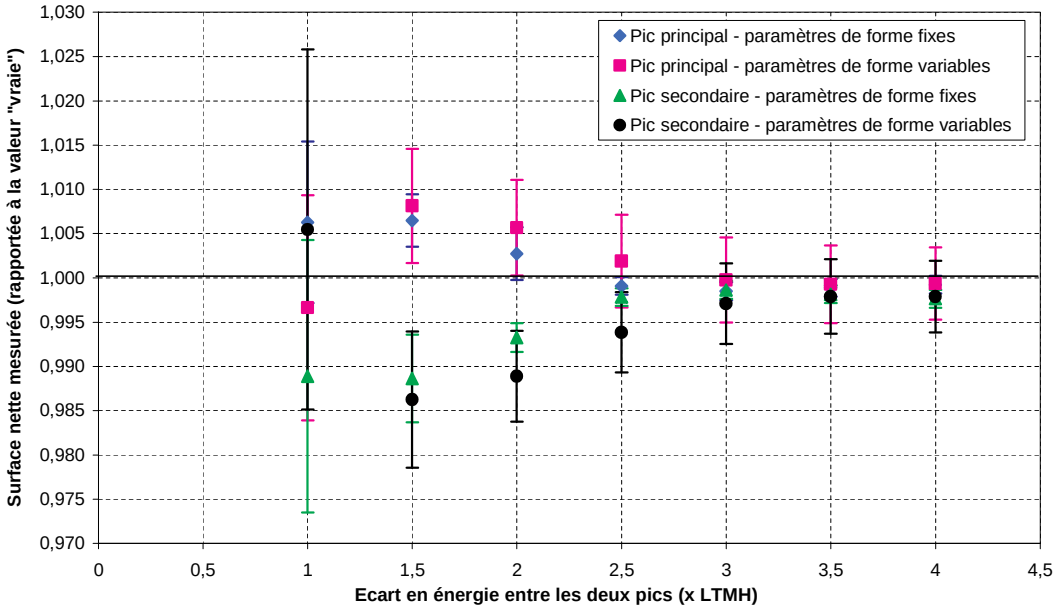

Fig. 45 : influence de l'écart en énergie des pics d'un multiplet sur le calcul de déconvolution

Un écart inférieur à 1% est observé entre les mesures individuelles de chaque pic et les résultats déduits de la déconvolution du multiplet. Par ailleurs, on note que les incertitudes sont cohérentes avec ces écarts à $k = 2$ et que le choix de la méthode d'ajustement (paramètres de forme variables ou fixes) n'a aucune influence sur la justesse des résultats.

On peut donc considérer que le traitement réalisé par GENIE 2000 pour déconvoluer les pics d'un multiplet est indépendant de leur écart en énergie.

4.4.2.3 Influence des surfaces nettes relatives

En second lieu, on étudie l'influence des surfaces nettes relatives des pics d'un multiplet, pour un écart en énergie fixe égal à 3× LTMH. L'un des deux pics possède une surface nette de 2.5×10^5 coups et le second pic est compté pendant des durées croissantes pour que sa surface nette varie de 6×10^4 à 6×10^5 coups. Les paramètres d'analyse utilisés sont les mêmes qu'au §4.4.1.2.

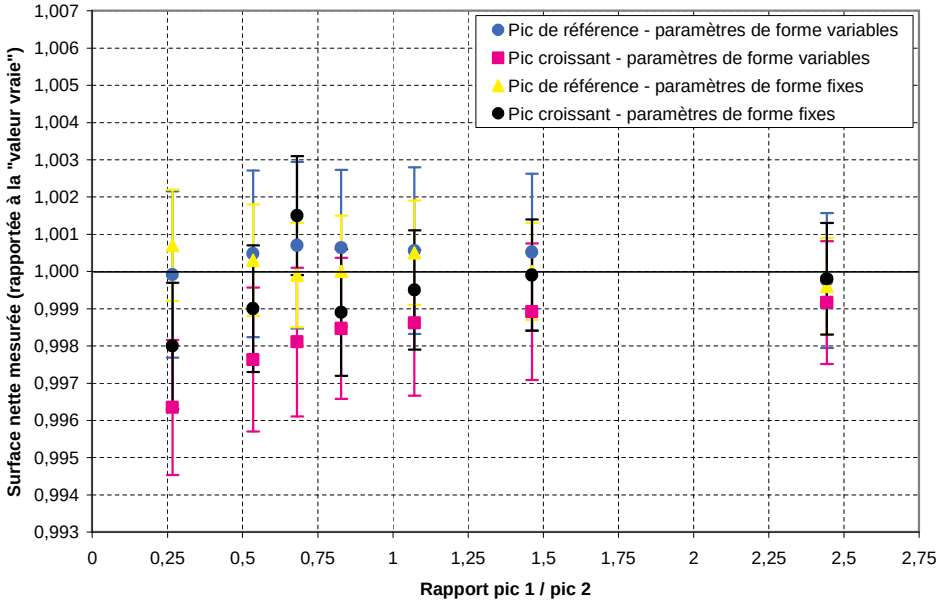

Fig. 46 : influence des surfaces nettes des pics d'un multiplet sur le calcul de déconvolution

Un écart inférieur à 0.4% est observé entre les mesures individuelles de chaque pic et les résultats déduits de la déconvolution du multiplet. Une légère tendance est observée sur la partie gauche de cette figure allant dans le sens d'une sous-estimation de la surface nette réelle. Elle s'explique probablement par la perturbation du fond continu par le pic d'échappement du germanium situé à une énergie inférieure de 10 keV au pic d'absorption total (soit 651.7 keV). L'écart reste toutefois cohérent à $k = 2$ avec l'incertitude annoncée.

Au final, on peut retenir que pour des multiplets correspondant aux différents cas de figure présentés ci-dessus, le traitement de la déconvolution des pics par le logiciel GENIE 2000 conduit à des résultats fiables et d'incertitude réaliste. Par ailleurs, la méthode expérimentale qui vient d'être utilisée pour caractériser le module de déconvolution, pourra être employée pour vérifier l'adaptation du logiciel à traiter des cas plus complexes de multiplets, notamment lorsqu'ils sont constitués de plus de deux pics.

4.4.3 Post-traitement des surfaces nettes

Le logiciel GENIE 2000 permet d'identifier le ou les radionucléides associés à un pic donné, à partir d'une bibliothèque de données interne. Une fois l'étalonnage en rendement d'absorption totale renseigné, le logiciel est en mesure d'évaluer les activités associées à chaque radionucléide. Des tests statistiques permettent alors de vérifier la cohérence des résultats à l'incertitude de comptage près.

Or, il arrive parfois que plusieurs pics trop proches en énergie ne puissent être résolus par des méthodes numériques de déconvolution. On obtient alors un seul pic dont la surface nette est la somme des surfaces nettes individuelles. Ce type de cas de figure n'est pas traité par GENIE 2000 qui associe à une surface nette, le radionucléide dont la probabilité d'émission est la plus élevée. Le rapport de synthèse indique seulement la présence d'une erreur potentielle sur l'un des pics mais sans en chercher la cause, à la différence d'autres logiciels tels que Visu Gamma **[59]**, qui permettent de soustraire la contribution des pics ne pouvant être résolus à partir des autres raies γ émises par le radionucléide perturbateur. C'est par exemple le cas du multiplet à 228.2 keV, obtenu sur des spectres de combustibles UO_2 irradiés dans EOLE ou MINERVE, et qui est la somme :

- du pic du neptunium 239 (produit par capture sur l'uranium 238) à 228.184 keV,
- du pic du tellure 132 (produit de fission) à 228.16 keV.

Ce type de cas de figure est assez courant sur les spectres de produit de fission, notamment pour les mesures réalisées quelques heures après irradiation où la contribution des radionucléides à courte durée de vie est la plus importante. De plus, il arrive que selon la durée écoulée entre la phase d'irradiation et la phase de mesure, la contribution du ou des radionucléides perturbateurs ne soient pas la même. Par exemple, le pic à 487.0 keV obtenu sur des spectres de produits de fission est constitué de :

- 96.5% du pic du lanthane 140 à 487.0 keV et 3.5% du pic de l'iode 132 à 487.5 keV, après 2 jours de décroissance,
- 99.9% du pic du lanthane 140 à 487.0 keV et 0.1% du pic de l'iode 132 à 487.5 keV, après 20 jours de décroissance.

Au-delà de cette problématique liée à l'estimation des surfaces nettes, la mesure de combustibles irradiés dans EOLE ou MINERVE implique des corrections d'autoabsorption γ que le logiciel n'est pas en mesure d'estimer. Ces corrections pourraient, certes, être incluses dans l'étalonnage en rendement d'absorption totale en corrigeant chacune des raies γ utilisées pour l'étalonnage mais compte tenu de la diversité des combustibles étudiés (diamètre, densité, composition), le nombre de facteurs correctifs à estimer serait rapidement prohibitif.

Enfin, pour les applications développées au SPEx sur les maquettes critiques, la mesure de l'activité d'un radionucléide à un instant donné n'a d'intérêt que si elle est rapportée à une activité à saturation, représentative d'un taux de réaction. Si les corrections de décroissance peuvent être facilement calculées pour des lois d'évolution purement exponentielles, ce n'est pas le cas pour des filiations radioactives qui font intervenir des équations d'évolution plus complexes.

Il est donc exclu d'utiliser le logiciel GENIE 2000 pour réaliser le post-traitement des mesures de surface nette. Les différentes limitations exposées ci-dessus montrent la nécessité, dans le cadre des mesures réalisées sur EOLE et MINERVE, de garder le contrôle sur toutes les phases d'obtention des données brutes de mesure et de proscrire toute automatisation du traitement des spectres γ.

5 CONCLUSION

Ce chapitre a permis de caractériser toute l'instrumentation par spectrométrie γ depuis la détection des rayonnements jusqu'à l'extraction des surfaces nettes par le logiciel d'analyse. Il répond aux besoins, exprimés dans la première partie de ce mémoire, de minimisation des erreurs systématiques de mesure (en particulier dues au temps mort) et de réduction des incertitudes associées.

Une étude comparative de plusieurs modules électroniques a permis de montrer les excellentes performances de la chaîne numérique DSP en comparaison des systèmes analogiques utilisés par le passé, grâce à un meilleur compromis entre la capacité de traitement et la résolution en énergie. Elle montre également sa reproductibilité et la justesse de son fonctionnement quantitatif sur une large gamme de taux de comptage. Suite à ce travail, tous les bancs de spectrométrie γ utilisés sur EOLE et MINERVE ont donc été équipés de ces chaînes de mesure.

L'optimisation des réglages a ensuite été menée sur l'un d'entre eux pour satisfaire à un besoin précis, à savoir la mesure d'indices de capture sur des combustibles irradiés dans MINERVE (cf. partie IV). L'étude a permis de chiffrer l'apport des chaînes numériques DSP par rapport aux chaînes analogiques passées :

- **amélioration de la résolution en énergie d'environ 20%** pour une constante de temps (*shaping time*) équivalente,
- **justesse du fonctionnement quantitatif meilleure que 0.5%** jusqu'à 65% de temps mort, (soit un taux de comptage d'environ 1.5×10^5 s^{-1}), à comparer au biais systématique d'environ 40% obtenu dans les mêmes conditions avec les anciennes électroniques,
- **réponse du système indépendante de l'énergie des raies γ,** contrairement aux anciennes cartes codeur PCA3 où le biais sur la correction de temps mort était proportionnel à l'énergie.

Dans la dernière partie de ce chapitre, une étude de sensibilité du logiciel GENIE 2000 aux méthodes d'analyse des spectres, a été présentée. Elle a permis de qualifier les calculs de surface nette de pic en terme de justesse du résultat, et en terme de représentativité de d'incertitude, à partir de cas représentatifs des spectres γ habituellement rencontrés. Il ressort de cette étude, les principales avancées suivantes :

- **recommandations sur le choix des paramètres d'analyse**, notamment sur la largeur de région d'intérêt et sur les méthodes de soustraction et d'évaluation du fond continu,
- **justesse des modèles de soustraction du fond continu à moins de 1%** jusqu'à un rapport fond sur pic $H_f / H_p = 4$ dans le cas d'un fond plat (modèle linéaire), et jusqu'à $H_f / H_p = 0.5$ dans le cas d'un front Compton (modèle escalier),
- **justesse du module de déconvolution de multiplets à moins de 1%,** quel que soit l'écart en énergie des pics (de 1× à 4× LTMH) et leurs surfaces nettes relatives (de 0.25 à 2.5).

L'étude met également en lumière l'inadaptation du logiciel GENIE 2000 pour réaliser le post-traitement des spectres γ, pour les mesures réalisées au SPEx. Autrement dit, une fois les surfaces nettes obtenues, des méthodes d'analyse doivent être développées pour remonter à la grandeur physique d'intérêt. Ce point particulier fait l'objet du chapitre suivant qui vise à figer une méthodologie de traitement des mesures de taux de réaction par spectrométrie γ de pic particulier.

CHAPITRE 2 :
METHODOLOGIE DE TRAITEMENT DES MESURES ABSOLUES DE TAUX DE REACTION

1 INTRODUCTION

La première étape du travail d'optimisation des mesures par spectrométrie γ concernait l'amélioration de l'instrumentation et des méthodes d'obtention des surfaces nettes. Dans ce chapitre, il est question d'exploiter les données brutes de mesure pour remonter à une grandeur physique d'intérêt. Dans le cadre des études menées sur les réacteurs EOLE et MINERVE, les taux de capture et de fission sont les principaux paramètres obtenus par spectrométrie γ. Ils permettent de caractériser les distributions de puissance neutronique dans une configuration de cœur donnée, le taux de conversion de l'uranium 238 ou l'empoisonnement par des isotopes anti-réactifs (xénon 135, américium 241). Ces mesures font appel à la technique de spectrométrie γ de pic particulier qui nécessite l'évaluation de plusieurs facteurs correctifs et fait appel à des données nucléaires de base dont la connaissance conditionne directement l'incertitude sur le résultat de la mesure.

Dans ce chapitre sera détaillée la méthodologie mise en place pour le traitement des données brutes de mesure. L'approche vise à :

- **fédérer les méthodes d'analyse** appliquées auparavant à différents types de mesure (recalage de puissance et taux de conversion de l'uranium 238),
- **justifier les simplifications** réalisées par le passé sur les équations d'évolution et l'estimation des facteurs correctifs,
- **définir une méthodologie générale,** applicable à des mesures absolues ou relatives, de taux de capture ou de fission, sur des échantillons, des crayons combustibles ou des dosimètres.

2 EQUATIONS GENERALES

2.1 Equations d'évolution

Le mesurande étudié est le taux de fission, noté F, intégré sur le volume total V de l'échantillon. Il s'exprime en fonction de sa densité volumique $F(\vec{r})$ par :

$$F = \left(\iiint_V F(\vec{r}) d^3\vec{r} \right)$$

On considère un radionucléide X, créé suite à une irradiation en réacteur et caractérisé par une constante de décroissance radioactive λ_X. On cherche alors à déterminer la quantité formée, notée $X(\vec{r},t)$, à un instant t et dans un volume élémentaire $d^3\vec{r}$, à partir de l'une de ses raies γ d'énergie E_o.

2.1.1 Filiation d' ordre 1

On envisage tout d' abord le cas le plus simple où X est formé par une filiation d' ordre 1 qui correspond à la décroissance rapide des précurseurs à l' échelle des différentes phases de la mesure. C' est par exemple le cas du strontium 92, formé par la filiation suivante :

$$^{92}Se \xrightarrow{38\ ms} {}^{92}Br \xrightarrow{365\ ms} {}^{92}Kr \xrightarrow{1.85\ s} {}^{92}Rb \xrightarrow{4.51\ s} {}^{92}Sr \xrightarrow{2.71\ h} {}^{92}Y$$

Compte tenu des flux neutroniques rencontrés dans EOLE et MINERVE ($< 10^9$ cm^{-2}.s^{-1}), le taux d' absorption sur les différents radionucléides créés pendant l' irradiation peut-être négligé. De même, la faible abondance en impuretés capturantes assure l' absence de perturbation par des produits d' activation. Ainsi, l' abondance d' un produit de fission X n' est gouvernée que par la disparition due à sa décroissance radioactive, et par la production due à la fission et à la décroissance des précurseurs.

Pour caractériser la probabilité d' apparition du radionucléide X par fission directe, on introduit le **rendement de fission indépendant**, noté $y(X)$. En notant $(X_k)_{k=1..n}$ la chaîne des précurseurs de X, dont on néglige les quantités initialement présentes, et en supposant que l' irradiation en réacteur peut être assimilée à un créneau de puissance de durée t_i, les équations d' évolution s' écrivent :

- phase d' irradiation :

$$\begin{cases} X_k(\vec{r},t) \cong \dfrac{F(\vec{r})}{\lambda_{X_k}} \displaystyle\sum_{i=1}^{k} y(X_i) \\ X(\vec{r},t) \cong \dfrac{F(\vec{r})}{\lambda_X}\left(y(X) + \displaystyle\sum_{k=1}^{n} y(X_k) \right)\left(1 - e^{-\lambda_X t}\right) \end{cases}$$

- phase de refroidissement :

$$\begin{cases} X_k(\vec{r},t) \cong 0 \\ X(\vec{r},t) \cong \dfrac{F(\vec{r})}{\lambda_X}\left(y(X) + \displaystyle\sum_{k=1}^{n} y(X_k) \right)\left(1 - e^{-\lambda_X t}\right)\ e^{-\lambda_X (t-t_i)} \end{cases}$$

La somme des rendements de fission indépendants de tous les précurseurs de X est appelée **rendement de fission cumulé**, notée $Y(X)$, soit :

$$Y(X) = y(X) + \sum_{k=1}^{n} y(X_k)$$

Ainsi, l' évolution d' un produit de fission X formé par une filiation d' ordre 1 peut être assimilée à celle d' un radionucléide qui serait formé par fission directe, avec une probabilité $Y(X)$, soit :

- phase d' irradiation :

$$X\ (\vec{r},t) = \frac{F(\vec{r})}{\lambda_X} Y(X)\left(1 - e^{-\lambda_X t}\right) \qquad \textbf{(15)}$$

- phase de refroidissement :

$$X(\vec{r},t) = X(\vec{r},t_i) e^{-\lambda_X (t-t_i)} \qquad \textbf{(16)}$$

2.1.2 Filiation d' ordre 2

Le second cas de figure concerne les radionucléides *X* pour lesquels il existe une compétition entre leur disparition par décroissance radioactive et leur apparition par décroissance d' un précurseur dit « principal », de longue période devant les durées caractéristiques de la mesure (irradiation et refroidissement). C' est par exemple le cas du lanthane 140, formé par la chaîne de filiation suivante :

$$^{140}Te \xrightarrow{275\ ms} {}^{140}I \xrightarrow{860\ ms} {}^{140}Xe \xrightarrow{13.6\ s} {}^{140}Cs \xrightarrow{1.06\ m} {}^{140}Ba \xrightarrow{12.74\ j} {}^{140}La \xrightarrow{1.68\ j} {}^{140}Cs$$

En notant *W* le précurseur principal de *X* et en utilisant les mêmes notations et hypothèses que dans la partie précédente, la résolution des équations d' évolution conduit aux expressions suivantes :

- phase d' irradiation :

$$\begin{cases} W(\vec{r},t) = \dfrac{F(\vec{r})}{\lambda_{X_k}} Y(W)\left(1-e^{-\lambda_W t}\right) \\ X(\vec{r},t) = \dfrac{F(\vec{r})}{\lambda_X} Y(W)\left[\dfrac{1}{\lambda_X-\lambda_W}\left(1-e^{-\lambda_W t}\right) - \dfrac{\lambda_W}{\lambda_W(\lambda_X-\lambda_W)}\left(1-e^{-\lambda_X t}\right)\right] + \dfrac{F(\vec{r})}{\lambda_X} y(X)\left(1-e^{-\lambda_X t}\right) \end{cases} \quad \textbf{(17)}$$

- phase de refroidissement :

$$\begin{cases} W(\vec{r},t) = W(\vec{r},t_i)e^{-\lambda_W (t-t_i)} \\ X(\vec{r},t) = W(\vec{r},t_i)\dfrac{\lambda_W}{\lambda_W-\lambda_X}\left(e^{-\lambda_X (t-t_i)} - e^{-\lambda_W (t-t_i)}\right) + X(\vec{r},t_i)e^{-\lambda_X (t-t_i)} \end{cases} \quad \textbf{(18)}$$

2.2 Expression du taux de fission

La quantité d' un radionucléide $X(\vec{r},t)$ présente à un instant *t* dans un volume élémentaire $d^3\vec{r}$ peut être mesurée d' après son activité $dA(\vec{r},t)$. Par définition, on a donc :

$$dA(\vec{r},t) = \lambda_X X(\vec{r},t) d^3\vec{r}$$

Pour cela, on analyse le flux d' émission de l' une de ses raies γ d' énergie E_o. Connaissant sa probabilité d' émission $I_\gamma(E_o)$, l' activité $dA(\vec{r},t)$ s' écrit alors :

$$dA(\vec{r},t) = \lambda_X X(\vec{r},t) I_\gamma(E_o) d^3\vec{r}$$

On introduit ensuite le rendement d' absorption totale, noté $R^P(\vec{r},E_o)$, défini comme la probabilité qu' une raie γ d' énergie E_o, issue d' un volume élémentaire $d^3\vec{r}$, dépose l' intégralité de son énergie dans le cristal du détecteur. Cette grandeur peut être décomposée en deux termes :

- $R_o^P(E_o)$ le rendement d' absorption totale de référence, obtenu par étalonnage du détecteur à l' aide de sources ponctuelles, dans une configuration de banc de mesure donnée,
- $T(E_o,\vec{r})$ le transfert de rendement, qui permet de corriger localement les effets d' angle solide et de matrice (hétérogénéité des sources de photons et autoabsorption γ) dus à la mesure d' un échantillon volumique dans une configuration différente de celle utilisée lors de l' étalonnage.

En notant $dn(\vec{r},t)$ le taux de comptage créé dans le détecteur, l' instant *t*, par des photons d' énergie E_o, provenant du volume élémentaire $d^3\vec{r}$, on a alors :

$$dn(\vec{r},t) = \lambda_X X(\vec{r},t) I_\lambda(E_o) R_o^P(E_o) T(E_o,\vec{r}) d^3\vec{r}$$

En se référant aux équations (15), (16), (17) et (18), on constate que la densité volumique de taux de fission $F(\vec{r})$ peut être séparée de la composante temporelle de $X(\vec{r},t)$ selon :

$$X(\vec{r},t) = F(\vec{r}) X(t)$$

On introduit ensuite une grandeur notée $d\tau(\vec{r})$ qui correspond à la probabilité qu' une fission créée dans le volume *V*, le soit dans le volume élémentaire $d^3\vec{r}$:

$$d\tau(\vec{r}) = \frac{F(\vec{r}) d^3\vec{r}}{F}$$

En introduisant cette grandeur dans l' expression précédente de $dn(\vec{r},t)$ et par intégration sur le volume *V*, on a alors :

$$n(t) = \lambda_X X(t) I_\gamma(E_o) R_o^P(E_o) T(E_o) F$$

Le terme $T(E_o)$ est le transfert de rendement intégral, obtenu par sommation sur tous les volumes élémentaires $d^3\vec{r}$ et pondérés par les probabilités de fission $d\tau(\vec{r})$:

$$T(E_o) = \iiint_V T(E_o,\vec{r}) d\tau(\vec{r})$$

Enfin, par intégration sur une durée de mesure t_m du taux de comptage $n(t)$ et en faisant intervenir les corrections de temps mort électronique et de coïncidences vraies, notées respectivement C_θ et $C_{coinc}(E_o)$, la relation qui lie le taux de fission *F* à la surface nette $N(E_o)$ du pic s' exprime par :

$$F = \frac{N(E_o) C_\theta C_{coinc}(E_o)}{I_\gamma(E_o) R_o^P(E_o) T(E_o) \int_{t_i+t_o}^{t_i+t_o+t_m} \lambda_X X(t) dt}$$

Le terme intégral présent au dénominateur permet de prendre en compte l' évolution de *X* au cours des différentes phases et de remonter au **taux de comptage à saturation**, noté $n_{sat}(E_o)$, à partir du taux de comptage mesuré pendant une durée t_m, après une durée d' irradiation t_i et une durée de refroidissement t_o. On introduit donc un facteur de **correction de décroissance**, noté C_{dec}, obtenu par intégration des relations **(16)** et **(18)** et après factorisation des rendements de fission cumulés, soit :

- cas d' une filiation d' ordre 1 :

$$C_{dec} = \frac{\lambda_X t_m}{e^{-\lambda_X t_o}(1-e^{-\lambda_X t_i})(1-e^{-\lambda_X t_o})} \qquad \textbf{(19)}$$

- cas d' une filiation d' ordre 2 :

$$C_{dec} = \frac{(\lambda_X - \lambda_W) t_m}{\frac{\lambda_X}{\lambda_W} e^{-\lambda_W t_o}(1-e^{-\lambda_W t_i})(1-e^{-\lambda_W t_m}) - \frac{\lambda_W}{\lambda_X}(1+\frac{\lambda_W-\lambda_X}{\lambda_W}\frac{y(X)}{Y(W)}) e^{-\lambda_X t_o}(1-e^{-\lambda_X t_i})(1-e^{-\lambda_X t_m})} \qquad \textbf{(20)}$$

Le taux de comptage à saturation $n_{sat}(E_o)$ de la raie γ d'énergie E_o s'écrit donc :

$$n_{sat}(E_o) = \frac{N(E_o)}{t_m} C_\theta C_{coinc}(E_o) C_{dec} \qquad \textbf{(21)}$$

Enfin, le taux de fission peut être formulé par l'expression condensée suivante :

$$F = \frac{n_{sat}(E_o)}{I_\gamma(E_o) R_o^P(E_o) T(E_o) Y} \qquad \textbf{(22)}$$

où $Y = Y(X)$ pour une filiation d'ordre 1 et $Y = Y(W)$ pour une filiation d'ordre 2.

Cette expression peut être directement transposée pour un taux de capture en imposant $Y = 1$ dans l'expression **(22)** et $y_X = 0$ dans l'expression **(20)**. La mesure d'un taux de réaction neutronique fait donc appel à :

- *des grandeurs mesurées* : la surface nette $N(E_o)$ du pic caractéristique, le rendement d'absorption totale de référence $R_o^P(E_o)$ et les durées des différentes phases t_i, t_o et t_m,
- *des facteurs correctifs* : les corrections de décroissance, de temps mort et de coïncidences vraies ainsi que le transfert de rendement,
- *des données nucléaires de base* : la probabilité d'émission γ, la ou les constantes de décroissance radioactive et les rendements de fission.

3 TAUX DE COMPTAGE A SATURATION

On suppose connue la surface nette du pic représentatif du taux de réaction étudié. La détermination de $n_{sat}(E_o)$ fait ensuite appel à des facteurs correctifs C_θ et $C_{coinc}(E_o)$ permettant de tenir compte des limitations intrinsèques de la chaîne de mesure et du facteur C_{dec} pour extrapoler le taux de comptage à un instant *t* à sa valeur à saturation.

3.1 Activité résiduelle

Pour certains radionucléides de longue période (plusieurs dizaines de jours), il est possible que la quantité présente au moment de l'irradiation ne soit pas totalement négligeable, tel que supposé dans les équations d'évolution précédentes. Une mesure de l'activité résiduelle est alors effectuée pour déterminer sa contribution à l'activité totale post-irradiation. Pour un radionucléide dont l'évolution suit une loi d'évolution purement exponentielle, le taux de comptage à saturation $n_{sat}(E_o)$ s'écrit :

$$n_{sat}(E_o) = \left(\frac{N(E_o)}{t_m} C_\theta - \frac{N_{res}(E_o)}{t_{m,res}} C_{\theta,res} e^{-\lambda \delta t} \right) C_{coinc}(E_o) C_{dec}$$

où $N_{res}(E_o)$ est la surface nette mesurée avant irradiation pendant une durée $t_{m,res}$, corrigée du temps mort par $C_{\theta,res}$ et de la décroissance radioactive pendant la durée δt qui sépare le comptage résiduel du comptage post-irradiation.

Lorsque la reproductibilité du positionnement de l'échantillon est incertaine entre la mesure de résiduel et la mesure post-irradiation, il est possible d'utiliser un pic de référence dont la variation d'activité est négligeable entre les différentes phases de la mesure. Il peut s'agir par exemple de :

- la raie γ de l'américium 241 à 59.5 keV ou la raie γ à 312.0 keV émise par décroissances successives du neptunium 237 (adaptées pour des combustibles de type MOX),
- la raie γ à 185.7 keV de l'uranium 235 ou la raie γ à 1001.0 keV émise par décroissances successives de l'uranium 238 (adaptées pour des combustibles de type UO_2).

Le cas échéant, l'activité résiduelle du radionucléide étudié est recalée par rapport à la géométrie de mesure post-irradiation à partir du comptage du pic de référence, soit :

$$n_{sat}(E_o) = \left(\frac{N(E_o)}{t_m} - \frac{N_{res}(E_o)}{t_m} \frac{N(E_{ref})}{N_{res}(E_{ref})} e^{-\lambda \delta t} \right) C_\theta \, C_{coinc}(E_o) C_{dec}$$

où $N_{res}(E_{ref})$ et $N(E_{ref})$ sont les surfaces nettes du pic de référence, avant et après irradiation.

Une fois l'activité brute soustraite de l'activité résiduelle, il reste à calculer les différents facteurs correctifs pour accéder au taux de comptage à saturation $n_{sat}(E_o)$.

3.2 Facteur de correction de temps mort

Les chaînes de spectrométrie γ du SPEx utilisent la correction de temps mort en temps actif. Cette méthode consiste à estimer le taux d'occupation θ de l'électronique, c'est-à-dire la proportion du temps d'acquisition dédiée au traitement des signaux pendant lequel tout nouveau signal incident ne sera pas pris en compte. Par définition, le facteur de correction de temps mort s'écrit donc :

$$C_\theta = \frac{1}{1-\theta} \qquad \textbf{(23)}$$

Cette méthode de correction est basée sur l'hypothèse, vérifiée pour la plupart des applications habituelles, de variation négligeable de l'activité de l'échantillon au cours de la mesure. Or ce type d'hypothèse montre ses limites dans le cas de combustibles mesurés quelques heures après irradiation dans EOLE ou MINERVE et où l'activité diminue d'environ 50% sur une durée de 2 heures. La problématique est d'autant plus complexe que l'activité γ totale des combustibles décroît avec une loi d'évolution différente de la période du radionucléide étudié.

Une étude a donc été menée pour étendre le domaine de validité de la correction de temps mort à la mesure des radionucléides à courte durée de vie (période radioactive de quelques dizaines de minutes à quelques heures). Grâce à un modèle analytique décrivant l'évolution temporelle du temps mort (i.e. de l'activité γ totale), une post-correction à appliquer au temps mort θ va être évaluée.

3.2.1 Détermination de la loi d'évolution $\theta(t)$

La loi d'évolution de θ en fonction du temps est déterminée en regroupant l'ensemble des mesures réalisées au cours de la thèse à partir de combustibles UO_2 irradiés dans MINERVE (cette approche est évidemment transposable à n'importe quel autre type de combustible).

L' activité γ totale vue par le détecteur est proportionnelle au temps mort, dépend de la durée et de la puissance d' irradiation ainsi que de la géométrie dedétection. Toutes les mesures réalisées ont donc été normalisées à la même puissance intégrée (environ 160 W.h) et au même rendement total, afin de pouvoir être comparées (**Fig. 47**) :

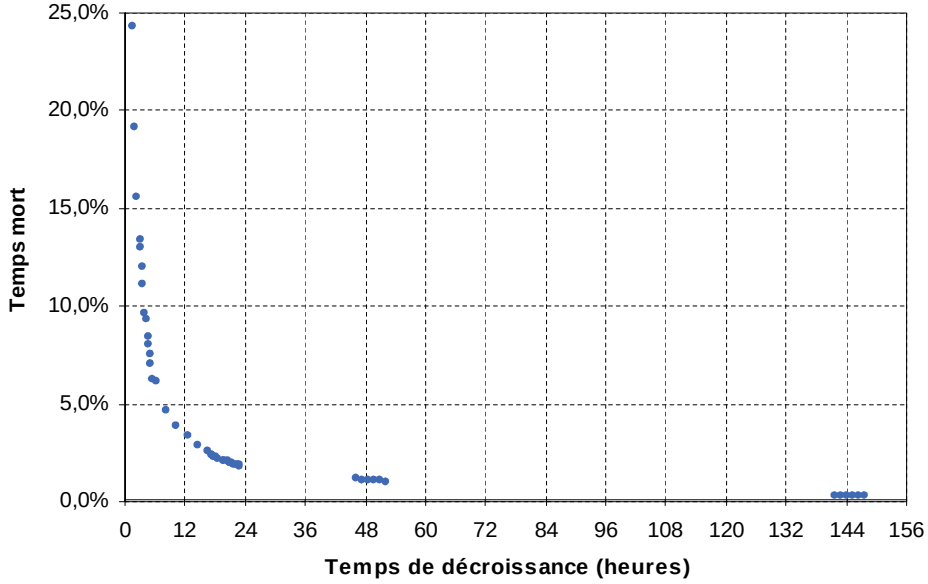

Fig. 47 : évolution du temps mort en fonction du temps de décroissance

On observe que la variation la plus importante du temps mort intervient pendant les 24 heures qui suivent l' irradiation en réacteur, période pendant laquelletous les produits de fission à courte durée de vie disparaissent. A partir de cet échantillon de valeurs, le modèle mathématique suivant est introduit pour rendre compte de la variation temporelle du temps mort:

$$\theta(t) = \theta_o(1 + \sum_i a_i(1 - e^{-b_i t})) \qquad \textbf{(24)}$$

Les coefficients d' ajustements a_i et b_i du modèle sont obtenus par la méthode des moindres carrés à l' aide de l' utilitaire « Curve Fitting Toolbox » du logiel MATLAB. Par approches successives, un coefficient d' ajustement R^2 = 0.9973 est obtenu pour un modèle à deux termes exponentiels, ce qui est largement suffisant pour le calcul d' une post-correction :

Coefficients	Estimation
a_1	$(-8.652 \pm 0.135) \times 10^{-1}$
a_2	$(-1.241 \pm 0.130) \times 10^{-1}$
b_1	$(1.515 \pm 0.089) \times 10^{-4}$
b_2	$(1.807 \pm 0.259) \times 10^{-5}$

Tab. 9 : coefficients d' ajustement du modèle d' évolution temporelle $\theta(t)$

A noter que la détermination du coefficient de normalisation θ_o n' a aucune importance car seule la variation de $\theta(t)$ sera considérée par la suite.

Le temps mort indiqué par GENIE 2000 est la valeur moyenne de la fonction $\theta(t)$ au cours de la mesure de durée t_m. En notant t_o la durée de décroissance entre la fin de l'irradiation en réacteur et le début de la phase de mesure, cette valeur moyenne s'exprime analytiquement par la relation suivante :

$$\bar{\theta} = \theta_o \left(1 + a_1 \left(1 - \frac{1-e^{-b_1 t_m}}{b_1 t_m} e^{-b_1 t_o}\right) + a_2 \left(1 - \frac{1-e^{-b_2 t_m}}{b_2 t_m} e^{-b_2 t_o}\right) \right) \qquad \textbf{(25)}$$

3.2.2 Calcul de la post-correction ξ

Le même type de raisonnement qu'au §2.2 va être mis en œuvre pour établir le lien entre le taux d'impulsion $n(t)$ dans le détecteur et le taux de comptage mesuré $m(t)$, recueilli en sortie de la chaîne électronique. Par définition, on a donc :

$$m(t) = n(t)\left(1 - \theta(t)\right)$$

En considérant tout d'abord un radionucléide dont la décroissance est purement exponentielle $n(t) = n_o e^{-\lambda t}$ et en utilisant le modèle d'évolution **(24)** du temps mort, la surface nette M du pic d'intérêt, obtenue par intégration de la relation précédente sur une durée de mesure t_m, s'écrit :

$$M = \int_{t_o}^{t_o + t_m} n_o e^{-\lambda t} \left(1 - \theta_o \left(1 + a_1 \left(1 - e^{-b_1 t}\right) + a_2 \left(1 - e^{-b_2 t}\right)\right)\right) dt$$

En exprimant la constante θ_o en fonction du temps mort moyen d'après l'expression **(25),** et en remarquant que n_o s'exprime en fonction du taux de comptage à saturation par $n_o = n_{sat}(1 - e^{-\lambda t_i})$, l'intégration de cette expression conduit à :

$$\frac{M}{t_m} = n_{sat} \left(\frac{e^{-\lambda t_o}\left(1 - e^{-\lambda t_i}\right)\left(1 - e^{-\lambda t_m}\right)}{\lambda t_m} \right) \left(1 - \bar{\theta} \frac{1 + a_1 \left(1 - \frac{\lambda}{\lambda + b_1} \frac{1 - e^{-(\lambda + b_1) t_m}}{1 - e^{-\lambda t_m}} e^{-b_1 t_o}\right) + a_2 \left(1 - \frac{\lambda}{\lambda + b_2} \frac{1 - e^{-(\lambda + b_2) t_m}}{1 - e^{-\lambda t_m}} e^{-b_2 t_o}\right)}{1 + a_1 \left(1 - \frac{1 - e^{-b_1 t_m}}{b_1 t_m} e^{-b_1 t_o}\right) + a_2 \left(1 - \frac{1 - e^{-b_2 t_m}}{b_2 t_m} e^{-b_2 t_o}\right)} \right)$$

Le taux de comptage à saturation a donc la même formulation que l'équation **(21)** déterminée au §2.2. En notant ξ la post-correction du temps mort, permettant de tenir compte de la décroissance de l'activité γ totale de l'échantillon au cours de la mesure, le facteur de correction de temps mort optimisé s'écrit alors :

$$C_\theta = \frac{1}{1 - \xi \bar{\theta}} \qquad \textbf{(26)}$$

En reprenant la même démarche pour des radionucléides formés par des filiations d'ordre 2 et à partir de l'équation d'évolution **(18)**, on aboutit à une formulation similaire du facteur de correction de temps mort. La post-correction ξ peut donc être condensée sous une expression globale, à savoir :

$$\xi = \frac{1 + a_1(1 - \alpha_1) + a_2(1 - \alpha_2)}{1 + a_1 \left(1 - \frac{1 - e^{-b_1 t_m}}{b_1 t_m} e^{-b_1 t_o}\right) + a_2 \left(1 - \frac{1 - e^{-b_2 t_m}}{b_2 t_m} e^{-b_2 t_o}\right)} \qquad \textbf{(27)}$$

Les coefficients α_i intervenant dans cette expression dépendent du type d'évolution temporelle du radionucléide :

- cas d'une filiation d'ordre 1 :

$$\alpha_i = \frac{\frac{\lambda}{\lambda + b_i}(1 - e^{-(\lambda + b_i)t_m})e^{-b_i t_o}}{1 - e^{-\lambda t_m}} \qquad \textbf{(28)}$$

- cas d'une filiation d'ordre 2 :

$$\alpha_i = \frac{\frac{\lambda_X}{\lambda_W + b_i}(1 - e^{-\lambda_W t_i})(1 - e^{-(\lambda_W + b_i)t_m})e^{-(\lambda_W + b_i)t_o} - \frac{\lambda_W}{\lambda_X + b_i}(1 - e^{-\lambda_X t_i})(1 - e^{-(\lambda_X + b_i)t_m})e^{-(\lambda_X + b_i)t_o}}{\frac{\lambda_X}{\lambda_W}(1 - e^{-\lambda_W t_i})(1 - e^{-\lambda_W t_m})e^{-\lambda_W t_o} - \frac{\lambda_W}{\lambda_X}(1 - e^{-\lambda_X t_i})(1 - e^{-\lambda_X t_m})e^{-\lambda_X t_o}} \qquad \textbf{(29)}$$

A noter que si la ou les constantes caractérisant la décroissance du radionucléide sont petites devant b_1 et b_2 ou si la durée de mesure t_m est suffisamment petite pour pouvoir développer les exponentielles au premier ordre, le facteur ξ tend alors vers 1 et on retrouve l'expression **(23)**.

A noter également que le choix d'un modèle d'évolution de $\theta(t)$, à base d'une somme de termes exponentiels, assure la robustesse de l'extrapolation puisqu'on a la condition aux limites :

$$\lim_{t \to \infty} \theta(t) = \text{constante}$$

3.3 Facteur de correction des coïncidences vraies

Le phénomène de coïncidences vraies est une limitation à laquelle est confrontée toute chaîne de mesure par spectrométrie γ. Elle correspond à la détection simultanée de rayonnements émis lors d'une même désintégration radioactive, pour des radionucléides dont le schéma de décroissance présente plusieurs niveaux. Sa prise en compte est cruciale pour les mesures de basses activités qui nécessitent de réduire la distance source-détecteur à quelques centimètres. Elle constitue alors la principale source d'erreur sur le résultat de la mesure.

Pour des schémas de décroissance simples à deux ou trois niveaux, la littérature fournit des corrections analytiques qui font appel aux coefficients de conversion interne, aux probabilités d'émission γ et aux rendements de détection obtenus par étalonnage. Pour des schémas plus complexes, le traitement analytique devient fastidieux et on doit recourir à des logiciels adaptés.

Par le passé, on ne disposait pas des moyens informatiques permettant d'estimer ce facteur correctif. La distance source-détecteur était donc ajustée (> 200 mm) de telle manière à minimiser le phénomène, sans toutefois être en mesure de quantifier précisément l'erreur commise sur la mesure.

Le Laboratoire National Henri Becquerel a récemment développé le logiciel ETNA **[28]** qui permet de calculer ces facteurs correctifs, en tenant compte à la fois des coïncidences γ-γ et γ-X. Les données d'entrée sont les suivantes :

- le radionucléide associé à la raie γ étudiée,
- les courbes d'étalonnage en rendement total et en rendement d'absorption totale,
- la description de la géométrie d'étalonnage et de mesure (détecteur, type de source, écrans).

Au cours de la thèse, des mesures en géométrie rapprochée (environ 100 mm) ont été réalisées sur le détecteur de 65% d'efficacité relative (cf. partie V). Celui-ci s'avère particulièrement sensible au phénomène de coïncidences vraies compte tenu de la taille de son cristal (350 cm^3). Après un pré-étalonnage en rendement total et en rendement d'absorption du détecteur dans la même géométrie que pour la mesure d'intérêt (cf. section §4.1.), des calculs ont été réalisés avec ETNA pour estimer les facteurs correctifs à appliquer sur la mesure de sources émettant plusieurs raies γ de forte intensité :

Raie γ	C_{coinc}
1173.2 keV (^{60}Co)	1.0287
1332.5 keV (^{60}Co)	1.0290
898.0 keV (^{88}Y)	1.0265
1836.0 keV (^{88}Y)	1.0287
80.9 keV (^{133}Ba)	1.0401
383.9 keV (^{133}Ba)	0.9876
244.7 keV (^{152}Eu)	1.0438
295.9 keV (^{152}Eu)	1.0521
1457.6 keV (^{152}Eu)	0.9765

Tab. 10 : corrections de coïncidences vraies calculées par ETNA, pour une source ponctuelle placée à 100 mm du détecteur de 65% d'efficacité relative

Les résultats reportés dans ce tableau montrent que l'absence de prise en compte du phénomène de coïncidences vraies pour les mesures qui seront développées par la suite, peut conduire à des erreurs systématiques de 5% sur le résultat de la mesure. Toutefois, pour des crayons combustibles mesurés sur le détecteur planaire (volume actif de 40 cm^3) à une distance de 250 mm, le rendement de détection est dans un facteur 10 avec le détecteur évoqué ci-dessus (cf. section §4.2 de ce chapitre) et les corrections sont systématiquement inférieures à 0.5%.

Autrement dit, les simplifications passées étaient justifiées dans les conditions où étaient réalisées les mesures, mais doivent être vérifiées au cas par cas pour toute autre application impliquant un détecteur de forte efficacité relative (> 15%) et/ou une géométrie rapprochée (< 200 mm).

3.4 Facteur de correction de décroissance

Pour rappel, les facteurs de correction de décroissance, qui permettent de déduire le taux de comptage à saturation à partir du taux de comptage mesuré pendant t_m, après une irradiation de durée t_i et une durée de refroidissement t_o, sont les suivants :

- cas d'une filiation d'ordre 1 :

$$C_{dec} = \frac{\lambda_X t_m}{e^{-\lambda_X t_o}(1-e^{-\lambda_X t_i})(1-e^{-\lambda_X t_o})}$$

- cas d'une filiation d'ordre 2 :

$$C_{dec} = \frac{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}{\frac{\lambda_X}{\lambda_W}e^{-\lambda_W t_o}(1-e^{-\lambda_W t_i})(1-e^{-\lambda_W t_m}) - \frac{\lambda_W}{\lambda_X}(1+\frac{\lambda_W - \lambda_X}{\lambda_W}\frac{y(X)}{Y(W)})e^{-\lambda_X t_o}(1-e^{-\lambda_X t_i})(1-e^{-\lambda_X t_m})}$$

Cette dernière expression est plus rigoureuse que celle qui était utilisée par le passé **[45]**. En effet, elle fait intervenir, dans la seconde partie du dénominateur, un terme lié à la production du radionucléide X par fission directe qui était systématiquement négligé par le passé. Celui-ci peut s'avérer prépondérant pour les produits de fission ayant peu de précurseurs, et où le rendement de fission indépendant $y(X)$ n'est plus négligeable devant le rendement de fission cumulé $Y(W)$. Par exemple, dans le cas de l'étude du xénon 135, la non prise en compte de $y(X)$ pour une mesure réalisée après 24 heures de refroidissement, conduit à une erreur de 1% sur le facteur C_{dec} et donc sur le taux de fission mesuré. Néanmoins, pour tous les autres produits de fission qui seront envisagés par la suite, ce terme induit une correction de moins de 0.1% sur C_{dec} et pourra donc être négligé.

Il faut également rappeler que les formules données ci-dessus ont été obtenues en posant l'hypothèse d'une irradiation de type créneau, où les transitoires sont négligés et la puissance supposée constante au cours de l'irradiation. En pratique, si les durées decomptage t_m et de refroidissement t_o peuvent être considérées comme parfaitement maîtrisées, ce n'est pas le cas de la durée d'irradiation qui doit tenir compte des transitoires permettant d'établir le pseudo-créneau de puissance et en particulier la phase de divergence du réacteur (la descente rapide des barres de sûreté faisant chuter la puissance d'un facteur 100 en quelques secondes). La figure ci-dessous illustre l'évolution de puissance type obtenue dans EOLE ou MINERVE, à partir de la levée complète des barres de sûreté :

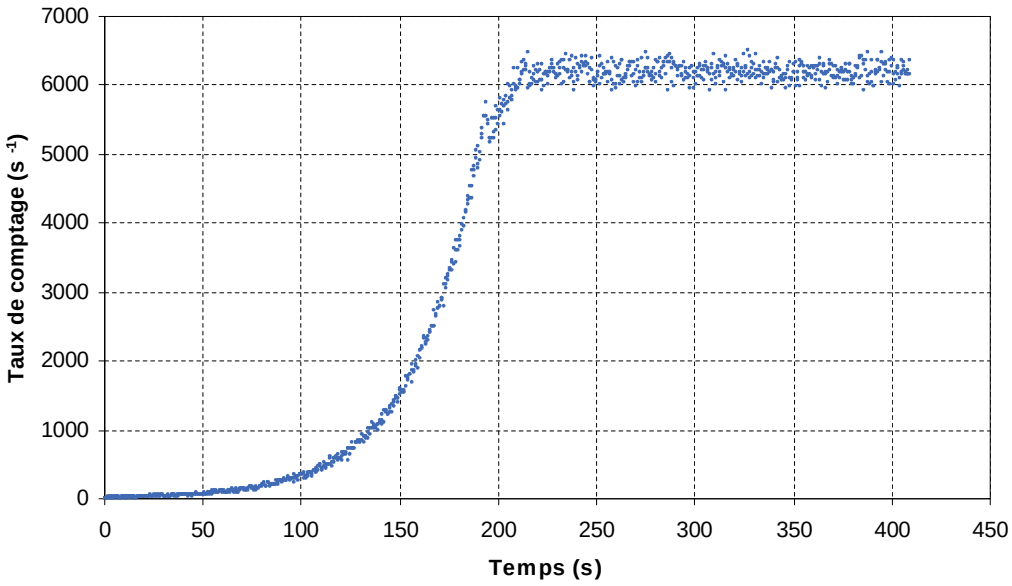

Fig. 48 : divergence de puissance par chambre à fission dans MINERVE (cœur R1-UO2)

Si l'on souhaite comparer des échantillons issus de plusieurs expériences d'irradiation, où si la mesure consiste à comparer des taux de réaction à partir de radionucléides présentant des périodes radioactives très distinctes, il est nécessaire de bien maîtriser la durée d'irradiation. La divergence étant souvent de courte durée devant la durée totale d'irradiation, on raisonne en puissance intégrée en calculant une durée effective d'irradiation $t_{i,eff}$ à partir de la durée à puissance stable $t_{i,stable}$ par :

$$t_{i,eff} \cong t_{i,stable} \frac{\int_{totale} P(t)dt}{\int_{stable} P(t)dt}$$

où les intégrales de puissance sont estimées à partir du taux de comptage d'une chambre à fission.

Cette méthode de calcul de la durée d'irradiation n'est valide que pour l'étude de radionucléides dont la période radioactive est longue devant le transitoire de puissance ($T_{1/2}$ > 1 h). Cette relation sera notamment utilisée dans les parties IV et V pour comparer les mesures de taux de réaction provenant d'expériences d'irradiation différentes (rapport cadmium de capture ou de fission).

Le taux de comptage étant corrigé des trois facteurs C_θ, C_{coinc} et C_{dec}, on doit ensuite estimer le rendement d'absorption totale pour la géométrie de mesure afin de remonter au flux d'émission dans tout l'espace de la raie γ étudiée. Ce point fait l'objet des sections suivantes.

4 ETALONNAGE EN RENDEMENT DES DETECTEURS

4.1 Méthode d'évaluation du rendement

Le **rendement d'absorption totale** est le terme qui établit le lien entre la surface nette d'un pic et le nombre de photons émis dans tout l'espace. Il s'écrit donc :

$$R^P(E) = \frac{n^P(E)}{\phi(E)} \qquad \textbf{(30)}$$

où $n^P(E)$ est le taux de comptage du pic associé à la raie γ d'énergie E et $\phi(E)$ le flux d'émission dans tout l'espace à l'énergie E.

Pour certaines applications spécifiques (mesure d'activité provenant d'un seul radionucléide, calculs de facteur correctif des coïncidences vraies), on peut être amené à évaluer le **rendement total**, défini comme le rapport du taux de comptage intégral $n^T(E)$ généré par une raie γ d'énergie E, au flux d'émission $\phi(E)$ dans tout l'espace :

$$R^T(E) = \frac{n^T(E)}{\phi(E)} \qquad \textbf{(31)}$$

Dans la plupart des cas, il n'est pas possible de disposer d'un étalon de référence possédant la même géométrie que l'échantillon mesuré, pour des questions technologiques ou bien parce que le radionucléide étudié est de trop courte période. Aussi, pour des applications nécessitant un étalonnage en rendement de précision (< 1%), la méthode communément utilisée consiste à combiner **[60]** :

- *une approche expérimentale*, afin d'établir une courbe d'étalonnage à partir de radionucléides dont la géométrie et les données nucléaires sont très bien maîtrisées,
- *une approche calculatoire*, pour corriger la courbe expérimentale afin de tenir compte de la différence de géométrie et/ou d'énergie entre l'étalonnage et la mesure d'intérêt.

Dans cette partie, une méthodologie d'étalonnage sera proposée pour les deux détecteurs utilisés par la suite. Ils correspondent à des configurations géométriques de mesure, des réponses en énergie et des applications différentes :

- le détecteur au Ge[HP] de type coaxial, d'efficacité relative 65%, est étalonné à une distance de 100 mm, sur la gamme allant de 53 keV à 1836 keV,
- le détecteur au Ge[HP] de type planaire, adapté aux mesures de basse énergie, est étalonné à une distance de 250 mm, sur la gamme allant de 15 keV à 1836 keV.

4.2 Mise en œuvre expérimentale

L'étalonnage en rendement d'absorption totale des deux détecteurs susmentionnés est réalisé à partir de sources quasi-ponctuelles, constituées chacune d'une goutte de diamètre 3 mm déposée entre deux films minces de masse surfacique 28 mg.cm^{-2}, montés dans un anneau plastique de diamètre 25 mm (**Fig. 49**). Afin de couvrir la gamme 15 keV – 1836 keV, on a recourt aux différents étalons suivants :

- 10 radionucléides dits « monoénergétiques », car ils émettent un nombre limité de raies γ : américium 241, cadmium 109, cobalt 57, cérium 139, chrome 51, étain 113, strontium 85, césium 137, manganèse 54, zinc 65,
- 4 radionucléides multiphotoniques : baryum 133, europium 152, cobalt 60 et yttrium 88.

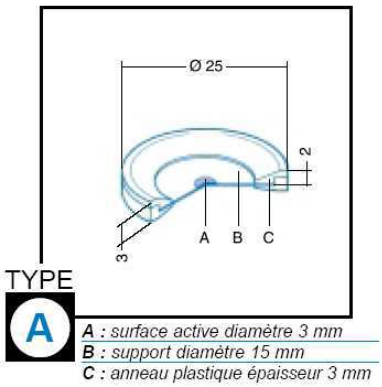

Fig. 49 : géométrie des étalons utilisés

Un dispositif constitué de cylindres empilables de hauteur 50 mm a été conçu et fabriqué afin d'assurer un positionnement et un centrage précis de la source par rapport au détecteur (**Fig. 50**) :

Fig. 50 : dispositif de centrage et de positionnement des sources pour l'étalonnage en rendement

Chaque source est alternativement positionnée face aux 2 détecteurs et la mesure du spectre réalisée pendant une durée suffisante pour que l'incertitude sur la surface nette soit de l'ordre de 0.2% (i.e. faible devant l'incertitude sur l'activité des étalons qui est de l'ordre de 0.8% à 1.5%).

Afin de corriger les erreurs de comptage liées au phénomène de coïncidences vraies, en particulier pour les étalons multiphotoniques utilisés, le logiciel ETNA est mis à contribution afin d'évaluer les facteurs correctifs ad-hoc. La démarche mise en œuvre est itérative car ces corrections sont déduites des courbes de rendement fournies au logiciel pour pouvoir les évaluer. Cependant, comme les géométries de mesure sont suffisamment éloignées (≥ 100 mm), ces corrections sont de l'ordre de quelques pourcents et un étalonnage avec une incertitude de 5% est suffisant.

Un pré-étalonnage en rendement total et en rendement d' absorption totale est alors estimé à partir des comptages réalisés pour les dix étalons monoénergétiques de la façon suivante.

Le rendement d' absorption totale est déduit du rapport entre le taux de comptage enregistré dans chaque pic caractéristique et le flux d' émission de la source donné par le certificat d' étalonnage, lequel est corrigé de la décroissance radioactive entre la date de mesure et la date détalonnage.

Le rendement total est plus difficile à estimer car les spectres de chaque source comportent un à plusieurs pics dus aux raies X dont il faut soustraire la contribution au spectre γ total. En remarquant que pour des énergies inférieures à 50 keV, l' interaction des photons avec le germanium se fait essentiellement par effet photoélectrique, une simplification consiste à soustraire au taux de comptage total le taux de comptage de la somme des pics dus aux raies X, noté n_X^P, soit :

$$R^T(E) = \frac{n^T(E) - n_X^P}{\phi(E)}$$

Les rendements obtenus par étalonnage à partir du détecteur au Ge[HP] de type planaire sont représentés ci-dessous (**Fig. 51**) :

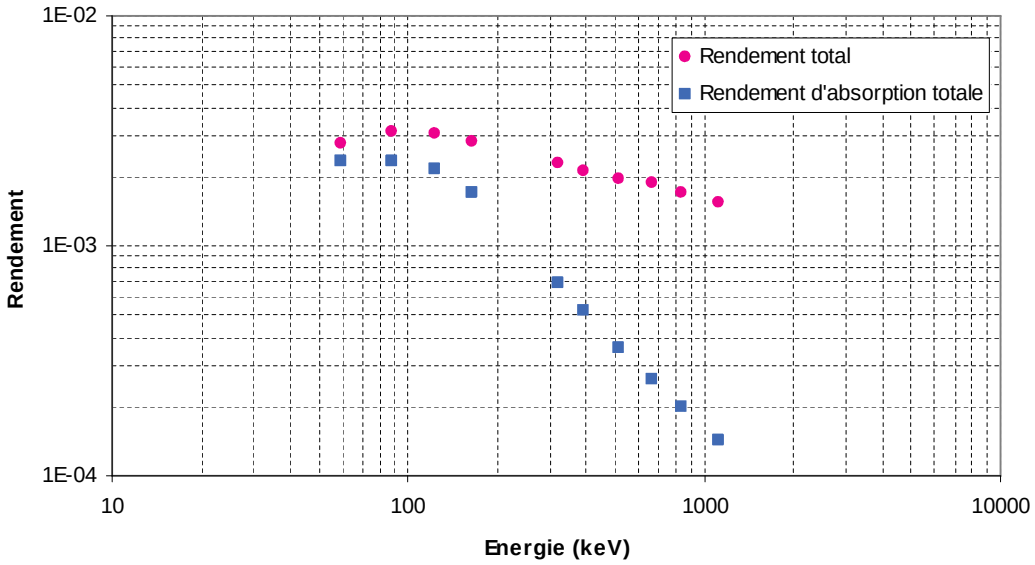

Fig. 51 : pré-étalonnage en rendement du détecteur au Ge[HP] de type planaire

Sur la gamme d' énergie couverte par les étalons monoénergétiques (59.5 keV – 1115.5 keV), le modèle APOLOG est bien adapté pour rendre compte de la variation en énergie du rendement **[61]** :

$$\log R(E) = \sum_i a_i \left(\log \frac{E}{E_c} \right)^i \qquad \textbf{(32)}$$

où E_c une constante de normalisation destinée à faciliter la convergence de l' ajustement du modèle.

Le maillage discret imposé par le logiciel ETNA pour la saisie des rendements, couvre la gamme d' énergie allant de 1 keV à 4000 keV. Aussi les rendements ne peuvent-ils pas être déduits directement des courbes d' étalonnage ci-dessus. Pour palier ce problème, le calcul Monte-Carlo constitue une solution adaptée car il permet d' estimer la réponse du détecteur à un flux de photons en fonction de son énergie. Le principe, qui sera explicité en détail dans la section §5, consiste à calculer les rendements à une énergie donnée à partir du rendement mesuré pour l' énergie la plus proche.

Une fois les rendements renseignés et la géométrie d'étalonnage décrite, les corrections de coïncidences vraies sont calculées pour tous les radionucléides mesurés, y compris les étalons monoénergétiques pour lesquels les coïncidences de type γ-X ne sont pas complètement négligeables. Le tableau suivant donne les corrections obtenues pour le baryum 133 et pour les 2 détecteurs :

Raie γ (keV)	C_{coinc} (détecteur coaxial)	C_{coinc} (détecteur planaire)
53.162	1.0392	1.0054
80.896	1.0340	1.0042
160.61	1.0158	0.9982
223.24	1.0171	1.0070
276.4	1.0166	1.0059
302.85	1.0086	1.0049
356.01	1.0075	1.0036
383.85	0.9871	0.9993

Tab. 11 : corrections de coïncidences vraies des raies γ d'une source de baryum 133

Ce tableau montre l'amplitude des erreurs commises en négligeant les corrections de coïncidences vraies : jusqu'à 4% pour une mesure réalisée à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative et inférieure à 0.7% pour une mesure à 250 mm du détecteur planaire. A noter également que les erreurs ne sont pas directement proportionnelles entre les deux détecteurs car les courbes de rendement ne sont pas homothétiques l'une de l'autre.

Après correction des rendements d'absorption totale mesurés, par les différents facteurs C_{coinc}, un modèle de type APOLOG est ajusté aux valeurs expérimentales à l'aide du logiciel MATLAB et d'une méthode des moindres carrés utilisant la matrice de variance des données expérimentales afin de tenir compte des corrélations entre les raies γ issues d'un même étalon multiphotonique (cf. section §3.2.3 du chapitre suivant). Les courbes suivantes sont alors obtenues pour les 2 détecteurs (**Fig. 52**) :

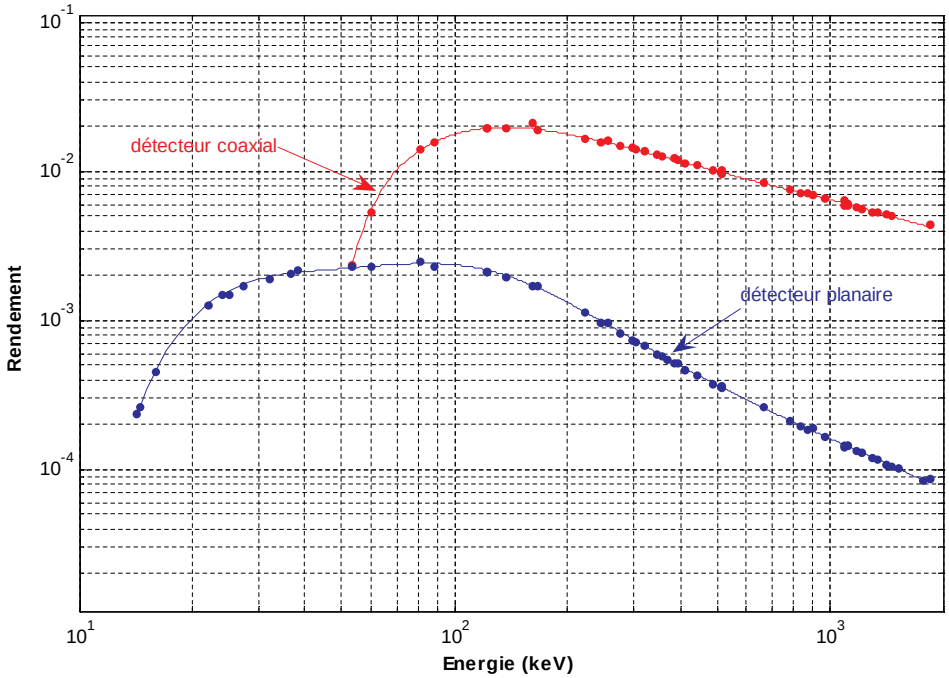

Fig. 52 : étalonnage en rendement d'absorption totale du détecteur coaxial et planaire

Pour les besoins des mesures qui seront évoquées dans les parties suivantes, l'ajustement de la courbe de rendement d'absorption totale pourra être réalisé par parties, en fonction des gammes d'énergie étudiées. Selon l'importance relative des différents modes d'interaction des photons avec le cristal de germanium, trois sortes de variation sont rencontrées :

- une évolution pratiquement linéaire en échelle log-log pour E > 200 keV
- une zone autour du maximum de la courbe où le rendement est proche d'une constante,
- une forte décroissance à basse énergie (E < 30 keV pour le détecteur planaire et E < 100 keV pour le détecteur coaxial).

L'ordre du modèle est choisi de telle sorte qu'il minimise la somme quadratique des résidus (ou *MSE* pour *Mean Square Error*) qui caractérise la qualité de l'ajustement du modèle aux points expérimentaux. Pour un ajustement sur toute la gamme d'énergie et en imposant E_c = 900 keV, on a :

Détecteur	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6	a_7	a_8	a_9	a_{10}	a_{11}	a_{12}
Coaxial	-2.158	-0.6113	-0.1233	-0.8881	0.1522	4.5871	5.880	2.451	-	-	-	-
Planaire	-3.739	-1.115	0.4780	-0.7711	-8.043	-11.98	36.06	138.5	183.9	121.8	40.56	5.433

Tab. 12 : coefficients d'ajustement du modèle APOLOG aux rendements mesurés

5 CORRECTIONS DE TRANSFERT DE RENDEMENT

5.1 Méthode de calcul du transfert de rendement

Le rendement d'absorption totale étant caractérisé pour une source ponctuelle et dans une configuration géométrique donnée, un facteur correctif doit maintenant être calculé pour tenir compte des effets de matrice et d'angle solide, pour la mesure d'échantillons volumiques. Pour cela, il s'agit de calculer un terme appelé « transfert de rendement », défini précédemment par :

$$T(E_o) = \iiint_V T(E_o, \vec{r}) d\tau(\vec{r})$$

En notant $\eta_{sp}(E_o)$ le rendement d'absorption totale d'une source de photons ponctuelle et $\eta_V(\vec{r}, E_o)$ celui d'une source de volume élémentaire $d^3\vec{r}$, le transfert de rendement s'écrit alors :

$$T(E_o) = \frac{1}{\eta_{sp}(E_o)} \iiint_V \eta_V(E_o, \vec{r}) d\tau(\vec{r}) \qquad \textbf{(33)}$$

Dans la plupart des cas qui seront envisagés par la suite, le terme intégral ne peut être évalué analytiquement et on a alors recours au calcul Monte-Carlo qui s'avère bien adapté à traiter ce type de cas **[62]**. Le code MCNP4C2 permet en effet d'estimer, pour des géométries de source complexes, le dépôt d'énergie dans le cristal du détecteur qui représente, au premier ordre, le nombre de porteurs de charge créés en son sein. Ce calcul comporte deux étapes :

- l'estimation de la distribution des sources de photons à l'intérieur de la matrice,
- l'estimation du dépôt d'énergie d'une source ponctuelle et d'une source volumique respectivement placées dans la configuration géométrique d'étalonnage et de mesure.

5.2 Calcul de la distribution spatiale des taux de réaction

Tout échantillon soumis à un flux de neutrons est confronté au phénomène d' autoprotection, dû essentiellement à l' absorption résonnante dans le domaine épithermique **[6]**. Il se traduit par des variations spatiales du spectre neutronique et par une distribution hétérogène des radionucléides créés suite à des réactions de capture ou de fission **[63][64]**. Par la suite, 2 géométries seront considérées :

- géométrie de type *combustible* : les sources de photons sont distribuées dans un cylindre de diamètre 8 mm et de hauteur égale à 100 mm (échantillon) ou 500 mm (crayon).
- géométrie de type *dosimètre* : les sources de photons sont distribuées dans un disque de diamètre 5 à 6 mm et d' épaisseur 0.1 mm.

Le cas enveloppe correspond à un crayon combustible irradié dans EOLE ou MINERVE pour lequel l' hétérogénéité spatiale des sources de photons est la plus marquée. En supposant le mode fondamental établi sur toute la colonne fissile, les contributions spatiales peuvent être séparées selon :

$$\Re(r,\theta,z) = \Re_o \Lambda(r,\theta)\Omega(z)$$

où $\Re(r,\theta,z)$ désigne le taux de réaction dans le volume élémentaire situé au point (r,θ,z), $\Re_o$ une constante, $\Lambda(r,\theta)$ et $\Omega(z)$ des fonctions d' espace adimensionnelles.

Le terme intégral qui intervient dans l' expression **(33)** peut être estimé en discrétisant en M tranches et N couronnes le cylindre de hauteur H et de rayon R qui représente la colonne fissile. En remarquant que la mise en rotation du crayon revient à moyenner la fonction Λ selon θ et après quelques calculs élémentaires, le transfert de rendement peut être approché par :

$$T(E_o) = \frac{1}{\eta_{sp}(E_o)} \sum_{i=1}^{N} \sum_{j=1}^{M} \rho_i \varpi_j \eta_{i,j}(E_o) \qquad \textbf{(34)}$$

$\eta_{i,j}(E_o)$ est le rendement d' absorption totale pour une source de photons d' énergie E_o distribuée dans la portion d' espace d' indice (i,j).

ρ_i et ϖ_j représentent respectivement le rapport du taux de réaction dans la couronne d' indice i et dans la tranche d' indice j, au taux de réaction intégré sur toute la colonne fissile, soit :

$$\rho_i = \frac{\int_{R_i}^{R_{i+1}} \int_0^{2\pi} \int_0^{H} \Re(r,\theta,z)\, r\, dr\, d\theta\, dz}{\int_0^{R} \int_0^{2\pi} \int_0^{H} \Re(r,\theta,z)\, r\, dr\, d\theta\, dz} \qquad \omega_j = \frac{\int_0^{R} \int_0^{2\pi} \int_{H_j}^{H_{j+1}} \Re(r,\theta,z)\, r\, dr\, d\theta\, dz}{\int_0^{R} \int_0^{2\pi} \int_0^{H} \Re(r,\theta,z)\, r\, dr\, d\theta\, dz}$$

Ces deux coefficients de pondération peuvent être estimés par un calcul déterministe APOLLO2.5 décrivant la géométrie de l' expérience d' irradiation en réacteur. Le formulaire de calcul a été validé par rapport à un calcul Monte-Carlo décrivant la géométrie réelle 3 dimensions du réacteur et utilisant la même bibliothèque de données nucléaires de base **[39]**.

La finesse de la discrétisation spatiale est fonction de l' importance de l' autoabsorption γ de la matrice et du phénomène d' autoprotection neutronique. Si l' on dispose d' une connaissance a priori du profil continu de taux de réaction à l' intérieur de l' échantillon, il est possible d' estimer l' erreur de modélisation commise, en l' assimilant à une distribution discrète.

En première approximation et à partir de la théorie de la diffusion à deux groupes d'énergie, on peut estimer un profil radial réaliste du taux de fission à l'intérieur d'un crayon combustible UO_2 ou MOX, en remarquant que :

- le flux rapide, responsable des fissions à seuil est pratiquement plat car le libre parcours moyen est supérieur à la corde moyenne du crayon,
- le flux thermique est distribué selon la fonction de Bessel I_o.

En utilisant un développement en série de Taylor d'ordre 2 et en notant Ψ le coefficient qui caractérise l'amplitude des variations radiales de taux de fission, le profil $\Lambda(r)$ peut être approché par :

$$\Lambda(r) = 1 + \Psi \frac{r^2}{R^2}$$

Une discrétisation en couronnes isosurfaciques est alors bien adaptée à ce type de profil car elle permet de « suivre » la variation du taux de fission à gradient constant.

Au premier ordre, la distance moyenne parcourue à l'intérieur du combustible par un photon émis au point de coordonnées polaires (r,θ) s'écrit **[65]** :

$$l(r,\theta) = -r\cos\theta + R\sqrt{1-(\frac{r}{R}\sin\theta)^2}$$

En notant $\mu(E_o)$ le coefficient d'atténuation linéique et $\tilde{\Lambda}_i$ la valeur moyenne de la fonction $\Lambda(r)$ sur la couronne d'indice i, l'erreur de modélisation ε_r commise en assimilant le profil radial continu de taux de fission à un profil discret à N couronnes s'écrit :

$$\varepsilon_r(E_o) = \sum_{i=1}^{N} \int_0^{2\pi} \int_{R_i}^{R_{i+1}} \left(\tilde{\Lambda}_i - \Lambda(r)\right) e^{-\mu(E_o) l(r,\theta)} r dr d\theta \qquad \textbf{(35)}$$

En reprenant des calculs réalisés par le passé pour des combustibles UO_2 enrichi à 3% en uranium 235 et irradié dans le réseau R1-UO2 du réacteur MINERVE, on observe que $\Psi = 0.1$ **[39]**. Le tableau suivant donne quelques exemples d'erreurs relatives obtenues à partir de la relation **(35)** :

Nombre de couronnes	Energie de la raie γ			
	100 keV	300 keV	1000 keV	1500 keV
1	-2.9%	-1.0%	-0.11%	-0.07%
2	-0.92%	-0.26%	-0.03%	-0.02%
4	-0.25%	-0.05%	< -0.01%	< -0.01%
8	-0.06%	-0.02%	< -0.01%	< -0.01%
20	-0.01%	< -0.01%	< -0.01%	< -0.01%

Tab. 13 : erreurs sur $T(E_o)$ selon la discrétisation du profil continu de taux de fission

On observe que pour les mesures usuelles de taux de conversion et de recalage de taux de fission (E > 250 keV), une discrétisation à 4 couronnes pour la prise en compte de l'hétérogénéité radiale des produits de fission est suffisante pour limiter l'erreur systématique sur $T(E_o)$ à 0.1%. Par le passé, la discrétisation à 20 couronnes, qui était systématiquement réalisée pour estimer les corrections d'autoabsorption γ, n'était donc pas nécessaire.

A noter que ces remarques ne sont pas directement transposables à un autre taux de réaction ou isotope. Par exemple, la discrétisation en couronnes isosurfaciques n' est pas du tout optimale pour le profil de taux de capture sur l' uranium 238**[66]** (**Fig. 53**). Un autre type de maillage, par exemple en logarithme du rayon, s' avère alors plus adapté pour suivre sa variation. Plus généralement, on cherchera à adapter le maillage du profil de taux de réaction pour qu' il soit à gradient constant, afin d' optimiser la finesse de la discrétisation.

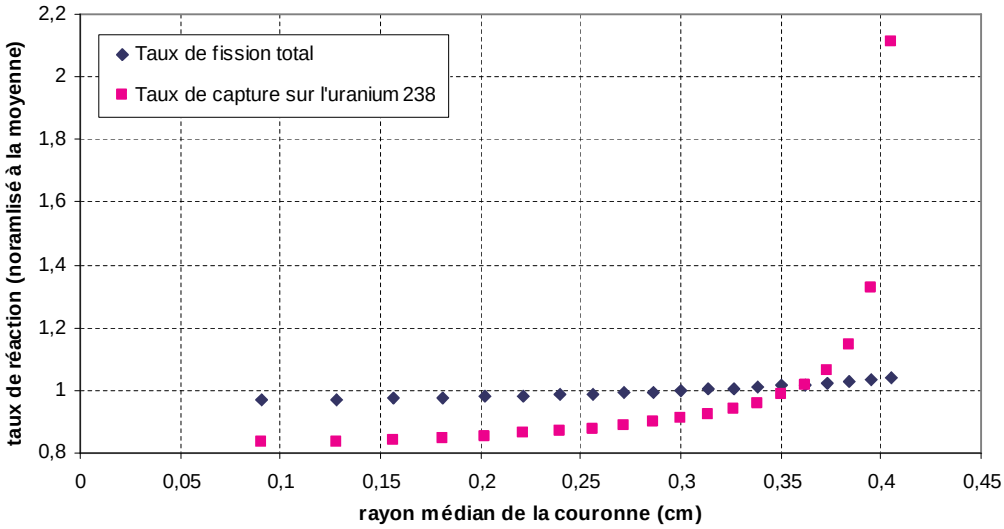

Fig. 53 : profil radial de taux de réaction à 20 couronnes, calculé par APOLLO2 et JEFF3.1, pour un combustible UO_2 à 3% irradié dans le réseau R1-UO2 de MINERVE

5.3 Calcul de transport photonique

Le calcul du transfert de rendement est réalisé à partir d' un schéma de calcul Monte-Carlo développé spécifiquement à partir de MCNP4C2 (cf. **Annexe C**). Il consiste en une description de la géométrie exacte de tous les éléments du banc de mesure susceptibles de contribuer au dépôt d' énergie dans le cristal du détecteur (**Fig. 54**).

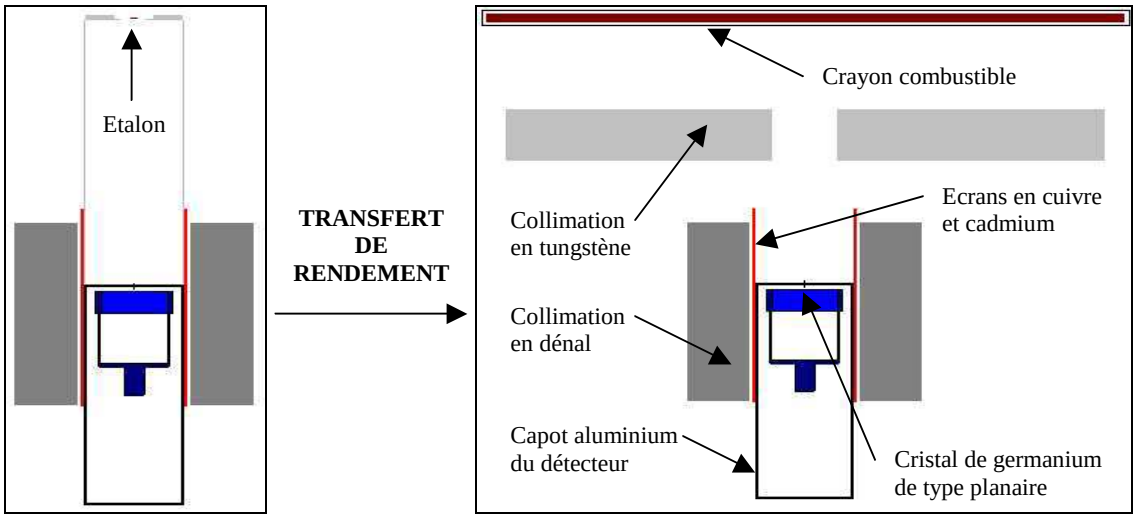

Fig. 54 : géométrie des schémas de calcul MCNP4C2 de transfert de rendement pour une source d' étalonnage (*à gauche*) et pour un crayon combustible collimaté (*à droite*)

Si l'on cherche à estimer le transfert de rendement d'absorption totale, certaines simplifications peuvent être réalisées en remarquant que tout photon qui dépose l'intégralité de son énergie initiale dans le cristal du détecteur ne peut avoir eu qu'un trajet rectiligne depuis son point d'émission. Il est alors possible de ne décrire que les éléments présents sur la trajectoire allant de la source au détecteur sans risque de biais sur le calcul. De même, on pourra privilégier un angle solide pour la direction d'émission de la source tel que tout photon qui serait émis hors de ce cône ait une probabilité nulle d'atteindre le détecteur sans perte d'énergie. Cette simplification permet de réduire d'un facteur 10 le nombre de particules, et donc le temps de calcul[23], pour une incertitude donnée.

En revanche, si l'on cherche à estimer le transfert de rendement total, par exemple pour extrapoler la courbe de pré-étalonnage pour les besoins du logiciel ETNA (**Fig. 51**), la description des principaux constituants du banc (notamment : table, supports, écrans) est fondamentale pour estimer au mieux les diffusions inélastiques des photons et leur contribution au spectre total enregistré par le détecteur. De plus, aucun biaisage de la direction d'émission de la source ne peut être imposé sans nuire à la généralité du problème, ce qui rend la convergence du schéma de calcul plus difficile.

Une fois la géométrie du banc établie, la source de photons est décrite. Elle est soit discoïdale, pour le schéma de calcul simulant l'étalonnage expérimental, soit cylindrique pour la mesure d'intérêt. Dans ce dernier cas, une distribution radiale en histogramme est réalisée en renseignant les coefficients de pondération ρ_i déterminés au préalable, afin de caractériser l'hétérogénéité spatiale des sources de photons.

Enfin, on associe à la sortie du calcul, un maillage énergétique à 2 groupes qui permet de distinguer les photons qui cèdent l'intégralité de leur énergie au détecteur (i.e. $R^P(E)$) de ceux qui n'en déposent qu'une partie (i.e $R^T(E) - R^P(E)$).

On peut alors vérifier l'aptitude de ce schéma de calcul à simuler le rendement d'absorption totale absolu à différentes énergies. On présente ci-dessous, l'exemple du détecteur planaire :

E (keV)	$R^P(E)$ ($\times 10^{-3}$)	$\eta_{sp}(E)$ ($\times 10^{-3}$)	$\frac{\eta_{sp}(E) - R^P(E)}{\eta_{sp}(E)}$
84.0	2.363	2.441	(3.0 ± 0.5)%
293.3	0.7730	0.7737	(0.09 ± 0.5)%
555.6	0.3269	0.3242	(-0.82 ± 0.5)%
1260.4	0.1279	0.1260	(-1.5 ± 0.5)%
1596.2	0.0992	0.0971	(2.1 ± 0.5)%
1836.0	0.0848	0.0833	(-1.9 ± 0.5)%

Tab. 14 : rendement d'absorption totale du détecteur planaire mesuré et calculé par MCNP4C2

Un écart calcul / expérience meilleur que 3% est obtenu sur la gamme [84 keV ; 1836 keV]. Cet accord est rendu possible par une bonne maîtrise de la géométrie du cristal fournie par le fabricant et par une distance source-détecteur suffisante (250 mm) pour limiter les erreurs de positionnement. Des ajustements seraient nécessaires pour réduire les erreurs obtenues sur les valeurs extrêmes en énergie (radiographie du cristal et/ou ajustement empirique des zones mortes **[67][68]**). Cependant ils n'auraient aucune influence sur le calcul du transfert de rendement puisque seul intervient le rapport des rendements, à la même énergie mais pour des géométries source différentes.

[23] 30 minutes de calcul sur un PC équipé d'un processeur à 2.8 GHz, permet de converger à mieux que 0.2% sur le calcul de dépôt d'énergie.

Pour les corrections de coïncidences vraies, les courbes de rendement mesurées peuvent être extrapolées hors du domaine couvert par les étalons à partir de ce schéma de calcul, une qualification à 5% près étant suffisante. En effet, ces courbes ne servent qu'à établir un facteur correctif et les erreurs commises sur leur évaluation interviennent au second ordre sur le résultat final.

Le tableau suivant fournit quelques exemples de transferts de rendement calculés pour un échantillon de hauteur 100 mm, placé à une distance de 200 mm de la fenêtre d'entrée du détecteur :

E (keV)	$T(E)$
277.60	0.396
555.57	0.852
749.8	0.987
954.55	1.063
1260.41	1.134
1596.2	1.167

Tab. 15 : transferts de rendement d'absorption totale pour un échantillon de combustible UO_2

L'augmentation du facteur $T(E)$ avec l'énergie traduit la diminution de l'autoabsorption γ dans le combustible. Cet effet, en compétition avec la probabilité d'absorption totale des photons dans le détecteur, contribue à limiter les variations de la courbe de rendement d'absorption totale.

Au final, la connaissance de $R^P(E_o)$ et de $T(E_o)$ permet de remonter au flux photonique dans tout l'espace de la raie γ étudiée et, par l'intermédiaire de la probabilité d'émission γ, à l'activité à saturation du radionucléide étudié. La dernière étape consiste à estimer le rendement de fission qui établit le lien entre le taux de production du radionucléide et le taux de fission total.

6 RENDEMENT EFFECTIF DE FISSION

6.1 Méthode d'évaluation du rendement de fission

Le rendement de fission d'un radionucléide X correspond à sa probabilité d'apparition par fission. Il doit tenir compte des différents isotopes fissiles qui contribuent à sa formation ainsi que de la dépendance à l'énergie des neutrons incidents. On introduit donc le rendement « effectif », noté $\overline{Y}$, qui correspond à la moyenne pondérée des rendements associés aux n isotopes fissionnables[24] :

$$\overline{Y} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \int_E \int_V n_i \sigma_{f,i}(E) \phi(\vec{r},E) Y_i(E) \frac{dE}{E} dV}{\sum_{i=1}^{n} \int_E \int_V n_i \sigma_{f,i}(E) \phi(\vec{r},E) \frac{dE}{E} dV} \qquad \textbf{(36)}$$

où n_i est la concentration de l'isotope fissionnable i, $\sigma_i(E)$ sa section efficace de fission à l'énergie E et $Y_i(E)$ le rendement de fission du radionucléide X, provenant de la fission de l'isotope i.

[24] On désigne par « fissionnable » toute matière qui peut être fissionnée quand elle est bombardée par des neutrons à la différence de « fissile » qu'on réserve aux isotopes n'étant fissionnés que par des neutrons thermiques (l'uranium 238 est fissionable mais non fissile).

La mesure de la dépendance énergétique des rendements de fission étant particulièrement délicate, on ne dispose à l'heure actuelle que d'évaluations tabulées pour 3 groupes d'énergie de neutrons. Elles sont obtenues par compilation de différents modèles théoriques, ajustés à des données expérimentales mesurées dans des spectres divers (colonnes thermiques, réacteurs à neutrons rapides, spectres de fission, sources de spallation, générateurs de neutrons), puis corrigées pour correspondre à une énergie moyenne des neutrons **[69]**. Cette énergie diffère selon la bibliothèque choisie :

Groupe d'énergie	JEF2.2	ENDF/B-VI.8	JENDL3.3	JEFF3.1
thermal	25.3 meV	65 meV	25.3 meV	25.3 meV
fast	400 keV	500 keV	1 MeV	400 keV
high	14 MeV	14 MeV	14 MeV	14 MeV

Tab. 16 : conventions pour les évaluations par groupe d'énergie des rendements de fission

Les spectres habituellement rencontrés dans les réacteurs EOLE et MINERVE n'étant ni purement thermiques, ni purement rapides, il est nécessaire de réaliser une combinaison ad-hoc des données nucléaires disponibles pour les adapter au type de spectre neutronique rencontré. Ce point est toujours l'objet de discussions par les évaluateurs de données nucléaires **[70]**.

Par le passé, une interpolation des rendements de fission de type « linéaire-linéaire », entre les 3 énergies moyennes données ci-dessus, était recommandée **[71]**. Sur la base d'un maillage à N groupes d'énergie, (généralement $N = 4$ **[72]**) le rendement effectif de fission était alors estimé par :

$$\overline{Y} = \sum_{i=1}^{n} \sum_{g=1}^{N} \tau_{i,g} \widetilde{Y}_{i,g} \qquad \textbf{(37)}$$

où $\widetilde{Y}_{i,g}$ est le rendement de fission associé à l'isotope i et extrapolé au groupe d'énergie d'indice g, $\tau_{i,g}$ représente la probabilité qu'une fission provienne de l'isotope i et pour des neutrons du groupe g.

A l'heure actuelle, on préfère à cette interpolation, une approche en histogramme à 3 groupes d'énergie. La définition de leurs limites respectives est également l'objet de discussions mais pour des raisons historiques **[73]**, on recommande d'utiliser une coupure *thermal* / *fast* à 9.1 keV et une coupure *fast* / *high* à 10 MeV. Le rendement effectif de fission est alors estimé par :

$$\overline{Y} = \sum_{i=1}^{n} \left(\tau_{i,th} Y_{i,th} + \tau_{i,f} Y_{i,f} + \tau_{i,h} Y_{i,h} \right) \qquad \textbf{(38)}$$

Le choix de l'une ou l'autre de ces deux méthodes n'a que peu d'influence pour des spectres bien thermalisés, tels que ceux qui seront envisagés dans les parties suivantes. En effet, la majorité des fissions créés dans des combustibles UO_2 et MOX provient de la fission de l'uranium 235 et du plutonium 239, et la contribution des neutrons d'énergie supérieure à 1 keV au taux de fission total est faible. La seconde méthode sera donc appliquée puisqu'à ce jour elle fait état de référence **[70]**.

En revanche, pour de nouveaux concepts de réacteurs tels que les RSM (Réacteurs Sous-Modérés) ou les VHTR (*Very High Temperature Reactor*), on dispose de très peu de données expérimentales relatives à des spectres à plus forte composante épithermique et où le choix de la méthode de calcul du rendement effectif de fission être plus sensible. Ce point sera discuté plus en détails dans le chapitre 2 de la partie V.

6.2 Calcul des probabilités de fission par isotope fissionnable

Pour les études de combustibles irradiés dans les réacteurs EOLE ou MINERVE, le code APOLLO2.5 est bien adapté pour obtenir les taux de fission par isotope et par groupe d'énergie. Le schéma de calcul est similaire à celui utilisé pour déterminer les profils spatiaux de taux de réaction et a également été validé par rapport à un calcul Monte-Carlo de référence **[65][74]**.

Néanmoins, il est possible que pour des problèmes plus complexes faisant intervenir des zones très hétérogènes du réacteur, l'approche déterministe à 2 dimensions montre ses limites. On a alors recours à un calcul probabiliste qui est souvent réalisé en deux étapes :

- en premier lieu, un calcul du spectre neutronique est réalisé dans la zone entourant le dispositif étudié, à partir du schéma de calcul décrivant la géométrie réelle du réacteur,
- en second lieu, le spectre neutronique calculé est transposé dans un schéma de calcul décrivant la géométrie réduite de la zone où le dispositif est irradié.

Cette approche à deux niveaux dimensionnels permet de faciliter la convergence statistique du problème tout en assurant une précision suffisante pour l'estimation du rendement effectif de fission. Elle sera employée dans le chapitre 2 de la partie V, pour des expériences d'irradiation de dosimètres dans un canal dédié du réacteur MINERVE.

7 CONCLUSION

Dans ce chapitre, une méthodologie de traitement des mesures de taux de réaction par la technique de spectrométrie γ de pic particulier a été proposée. Après avoir établi les équations d'évolution des radionucléides au cours des différentes phases de la mesure, la relation liant la surface nette d'un pic au taux de réaction neutronique a été établie et les méthodes d'évaluation des différents facteurs correctifs détaillées. Les principales innovations par rapport au passé **[43][45]** concernent :

- l'adaptation de la correction de temps mort en temps actif à la mesure des radionucléides à courte durée de vie, afin de tenir compte de la décroissance au cours de la mesure, de leur activité γ spécifique et de l'activité γ totale de l'échantillon. **L'influence sur le résultat de mesure est d'environ 2%** pour des comptages de durée t telle que $\lambda t \cong 1$, réalisées quelques heures après irradiation **[75]**,
- la mise en place du logiciel ETNA pour le calcul des corrections de coïncidences vraies. **L'influence sur le résultat de mesure peut atteindre 5%** dans les cas de géométries rapprochées (< 200 mm) impliquant des détecteurs de forte efficacité relative (> 15%).
- le développement de schémas de calcul de transfert de rendement optimisés, qui permettent désormais de corriger l'influence des effets d'angle solide sur l'autoabsorption γ. **L'influence de cette nouvelle approche sur le résultat de mesure peut atteindre 8%** pour les études dédiées au taux de conversion de l'uranium 238 (cf. partie IV, chapitre 1, section §4.2.).

Les méthodes de traitement des données brutes étant figées, il reste à associer au résultat de mesure une incertitude qui tienne compte des différents paramètres de sensibilité rencontrés. Ce point fait l'objet du chapitre suivant.

CHAPITRE 3 :
TRAITEMENT DES INCERTITUDES SUR LES MESURES RELATIVES DE TAUX DE REACTION

1 INTRODUCTION

Le chapitre précédent a permis d'introduire les principes de la technique de spectrométrie γ de pic particulier et les différentes étapes du traitement des données brutes de mesure qui permettent de remonter à un taux de réaction absolu. Cette méthodologie va maintenant être appliquée aux mesures relatives de taux de réaction réalisées au SPEx, à savoir :

- les mesures de **recalage de taux de fission** qui consistent à évaluer la quantité formée d'un même radionucléide entre plusieurs combustibles de nature différente issus d'une même expérience d'irradiation. Il s'agit de mesures *relatives* dans le sens où elles font intervenir le rapport de deux grandeurs physiques (i.e. deux taux de fission) équivalentes.
- les mesures **d'indice de capture** qui consistent à évaluer, pour un même combustible, la quantité formée de deux radionucléides, représentatifs de taux de capture et de taux de fission. Il s'agit de mesures *absolues* puisqu'elles font appel au rapport de deux grandeurs physiques différentes (i.e. taux de capture et taux de fission).

Dans ce chapitre, une méthodologie d'évaluation et de propagation des incertitudes sur ces deux types de mesure va être mise en place. Elle distinguera la composante « expérimentale » liée à la mesure (surface nette, temps mort et étalonnage en rendement) de la composante systématique qui concerne les données nucléaires de base utilisées (constantes de décroissance radioactive, probabilités d'émissions γ et rendements de fission) et les facteurs correctifs calculés. L'objectif est d'aboutir à un traitement des incertitudes logique et uniforme, facilement transposable à d'autres types de mesure.

2 INCERTITUDES SUR LES RECALAGES DE TAUX DE FISSION

2.1 Identification des paramètres de sensibilité

Les mesures de recalage de taux de fission, obtenues par spectrométrie γ de pic particulier, sont destinées à normaliser entre elles les distributions radiales de taux de fission obtenues par spectrométrie γ intégrale pour des combustibles de nature différente. Si l'on considère deux crayons, indicés 1 et 2, issus de deux lots différents[25], et en remarquant que certains termes qui interviennent dans l'expression **(22)** sont indépendants du combustible étudié, le facteur de recalage r_F s'écrit :

$$r_F = \frac{F_1}{F_2} = \left(\frac{N_1(E_o)t_{m_2}}{N_2(E_o)t_{m_1}}\right)\left(\frac{C_{\theta,1}}{C_{\theta,2}}\right)\left(\frac{C_{dec,1}}{C_{dec,2}}\right)\left(\frac{\eta_2(E_o)}{\eta_1(E_o)}\right)\left(\frac{Y_2}{Y_1}\right) \qquad \textbf{(39)}$$

[25] En terme de bilan matière, de géométrie et/ou de caractéristiques physiques.

Dans l' expression précédente, on s' affranchit des probabilités d' émission γ et du rendement d' absorption totale puisqu' ils ne dépendent que de l' énergie de la raie γ (identique entre le numérateur et le dénominateur). A noter que les corrections de coïncidences vraies n' étant fonction que de la distance source - détecteur, elles n' interviennent pas non plus dans l' expression du facteur r_F .

En notant respectivement r_N , r_θ , r_{dec} , r_η et r_Y les cinq rapports entre parenthèses, et en remarquant que leurs covariances mutuelles sont nulles, l' incertitude propagée est obtenue par :

$$\frac{u(r_F)}{r_F} = \sqrt{\left(\frac{u(r_N)}{r_N}\right)^2 + \left(\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_\eta)}{r_\eta}\right)^2 + \left(\frac{u(r_Y)}{r_Y}\right)^2} \qquad \textbf{(40)}$$

Les deux premiers termes ne dépendent que de la mesure et seront désignés par la suite sous l' appellation « incertitudes expérimentales ».

2.2 Estimation des incertitudes expérimentales

2.2.1 Incertitude due aux comptages

L' incertitude sur le rapport des taux de comptage r_N est directement liée aux incertitudes sur les surfaces nettes déterminées par le logiciel GENIE 2000 et s'écrit :

$$\frac{u(r_N)}{r_N} = \sqrt{\left(\frac{u(N_1)}{N_1}\right)^2 + \left(\frac{u(N_2)}{N_2}\right)^2 - 2\frac{u(N_1,N_2)}{N_1 N_2}} \qquad \textbf{(41)}$$

Le terme de covariance est nul dans le cas où l' on utilise l'algorithme de sommation puisque l' incertitude sur la surface nette est calculée à partir du contenu des canaux, dont le comptage entre les deux crayons combustibles étudiés est indépendant.

Dans le cas où l' on utilise l' algorithme d' ajustement, ce terme peut être considéré comme nul, en particulier si l' on impose les paramètres de forme qui auront au préalable été étalonnés. L' incertitude dépend alors d' un terme lié au caractère aléatoire de la désintégration radioactive et d' un terme systématique lié à la modélisation du spectre par une gaussienne avec paramètre d' asymétrie :

$$u^2(N) = u^2_{aleatoire}(N) + u^2_{systematique}(N)$$

Etant donné que N_i et N_j sont les comptages d' un même pic, obtenus à partir de crayons combustibles issus d' une même expérience d' irradiation, on peut considérer que l' allure du spectre est la même et que l' incertitude de modélisation est identique. Le terme de covariance peut alors s' écrire :

$$\frac{u(N_1,N_2)}{N_1 N_2} \cong \frac{u^2_{systematique}(N_1)}{N_1^2}$$

Enfin, l' incertitude sur le rapport des surfaces nettes peut être estimée par :

$$\frac{u(r_N)}{r_N} \cong \sqrt{\left(\frac{u_{aleatoire}(N_1)}{N_1}\right)^2 + \left(\frac{u_{aleatoire}(N_2)}{N_2}\right)^2}$$

L' utilisation de l' algorithme d' ajustement avec paramètres de forme fixes conduit donc, en théorie, à une incertitude plus faible que la somme quadratique des incertitudes dans GENIE 2000. En pratique, il n' est pas évident de connaître la part de la composante aléatoire dans l' incertitude totale. Si pour les cas spécifiques de pics superposés à des fonds continus élevés (H_f / H_p > 4), la composante de modélisation peut devenir plus importante que la composante aléatoire, dans la pratique, pour les cas usuels de pics bien définis, on pourra se contenter d' un terme de covariance nul qui conduit à une légère sur-estimation de l' incertitude sur le rapport r_N .

2.2.2 Incertitude due au temps mort

L' incertitude sur le rapport des corrections de temps mort ne peut être estimée par une somme quadratique simple du fait de la forte corrélation qu' il existe entre deux mesures réalisées sur la même électronique. En effet, l' existence d' un biais sur la réponse quantitative du système se trouve réduite par le fait que seul le rapport des activités mesurées intervient dans l' expression du facteur de recalage. Pour les gammes de taux de comptage habituellement rencontrées au SPEx (< 10^5 s^{-1}), ce biais peut être considéré comme linéaire en fonction du temps mort. L' étude menée au chapitre 1 a permis de montrer que cette erreur ε est majorée par 0.5% jusqu' à θ_{max} = 65%. En désignant par θ_1 et θ_2 les temps morts pour les deux crayons indicés 1 et 2, l' incertitude sur le rapport r_θ est estimée par :

$$\frac{u(r_\theta)}{r_\theta} \equiv \frac{\theta_2 - \theta_1}{\theta_{\max}} \varepsilon \qquad \textbf{(42)}$$

Les durées caractéristiques de la mesure étant du même ordre de grandeur pour les deux crayons combustibles, l' incertitude propagée des périodes radioactives sur la post-correction ξ (cf. relation **(27)**) et a fortiori sur le rapport r_θ est négligeable.

2.3 Estimation des incertitudes liées aux calculs et aux données nucléaires de base

2.3.1 Incertitude due aux corrections de décroissance radioactive

En utilisant les expressions **(19)** et **(20)** données au chapitre précédent, dans le cas simplifié où on néglige le terme de fission directe, le rapport des corrections de décroissance s' écrit :

- cas d' une filiation d' ordre 1 :

$$r_{dec} = \frac{t_{m,1}}{t_{m,2}} \frac{(1 - e^{-\lambda_X t_{m,2}})}{(1 - e^{-\lambda_X t_{m,1}})} e^{-\lambda_X (t_{o,2} - t_{o,1})} \qquad \textbf{(43)}$$

- cas d' une filiation d' ordre 2 :

$$r_{dec} = \frac{t_{m,1}}{t_{m,2}} \frac{\frac{\lambda_X}{\lambda_W} e^{-\lambda_W t_{o,2}} (1 - e^{-\lambda_W t_{i,2}})(1 - e^{-\lambda_W t_{m,2}}) - \frac{\lambda_W}{\lambda_X} e^{-\lambda_X t_{o,2}} (1 - e^{-\lambda_X t_{i,2}})(1 - e^{-\lambda_X t_{m,2}})}{\frac{\lambda_X}{\lambda_W} e^{-\lambda_W t_{o,1}} (1 - e^{-\lambda_W t_{i,1}})(1 - e^{-\lambda_W t_{m,1}}) - \frac{\lambda_W}{\lambda_X} e^{-\lambda_X t_{o,1}} (1 - e^{-\lambda_X t_{i,1}})(1 - e^{-\lambda_X t_{m,1}})} \qquad \textbf{(44)}$$

On constate qu' on élimine totalement la dépendance à la durée d' irradiation pour des filiations d' ordre 1. Pour des mesures de même durée réelle, le rapport r_{dec} se réduit alors au seul terme qui caractérise la différence de décroissance entre la mesure du crayon 1 et du crayon 2. Ce type d' évolution étant un cas particulier de filiation d' ordre 2, les mêmes remarques peuvent être formulées quant à la seconde expression. Les durées t_m et t_o étant parfaitement maîtrisées, l' incertitude sur r_{dec} ne dépend que des données nucléaires de base utilisées. Par application de la relation **(4)**, on a alors :

- cas d' une filiation d' ordre 1 :

$$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}} = \left| \frac{\lambda_X t_{m,2}}{e^{\lambda_X t_{m,2}} - 1} - \frac{\lambda_X t_{m,1}}{e^{\lambda_X t_{m,1}} - 1} + \lambda_X (t_{o,1} - t_{o,2}) \right| \frac{u(\lambda_X)}{\lambda_X} \qquad \textbf{(45)}$$

- cas d' une filiation d' ordre 2 :

$$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}} = \left[\begin{array}{c} \left(\frac{C_{dec,2} K_{X,2}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,2}} - \frac{C_{dec,1} K_{X,1}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,1}} \right)^2 \left(\frac{u(\lambda_X)}{\lambda_X} \right)^2 + \left(\frac{C_{dec,2} K_{W,2}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,2}} - \frac{C_{dec,1} K_{W,1}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,1}} \right)^2 \left(\frac{u(\lambda_W)}{\lambda_W} \right)^2 \\ + \\ + 2 \left(\frac{C_{dec,2} K_{X,2}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,2}} - \frac{C_{dec,1} K_{X,1}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,1}} \right) \left(\frac{C_{dec,2} K_{W,2}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,2}} - \frac{C_{dec,1} K_{W,1}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,1}} \right) \left(\frac{u(\lambda_X, \lambda_W)}{\lambda_X \lambda_W} \right) \end{array} \right]^{1/2} \qquad \textbf{(46)}$$

avec :

$$K_X = \frac{\lambda_X}{\lambda_W} e^{-\lambda_W t_o} (1 - e^{-\lambda_W t_i})(1 - e^{-\lambda_W t_m}) + \frac{\lambda_W}{\lambda_X} e^{-\lambda_X t_o} \left[(1 + \lambda_X t_o)(1 - e^{-\lambda_X t_i})(1 - e^{-\lambda_X t_m}) - \lambda_X t_i e^{-\lambda_X t_i} (1 - e^{-\lambda_X t_m}) - \lambda_X t_r e^{-\lambda_X t_r} (1 - e^{-\lambda_X t_i}) \right]$$

K_W est déduit de K_X par permutation circulaire des indices 'W' et 'X' .

En l' absence de données disponibles, on impose une corrélation totale entre λ_X et λ_W, d' où :

$$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}} \leq \left| \left(\frac{C_{dec,2} K_{X,2}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,2}} - \frac{C_{dec,1} K_{X,1}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,1}} \right) \frac{u(\lambda_X)}{\lambda_X} + \left(\frac{C_{dec,2} K_{W,2}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,2}} - \frac{C_{dec,1} K_{W,1}}{(\lambda_X - \lambda_W) t_{m,1}} \right) \frac{u(\lambda_W)}{\lambda_W} \right| \qquad \textbf{(47)}$$

2.3.2 Incertitude due aux corrections de transfert de rendement

Le terme r_η est calculé à partir du rapport des résultats de calcul MCNP4C2 de dépôt d' énergie, obtenus pour les deux combustibles 1 et 2. On distingue deux sources d' incertitudes :

- la convergence statistique du calcul Monte-Carlo,
- la connaissance de la géométrie (diamètre) et de la composition (densité) du combustible.

La première source d' incertitude est calculée par une somme quadratique qui fait l' hypothèse d' indépendance des deux schémas de calcul, justifiée par la différence de distribution géométrique de la source de photons ainsi que par la différence de la nature physique des deux combustibles.

La seconde source d' incertitude peut être estimée par une option du code MCNP4C2 qui permet de perturber l' une des caractéristiques physiques du problème (densité, composition) afin d' estimer la variation induite sur le résultat final. Dans le cas présent, la densité et le diamètre des pastilles combustibles sont les deux principaux paramètres d' influence sur le transfert de rendement.

Elles peuvent être groupées en un seul et même paramètre d' influence en remarquant qu' au premier ordre, l' incertitude sur le diamètre peut être assimilée àune incertitude sur le volume et donc sur la densité. En cumulant ces deux paramètres dans une incertitude globale, notée $u(\mu)$, l' incertitude sur le rapport r_η s' écrit alors :

$$\frac{u(r_\eta)}{r_\eta}=\sqrt{\left(\frac{u(\eta_1(E_o))}{\eta_1(E_o)}\right)^2_{stat}+\left(\frac{u(\eta_2(E_o))}{\eta_2(E_o)}\right)^2_{stat}+\left(\frac{1}{\eta_1(E_o)}\frac{\partial\eta_1(E_o)}{\partial\mu_1}\right)^2u^2(\mu_1)+\left(\frac{1}{\eta_2(E_o)}\frac{\partial\eta_2(E_o)}{\partial\mu_2}\right)^2u^2(\mu_2)} \qquad \textbf{(48)}$$

2.3.3 Incertitude due aux rendements de fission

Par le passé **[43]**, le rapport des rendements de fission constituait la principale source d' incertitude sur la mesure de recalage de taux de fission. En effet, une indépendance totale des termes présents au numérateur et au dénominateur était considérée. Cette simplification n' est pas acceptable car ces termes font intervenir des données nucléaires communes et sont donc fortement corrélés. Une propagation plus rigoureuse conduit à :

$$\frac{u(r_Y)}{r_Y}=\left[\begin{array}{c}\displaystyle\sum_{i=1}^{n}\sum_{g=1}^{N}\left(\frac{Y_{i,g}-\overline{Y}_1}{\overline{Y}_1}\tau_{i,g,1}\right)^2\left(\left(\frac{u(n_{i,1})}{n_{i,1}}\right)^2+\left(\frac{u(F_{i,g,1})}{F_{i,g,1}}\right)^2_{stat}\right)+\\ \displaystyle\sum_{i=1}^{n}\sum_{g=1}^{N}\left(\frac{Y_{i,g}-\overline{Y}_2}{\overline{Y}_2}\tau_{i,g,2}\right)^2\left(\left(\frac{u(n_{i,2})}{n_{i,2}}\right)^2+\left(\frac{u(F_{i,g,2})}{F_{i,g,2}}\right)^2_{stat}\right)+\\ \displaystyle\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n}\sum_{g=1}^{N}\sum_{h=1}^{N}\left(\frac{\overline{Y}_2\tau_{i,g,1}-\overline{Y}_1\tau_{i,g,2}}{\overline{Y}_1\overline{Y}_2}\right)\left(\frac{\overline{Y}_2\tau_{j,h,1}-\overline{Y}_1\tau_{j,h,2}}{\overline{Y}_1\overline{Y}_2}\right)\left(\frac{u(Y_{i,g},Y_{j,h})}{Y_{i,g}Y_{j,h}}\right)\end{array}\right]^{1/2} \qquad \textbf{(49)}$$

n désigne le nombre d' isotopes fissiles et *N* le nombre de groupes d' énergie (en pratique *N* = 3).

$Y_{i,g}$ est le rendement de fission associé à l' isotope fissionnable *i*, pour le groupe d' énergie *g*.

$\overline{Y}$ est le rendement effectif de fission.

$F_{i,g}$ est le taux de fission, calculé pour l' isotope fissionnable *i* et pour le groupe d' énergie *g*.

$\tau_{i,g}$ est la probabilité de fission, calculée pour l' isotope fissionnable *i* et pour le groupe d' énergie *g*.

On dispose à ce jour de peu d' informations sur les corrélationsentre rendements de fission. Une approche enveloppe consiste donc à imposer une corrélation totale :

$$\frac{u(r_Y)}{r_Y}\le\left[\begin{array}{c}\displaystyle\sum_{i=1}^{n}\sum_{g=1}^{N}\left(\frac{Y_{i,g}-\overline{Y}_1}{\overline{Y}_1}\tau_{i,g,1}\right)^2\left(\left(\frac{u(n_{i,1})}{n_{i,1}}\right)^2+\left(\frac{u(F_{i,g,1})}{F_{i,g,1}}\right)^2_{stat}\right)+\\ \displaystyle\sum_{i=1}^{n}\sum_{g=1}^{N}\left(\frac{Y_{i,g}-\overline{Y}_2}{\overline{Y}_2}\tau_{i,g,2}\right)^2\left(\left(\frac{u(n_{i,2})}{n_{i,2}}\right)^2+\left(\frac{u(F_{i,g,2})}{F_{i,g,2}}\right)^2_{stat}\right)+\\ \left(\displaystyle\sum_{i=1}^{n}\sum_{g=1}^{N}\left(\frac{\overline{Y}_2\tau_{i,g,1}-\overline{Y}_1\tau_{i,g,2}}{\overline{Y}_1\overline{Y}_2}\right)\left(\frac{u(Y_{i,g})}{Y_{i,g}}\right)\right)^2\end{array}\right]^{1/2} \qquad \textbf{(50)}$$

2.4 Combinaison de plusieurs résultats de mesure

Les équations générales de propagation des incertitudes ayant été présentées, on dispose désormais d'une méthode figée d'évaluation des incertitudes de mesure. Cependant, en pratique, on ne se limite pas à un seul comptage par crayon et il faut savoir combiner judicieusement différents résultats de mesure pour obtenir une estimation mieux maîtrisée du facteur de recalage et d'incertitude réduite. Le traitement statistique des données comporte trois étapes :

- la combinaison de plusieurs comptages d'une même raie γ,
- la combinaison des comptages de plusieurs raies γ issues d'un même produit de fission,
- la combinaison des comptages obtenus à partir de plusieurs produits de fission.

2.4.1 Comptages multiples d'une même raie γ

Les mesures de recalage de taux de fission consistent en des campagnes de m mesurages alternés de chaque crayon combustible (m = 3 à 6 en général). Plusieurs méthodes peuvent alors être mises en œuvre pour combiner les différents résultats de mesure :

- réaliser la moyenne des m taux de fission par crayon puis estimer le facteur de recalage comme le rapport de ces moyennes,
- réaliser la moyenne des m facteurs de recalage de taux de fission r_F obtenus en considérant le rapport des comptages deux à deux.

Cette seconde méthode est plus logique et facilite nettement le traitement des incertitudes. En effet, pour chacun des m facteurs de recalage obtenus, la durée qui sépare les comptages deux à deux de chaque crayon est pratiquement constante et par conséquent :

- l'incertitude sur le rapport r_{dec} est indépendante du couple de comptages considérés,
- l'incertitude sur le rapport r_θ est constante car, en première approximation, la décroissance de l'activité totale entre deux crayons issus d'une même expérience d'irradiation est similaire.

On combine alors les différents résultats de mesure à l'aide d'une moyenne pondérée où les coefficients w_i doivent ne tenir compte que des paramètres indépendants (ici le comptage), soit :

$$\overline{r_F} = \frac{\sum_{i=1}^{m} w_i r_{F,i}}{\sum_{i=1}^{m} w_i} \text{ avec } w_i = \frac{1}{\left(\frac{u(r_{N,i})}{r_{N,i}}\right)^2} \qquad \textbf{(51)}$$

L'incertitude associée est obtenue en calculant la variance interne de la moyenne à partir des pondérations w_i (composante non corrélée) et en ajoutant la variance liée à tous les paramètres qui interviennent de façon systématique sur les différentes mesures (composante corrélée) :

$$\frac{u(\overline{r_F})}{\overline{r_F}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{m} w_i} + \left(\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_\eta)}{r_\eta}\right)^2 + \left(\frac{u(r_Y)}{r_Y}\right)^2} \qquad \textbf{(52)}$$

2.4.2 Comptages de plusieurs raies γ d'un même produit de fission

Dans le cas où l'on dispose, sur un même spectre, de p raies γ issues d'un même radionucléide, on peut combiner les résultats de mesure associés à chacune. La pondération doit alors tenir compte des deux paramètres indépendants, à savoir $u(r_N)$ (elle-même déduite de la combinaison de m mesures) et la composante $u(r_\eta)$ liée à la convergence des calculs Monte-Carlo, notée $u(r_\eta\big|_{MC})$:

$$\overline{r_F} = \frac{\sum_{j=1}^{p} \upsilon_j r_{F,j}}{\sum_{j=1}^{p} \upsilon_j} \text{ avec } \upsilon_j = \frac{1}{\left(\frac{u(r_{N,j})}{r_{N,j}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{\eta,j}\big|_{MC})}{r_{\eta,j}\big|_{MC}}\right)^2} \quad \textbf{(53)}$$

L'incertitude associée à la moyenne des facteurs de recalage est obtenue de la même façon qu'au paragraphe précédent, en séparant les contributions corrélées et non corrélées selon:

$$\frac{u(\overline{r_F})}{\overline{r_F}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{j=1}^{p} \upsilon_j} + \left(\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{\overline{u(r_\eta\big|_\mu)}}{r_\eta\big|_\mu}\right)^2 + \left(\frac{u(r_Y)}{r_Y}\right)^2} \text{ où } \frac{\overline{u(r_\eta\big|_\mu)}}{r_\eta\big|_\mu} = \frac{\sum_{j=1}^{p} \upsilon_j \frac{u(r_{\eta,j}\big|_\mu)}{r_{\eta,j}\big|_\mu}}{\sum_{j=1}^{p} \upsilon_j} \quad \textbf{(54)}$$

2.4.3 Comptages de plusieurs produits de fission

Enfin, lorsque le facteur de recalage est estimé à partir de q produits de fission, en faisant l'hypothèse d'indépendance des périodes radioactives et des rendements de fission (uniquement pour des produits de fission de nombres de masse différents), les résultats se combinent par :

$$\overline{r_F} = \frac{\sum_{k=1}^{q} \varsigma_k r_{F,k}}{\sum_{j=1}^{q} \varsigma_k} \text{ avec } \varsigma_k = \frac{1}{\left(\frac{u(r_{N,k})}{r_{N,k}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{\eta,k}\big|_{MC})}{r_{\eta,k}\big|_{MC}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_Y)}{r_Y}\right)^2} \quad \textbf{(55)}$$

Sous les même hypothèses, l'incertitude de la moyenne est estimée par :

$$\frac{u(\overline{r_F})}{\overline{r_F}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{k=1}^{q} \varsigma_k} + \left(\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}\right)^2 + \left(\frac{\overline{u(r_\eta\big|_\mu)}}{r_\eta\big|_\mu}\right)^2} \text{ où } \frac{\overline{u(r_\eta\big|_\mu)}}{r_\eta\big|_\mu} = \frac{\sum_{k=1}^{q} \varsigma_k \frac{u(r_{\eta,k}\big|_\mu)}{r_{\eta,k}\big|_\mu}}{\sum_{k=1}^{q} \varsigma_k} \quad \textbf{(56)}$$

Dans chacune des trois étapes de combinaison des incertitudes ci-dessus, on peut vérifier la cohérence de la composante non corrélée de l'incertitude interne la moyenne, en la comparant à l'incertitude externe calculée d'après la relation **(8)** et en utilisant un test bilatéral du χ^2.

3 INCERTITUDES SUR LES INDICES DE CAPTURE

3.1 Identification des paramètres de sensibilité

Les mesures d'indices de capture, dont le taux de conversion de l'uranium 238 est le seul cas particulier étudié par le passé, s'appuient sur la spectrométrie γ de pic particulier pour analyser les deux radionucléides caractéristiques à partir du même spectre. En notant respectivement *C* et *F* les taux de capture et de fission et en indiçant *c* et *f* les grandeurs relatives à ces deux termes, le rapport des taux de réaction, noté r_C et appelé « indice de capture », s'exprime à partir de la relation **(22)** par :

$$r_C = \frac{C}{F} = \left(\frac{N(E_c)}{N(E_f)}\right)\left(\frac{C_{\theta,c}}{C_{\theta,f}}\right)\left(\frac{C_{dec,c}}{C_{dec,f}}\right)\left(\frac{C_{coinc,c}}{C_{coinc,f}}\right)\left(\frac{R^P(E_f)}{R^P(E_c)}\right)\left(\frac{T(E_f)}{T(E_c)}\right)\left(\frac{I(E_f)}{I(E_c)}\right)Y \qquad \textbf{(57)}$$

On observe alors qu'à la différence des mesures de recalage de taux de fission, seule la durée de comptage intervient identiquement entre les deux mesures de taux réaction. L'incertitude finale est donc nécessairement plus élevée car elle tient compte de tous les paramètres intervenant dans l'expression du taux de réaction absolu.

En notant respectivement r_N, r_θ, r_{dec}, r_{coinc}, r_{R^P}, r_T et r_I les sept rapports entre parenthèses et en remarquant que leurs covariances mutuelles sont nulles, l'incertitude propagée est obtenue par :

$$\frac{u(r_C)}{r_C} = \sqrt{\left(\frac{u(r_N)}{r_N}\right)^2 + \left(\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{coinc})}{r_{coinc}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_T)}{r_T}\right)^2 + \left(\frac{u(r_I)}{r_I}\right)^2 + \left(\frac{u(Y)}{Y}\right)^2} \qquad \textbf{(58)}$$

Dans l'étude qui va suivre, les trois premiers termes seront regroupés sous l'appellation « incertitudes expérimentales ».

3.2 Estimation des incertitudes expérimentales

3.2.1 Incertitude due aux comptages

L'incertitude sur le rapport des taux de comptage r_N est estimée de la même manière que pour le recalage de taux de fission, à savoir :

$$\frac{u(r_N)}{r_N} = \sqrt{\left(\frac{u(N(E_c))}{N(E_c)}\right)^2 + \left(\frac{u(N(E_f))}{N(E_f)}\right)^2 - 2\frac{u(N(E_c),N(E_f))}{N(E_c)N(E_f)}} \qquad \textbf{(59)}$$

En revanche, la corrélation obtenue lors de l'utilisation de l'algorithme d'ajustement est moins évidente que précédemment puisque les deux pics sont obtenus à des énergies différentes. Les dépendances mutuelles entre paramètres de forme sont alors plus faibles ce qui justifie l'approximation suivante :

$$u(N(E_c),N(E_f)) \cong 0$$

3.2.2 Incertitude due au temps mort

Les mesures d' indice de capture étant réalisées à partir du même spectre, le temps mort associé aux comptages des 2 radionucléides est identique et en première approximation[26], on a $r_\theta \cong 1$. Il est cependant possible qu' une dépendance de la réponse de l' électronique à l' énergie de la raie γ intervienne. Le chapitre 1 de cette partie a permis de vérifier expérimentalement que la réponse quantitative du DSP était indépendante de la raie γ étudiée, conformément aux caractéristiques de son codeur à poids. Par la suite, on pourra donc négliger cette source d' incertitude sur la mesure.

3.2.3 Incertitude due aux rendements d' absorption totale

Par le passé **[39]**, le rapport des rendements d' absorption totale constituait la principale source d' incertitude expérimentale sur les mesures d' indice de capture. En l' absence d' outil informatique adapté, il n' était pas évident d' établir la corrélation existante entre deux points issus d' une même courbe d' étalonnage. L' incertitude sur le rendement d' absorption total était alors estimée d' après l' écart moyen à la courbe des points d' étalonnage encadrant l' énergie étudiée. Cette approche conduisait à des incertitudes sur le rapport r_{R^P} de l' ordre de 2 à 3%. Or, en ne considérant que le rapport des rendements d' absorption totale, on s' affranchit de l' incertitude sur le positionnement du crayon combustible. Par ailleurs, pour les études de taux de conversion de l' uranium 238, les énergies des radionucléides caractéristiques sont proches : 277.6 keV pour le neptunium 239 et 293.3 keV pour le cérium 143. Aussi, l' incertitude sur le rapport r_{R^P} est-elle censée être plus faible que pour des énergies situées aux extrémités de la courbe d' étalonnage. Enfin, en toute rigueur, il faudrait pouvoir distinguer les rendements mesurés à partir des raies γ issues d' une même source multiphotonique qui sont fortement corrélés, des étalons monoénergétiques qui sont pratiquement indépendants.

Il existe donc un réel besoin pour le traitement de l' incertitude sur ce rapport. Pour y répondre, l' acquisition du logiciel MATLAB, qui dispose d' algorithmes statistiques puissants pour le calcul des variances, constitue un réel atout. L' étude suivante explicite l' algorithme conçu au cours de la thèse pour permettre le calcul des variances sur les points expérimentaux et leur propagation sur le rendement déduit de la courbe d' étalonnage, à n' importe quelle énergie.

3.2.3.1 Construction de la matrice de variance des données expérimentales

En premier lieu, il s' agit de construire une matrice de variance V des rendements mesurés R_i^P d' après n raies γ émises par les différents étalons utilisés, en estimant leurs dépendances mutuelles. Sa forme générale est la suivante :

$$V = \begin{pmatrix} u^2(R^P(E_1)) & & u(R^P(E_j),R^P(E_i)) \\ & u(R^P(E_i),R^P(E_j)) & \\ & & u^2(R^P(E_n)) \end{pmatrix}$$

[26] En pratique, ce n' est pas tout à fait exact car la post-correction ξ appliquée à θ pour corriger la décroissance du temps mort au cours de la mesure, dépend de la période radioactive du radionucléide étudié.

La variance associée à chaque rendement est calculée à partir de l'incertitude sur le comptage N de la source, sur la probabilité d'émission γ de la raie et sur l'activité A de la source à la date de la mesure, soit :

$$\left(\frac{u(R^P(E_i))}{R^P(E_i)}\right)^2 = \left(\frac{u(N(E_i))}{N(E_i)}\right)^2 + \left(\frac{u(I_\gamma(E_i))}{I_\gamma(E_i)}\right)^2 + \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2$$

Des covariances sont ensuite établies entre les différents rendements mesurés pour distinguer les sources multiphotoniques des sources monoénergétiques. Tout d'abord, il s'agit d'isoler la contribution commune due aux probabilités d'émission γ. Si cette source de covariance peut être négligée pour des raies γ issues d'étalons monoénergétiques différents, cette simplification n'est plus acceptable dans le cas d'un même émetteur multiphotonique où les différentes raies γ sont fortement corrélées par leur mesure simultanée **[76]**. Une part importante de l'incertitude sur la donnée $I_\gamma(E)$ provient alors de l'activité absolue de la source utilisée et de l'étalonnage en rendement du détecteur employé. Cette composante de l'incertitude est nécessairement majorée par la plus faible des incertitudes sur les probabilités d'émission de toutes les raies γ émises. Autrement dit, un majorant de la covariance entre les rendements d'absorption totale, liée aux corrélations entre probabilités d'émission γ, s'écrit :

$$\left.\frac{u(R^P(E_i),R^P(E_j))}{R^P(E_i),R^P(E_j)}\right|_I \leq \min_{k\in[raies\ \gamma]}\left(\frac{u(I_\gamma(E_k))}{I_\gamma(E_k)}\right)^2$$

Ensuite, des corrélations doivent être établies sur l'activité absolue des différentes sources utilisées puisqu'elles proviennent toutes du même fabricant. Par ailleurs, pour des émetteurs multiphotoniques, l'activité est commune à toutes les raies γ étudiées. On distingue donc deux cas :

- si les indices 'i' et 'j' se réfèrent à *deux radionucléides distincts*, la covariance entre les activités des sources est liée à la composante systématique de l'incertitude (détecteur utilisé pour étalonner ces sources). D'après les informations fournies par le fabricant **[77]**, on a :

$$\left.\frac{u(R^P(E_i),R^P(E_j))}{R^P(E_i),R^P(E_j)}\right|_A \leq (0.4\%)^2$$

- si les indices 'i' et 'j' se réfèrent au *même radionucléide*, la covariance entre rendements est simplement la variance sur l'activité, commune aux deux raies γ :

$$\left.\frac{u(R^P(E_i),R^P(E_j))}{R^P(E_i),R^P(E_j)}\right|_A \leq \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2$$

La covariance totale est obtenue en sommant la composante liée aux probabilités d'émission γ et à l'activité absolue des sources.

3.2.3.2 Ajustement du modèle

Le modèle APOLOG **(32)** est utilisé pour ajuster une loi de dépendance en énergie aux données expérimentales. Ce modèle est linéaire en fonction des p paramètres a_i. Un algorithme d'ajustement par moindres carrés est donc utilisé pour résoudre le problème $\vec{y} = X.\vec{a}$ où $\vec{y}$ est le

vecteur des données expérimentales (logarithme des rendements mesurés), X la matrice Jacobienne et $\vec{a}$ le vecteur des paramètres d'ajustement. La formulation matricielle est alors la suivante :

$$\begin{pmatrix} . \\ . \\ \log R^P(E_i) \\ . \\ . \end{pmatrix}_{i=1..n} = \begin{pmatrix} . & . & & & \\ . & . & . & & \\ & . & \frac{\partial f}{\partial a_j}(E_i) & & \\ & & . & . & . \\ & & & . & . \end{pmatrix}_{\substack{i=1..n \\ j=1..p}} \begin{pmatrix} . \\ . \\ a_i \\ . \\ . \end{pmatrix}_{i=1..p} \quad \text{avec } \frac{\partial f}{\partial a_j}(E_i) = \left(\log \frac{E_i}{E_c}\right)^j \qquad \textbf{(60)}$$

La solution théorique du problème s'écrit **[78]** :

$$\vec{a} = ({}^tX.V^{-1}.X)^{-1}.{}^tX.V^{-1}.\vec{y}$$

La résolution de ce système est réalisée à l'aide du logiciel MATLAB, en utilisant la fonction « LSCOV ». La matrice de variance $V(\vec{a})$ associée aux paramètres d'ajustement $\vec{a}$ est alors déduite de la matrice de variance des rendements mesurés (approche de type B) par :

$$V_B(\vec{a}) = ({}^tX.V^{-1}.X)^{-1} \qquad \textbf{(61)}$$

Ce calcul de variance est purement analytique et ne tient pas du tout compte de la qualité de l'ajustement de la courbe aux valeurs expérimentales. De ce fait, il est judicieux de calculer au préalable la variance S^2 déduite de la somme quadratique des écarts moyens à la courbe (ou MSE pour *Mean Square Error)* afin de s'assurer de la pertinence de l'ordre du modèle (approche de type A) :

$$V_A(\vec{a}) = ({}^tX.X)^{-1}S^2 \qquad \textbf{(62)}$$

La figure suivante (**Fig. 55**) montre que l'augmentation de l'ordre du modèle n'apporte plus aucun bénéfice sur la qualité de l'ajustement au delà de p = 6, pour la gamme d'énergie supérieure à 100 keV. En revanche, pour ajuster les points expérimentaux sur toute la gamme d'énergie (> 15 keV) avec le même degré de précision (i.e. même MSE), un ordre p = 8 est nécessaire.

Pour la majorité des applications qui seront envisagées par la suite où les énergies étudiées seront supérieures à 200 keV, on pourra donc se limiter à un ordre p = 6.

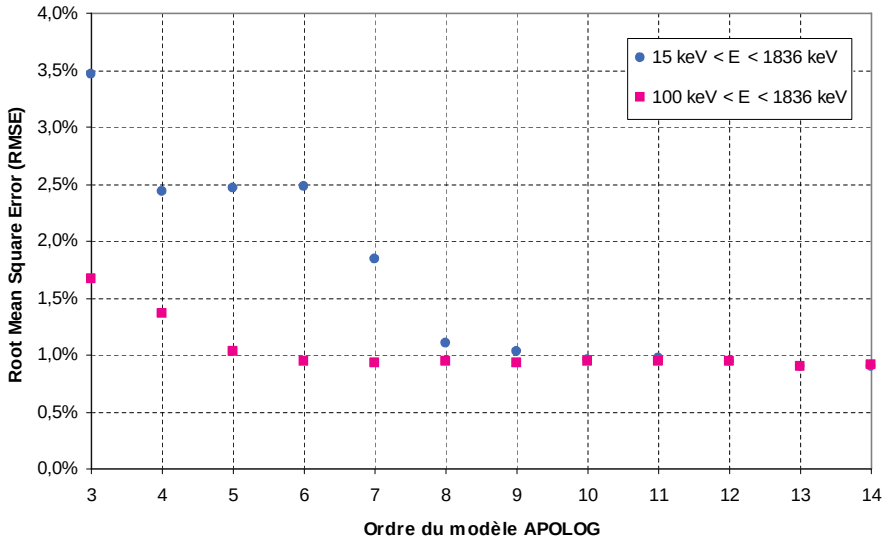

Fig. 55 : qualité de l'ajustement en fonction de l'ordre du modèle

3.2.3.3 Calcul de l' incertitude sur le rapport des rendements

Une fois le modèle retenu, on utilise la formulation matricielle de l' équation de propagation des variances **(4)** afin d' estimer l' incertitude sur le rapport des rendements aux énergies E_c et E_f :

$$\left(\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right)^2 = (X_{E_f} - X_{E_c}).V(\vec{a}).^t(X_{E_f} - X_{E_c}) \qquad \textbf{(63)}$$

où X_E est la matrice Jacobienne à 1 ligne et p colonnes, évaluée à l' énergie E.

Cette relation fait intervenir la différence de matrices Jacobiennes, fonctions de l' énergie, de telle sorte que $u(r_{R^P}) \to 0$ quand $E_c \to E_f$, ce qui est cohérent avec l' analyse qualitative initiale.

Enfin, on tient compte de l' incertitude liée au choix du modèle d' ajustement en ajoutant un terme de variance estimé en faisant varier l' ordre du modèle de i_{min} à i_{max} ($i_{min} \geq 6$, $i_{max} \leq 14$) :

$$s^2 = \frac{\sum_{i=i_{\min}}^{i_{\max}} \left(\frac{\overline{r_{R^P}} - r_{R^P}\big|_i}{\overline{r_{R^P}}} \right)^2}{i_{\max} - i_{\min}} \qquad \textbf{(64)}$$

Au final, l' incertitude sur le rapport des rendements d' absorption totale est calculée par :

$$\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}} = \sqrt{(X_{E_f} - X_{E_c}).V(\vec{a}).^t(X_{E_f} - X_{E_c}) + \frac{\sum_{i=i_{\min}}^{i_{\max}} \left(\frac{\overline{r_{R^P}} - r_{R^P}\big|_i}{\overline{r_{R^P}}} \right)^2}{i_{\max} - i_{\min}}} \qquad \textbf{(65)}$$

3.3 Estimation des incertitudes liées aux calculs et aux données nucléaires de base

3.3.1 Incertitude due aux corrections de coïncidences vraies

L' incertitude sur le facteur C_{coinc} est directement fonction de l' incertitude sur les étalonnages en rendement fournis à ETNA. Les corrections qui interviennent sur les mesures habituellement réalisées sont au plus de quelques pourcents, de ce fait, si on exprime cette correction sous la forme $C_{coinc} = 1 + \alpha$, le coefficient α varie pratiquement de façon linéaire avec le rendement **[79]**. Aussi, si l' on impose une incertitude enveloppe de 5% sur les pré-étalonnages réalisés à partir d' étalons monoénergétiques, l' incertitude sur le facteur C_{coinc} s' écrit :

$$u(C_{coinc}) \cong \alpha \times 5\%$$

L' expression analytique de la corrélation entre les facteurs correctifs, liée à l' utilisation commune de courbes d' étalonnage, est inextricable. Aussi peut-on considérer le cas enveloppe d' une corrélation totale sans pénaliser l' incertitude sur la mesure puisque α est petit devant 1. Au final, on a :

$$\frac{u(r_{coinc})}{r_{coinc}} \leq \left|\alpha_c + \alpha_f\right| \times 5\% \qquad \textbf{(66)}$$

3.3.2 Incertitude due aux corrections de décroissance radioactive

A la différence des mesures de recalage de taux de fission, le rapport r_{dec} fait intervenir des périodes radioactives différentes au numérateur et au dénominateur, d' où:

$$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}} = \sqrt{\left(\frac{u(C_{dec,c})}{C_{dec,c}}\right)^2 + \left(\frac{u(C_{dec,f})}{C_{dec,f}}\right)^2} \qquad \textbf{(67)}$$

L' incertitude sur chaque facteur de décroissance C_{dec} dépend de la filiation associée au produit de capture et de fission. En notant X le radionucléide fils et W le père, on distingue alors :

- cas d' une filiation d' ordre 1 :

$$\frac{u(C_{dec})}{C_{dec}} = \left|1 + \lambda_X t_o - \frac{\lambda_X t_m}{e^{\lambda_X t_m} - 1} - \frac{\lambda_X t_m}{e^{\lambda_X t_m} - 1}\right| \frac{u(\lambda_X)}{\lambda_X} \qquad \textbf{(68)}$$

- cas d' une filiation d' ordre 2 :

$$\frac{u(C_{dec})}{C_{dec}} = \left[\begin{array}{c}\left(\frac{\lambda_X}{\lambda_X - \lambda_W} - \frac{C_{dec}K_X}{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}\right)^2\left(\frac{u(\lambda_X)}{\lambda_X}\right)^2 + \left(\frac{\lambda_W}{\lambda_X - \lambda_W} - \frac{C_{dec}K_W}{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}\right)^2\left(\frac{u(\lambda_W)}{\lambda_W}\right)^2 + \\ \left(\frac{\lambda_X}{\lambda_X - \lambda_W} - \frac{C_{dec}K_X}{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}\right)\left(\frac{\lambda_W}{\lambda_X - \lambda_W} - \frac{C_{dec}K_W}{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}\right)\left(\frac{u(\lambda_X,\lambda_W)}{\lambda_X\lambda_W}\right)\end{array}\right]^{1/2} \qquad \textbf{(69)}$$

avec :

$$K_X = \frac{\lambda_X}{\lambda_W} e^{-\lambda_W t_o}(1-e^{-\lambda_W t_i})(1-e^{-\lambda_W t_m}) + \frac{\lambda_W}{\lambda_X} e^{-\lambda_X t_o}\left[(1+\lambda_X t_o)(1-e^{-\lambda_X t_i})(1-e^{-\lambda_X t_m}) - \lambda_X t_i e^{-\lambda_X t_i}(1-e^{-\lambda_X t_m}) - \lambda_X t_r e^{-\lambda_X t_r}(1-e^{-\lambda_X t_i})\right]$$

K_W est déduit de K_X par permutation circulaire des indices 'W' et 'X' .

En l' absence de données disponibles, on impose une corrélation totale entre λ_X et λ_W, ce qui conduit à l' expression suivante :

$$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}} \le \left(\frac{\lambda_X}{\lambda_X - \lambda_W} - \frac{C_{dec}K_X}{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}\right)\frac{u(\lambda_X)}{\lambda_X} + \left(\frac{\lambda_W}{\lambda_X - \lambda_W} - \frac{C_{dec}K_W}{(\lambda_X - \lambda_W)t_m}\right)\frac{u(\lambda_W)}{\lambda_W} \qquad \textbf{(70)}$$

3.3.3 Incertitude due aux corrections de transfert de rendement

Le rapport r_T fait intervenir les rapports des transferts de rendements calculés pour les énergies E_c et E_f, d' après le même combustible et pour la même configuration géométrique d' étalonnage. Pour rappel, on note respectivement $\eta_o(E)$ et $\eta_V(E)$ les résultats des calcul MCNP de dépôt d' énergie pour une source ponctuelle et pour une source volumique. L'incertitude associée est obtenue de la même manière que pour le recalage de taux de fission, en tenant compte en plus de :

- la convergence statistique des calculs Monte-Carlo de dépôt d' énergie relatifs à la source ponctuelle,
- la corrélation des incertitudes liées à la densité et au diamètre puisqu' elles sont estimées à partir du même combustible.

Au final, l' incertitude totale qui tient compte de ces deux paramètres de sensibilité s' écrit :

$$\frac{u(r_T)}{r_T} = \left[\left(\frac{u(\eta_o(E_c))}{\eta_o(E_c)} \right)^2_{stat} + \left(\frac{u(\eta_V(E_c))}{\eta_V(E_c)} \right)^2_{stat} + \left(\frac{u(\eta_o(E_f))}{\eta_o(E_f)} \right)^2_{stat} + \left(\frac{u(\eta_V(E_f))}{\eta_V(E_f)} \right)^2_{stat} + \left(\frac{1}{\eta_V(E_c)} \frac{\partial \eta_V(E_c)}{\partial \mu} - \frac{1}{\eta_V(E_f)} \frac{\partial \eta_V(E_f)}{\partial \mu} \right)^2 u^2(\mu) \right]^{1/2} \quad \textbf{(71)}$$

3.3.4 Incertitude due aux probabilités d' émission γ

L' incertitude sur le rapport r_I est obtenue à partir de la somme des variances, en posant l' hypothèse d' indépendance de ces deux données nucléaires :

$$\frac{u(r_I)}{r_I} = \sqrt{\left(\frac{u(I(E_c))}{I(E_c)} \right)^2 + \left(\frac{u(I(E_f))}{I(E_f)} \right)^2} \quad \textbf{(72)}$$

3.3.5 Incertitude due au rendement de fission

L' incertitude sur le rendement effectif de fission absolu est obtenue de la même manière que pour le rapport r_Y traité précédemment. Le cas général s' écrit :

$$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}} = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \sum_{g=1}^{N} \left(\frac{Y_{i,g} - \overline{Y}}{\overline{Y}} \tau_{i,g} \right)^2 \left(\left(\frac{u(n_i)}{n_i} \right)^2 + \left(\frac{u(F_{i,g})}{F_{i,g}} \right)^2_{stat} \right) + \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{n} \sum_{g=1}^{N} \sum_{h=1}^{N} \tau_{i,g} \tau_{j,h} \left(\frac{u(Y_{i,g}, Y_{j,h})}{Y_{i,g} Y_{j,h}} \right)} \quad \textbf{(73)}$$

En considérant l' approche enveloppe d' une corrélation totale entre les $Y_{i,g}$, l' incertitude sur le rendement effectif se simplifie en:

$$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}} \leq \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \sum_{g=1}^{N} \left(\frac{Y_{i,g} - \overline{Y}}{\overline{Y}} \tau_{i,g} \right)^2 \left(\left(\frac{u(n_i)}{n_i} \right)^2 + \left(\frac{u(F_{i,g})}{F_{i,g}} \right)^2_{stat} \right) + \left(\sum_{i=1}^{n} \sum_{g=1}^{N} \tau_{i,g} \frac{u(Y_{i,g})}{Y_{i,g}} \right)^2} \quad \textbf{(74)}$$

3.4 Combinaison de plusieurs résultats de mesure

De même que pour les mesures de recalage de taux de fission, la détermination de l' indice de capture fait intervenir une combinaison de plusieurs résultats de mesure qui vise à vérifier la cohérence des données nucléaires utilisées et à réduire leur contribution à l' incertitude totale. Le traitement statistique des données comporte également trois étapes :

- la combinaison de plusieurs comptages de raies γ caractéristiques de capture et/ou de fission,
- la combinaison de plusieurs raies γ issues d' un même produit de capture et/ou de fission,
- la combinaison des résultats obtenus à partir de plusieurs produits de capture et/ou fission.

3.4.1 Comptages multiples d'une même raie γ

Les mesures d'indice de capture consistent habituellement en des campagnes de m mesurages de chaque crayon combustible (m = 3 à 6 en général). Les différents résultats sont combinés à partir de la moyenne des rapports capture / fission mesurés, afin de s'affranchir de la dépendance au temps mort pour chaque mesurage. Aussi les seuls paramètres qui varient entre ces différents mesurages sont :

- le rapport des taux de comptage mesurés r_N,
- le rapport des corrections de décroissance r_{dec},

Les poids w_i qui interviennent dans le calcul de la moyenne pondérée ne doivent tenir compte que des paramètres non corrélés de la mesure. Or le rapport des corrections de décroissance comporte une composante à caractère systématique provenant de la durée d'irradiation et de la durée de refroidissement, ainsi qu'une composante variable qui dépend de la durée qui sépare les différents mesurages réalisés. D'après les expressions analytiques **(68)** et **(69)** du rapport r_{dec}, on observe que ces deux contributions ne peuvent être séparées de façon simple. Aussi a-t-on fait le choix de ne pas inclure l'incertitude associée au rapport r_{dec} dans les coefficients de pondération. Cette simplification est justifiée par le fait qu'en pratique, les campagnes de mesure sont étalées sur une durée totale telle que la contribution de l'incertitude liée à la décroissance au cours de cette période reste faible devant l'incertitude de comptage. La combinaison des différents comptages est donc obtenue par :

$$\overline{r_C} = \frac{\sum_{i=1}^{m} w_i r_{C,i}}{\sum_{i=1}^{m} w_i} \quad \text{avec} \quad w_i = \frac{1}{\left(\frac{u(r_{N,i})}{r_{N,i}}\right)^2} \qquad \textbf{(75)}$$

L'incertitude associée est obtenue en calculant la variance interne de la moyenne à partir des pondérations w_i et en ajoutant la variance de tous les paramètres à caractère systématique :

$$\frac{u(\overline{r_C})}{\overline{r_C}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{m} w_i} + \left(\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_{coinc})}{r_{coinc}}\right)^2 + \left(\frac{\overline{u(r_{dec})}}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{u(r_T)}{r_T}\right)^2 + \left(\frac{u(r_I)}{r_I}\right)^2 + \left(\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}\right)^2} \qquad \textbf{(76)}$$

3.4.2 Comptages de plusieurs raies γ issues d'un même produit de capture ou de fission

Dans le cas où l'on dispose sur le spectre de plusieurs raies γ issues d'un même radionucléide, on peut combiner les résultats de mesure associés à chacune. La pondération doit alors tenir compte des deux paramètres indépendants, à savoir $u(N)$ (elle-même pouvant être déduite de la combinaison de m mesures) et la composante de η_V liée à la convergence des calculs Monte-Carlo. Cependant, dans le cas où les raies γ étudiées présentent de fortes disparités sur les incertitudes associées aux probabilités d'émission ou aux rapports de rendements d'absorption totale, ou si l'une des raies γ est plus fortement autoabsorbée que les autres, ces pondérations ne sont pas très représentatives de la confiance accordée à chaque résultat. Il a donc été décidé d'inclure ces trois sources d'incertitude à caractère systématique dans les poids υ_{ij} appliqués à chaque mesure, les indices i et j désignant respectivement les n raies γ de capture et les p raies γ de fission. Au préalable, on écrit la variance sur

r_I comme la somme d' un terme non corrélé $u_{NC}(r_I)$ et d' un terme corrélé $u_C(r_I)$ dont un majorant est le minimum des variances sur toutes les raies γ émises par le produit de capture et de fission étudié :

$$\left(\frac{u(r_I)}{r_I}\right)_{i,j}^2 \leq \left(\frac{u_{NC}(r_I)}{r_I}\right)_{i,j}^2 + \min\left(\frac{u(I_\gamma(E_c))}{I_\gamma(E_c)}\right)^2 + \min\left(\frac{u(I_\gamma(E_f))}{I_\gamma(E_f)}\right)^2 \quad \textbf{(77)}$$

La moyenne pondérée s' écrit alors :

$$\overline{r_C} = \frac{\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{p} \upsilon_{ij} r_{C,i,j}}{\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{p} \upsilon_{ij}} \quad \text{avec : } \upsilon_{ij} = \frac{1}{\left(\frac{u(r_N)}{r_N}\right)_{i,j}^2 + \left(\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right)_{i,j}^2 + \left(\frac{u(r_T)}{r_T}\right)_{i,j}^2 + \left(\frac{u_{NC}(r_I)}{r_I}\right)^2} \quad \textbf{(78)}$$

L' incertitude associée à la moyenne des $r_{C,i,j}$ est obtenue par :

$$\frac{u(\overline{r_C})}{\overline{r_C}} = \left[\frac{1}{\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{p} \upsilon_{ij}} + \left(\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{\overline{u(r_{coinc})}}{r_{coinc}}\right)^2 + \min\left(\frac{u(I(E_c))}{I(E_c)}\right)^2 + \min\left(\frac{u(I_\gamma(E_f))}{I_\gamma(E_f)}\right)^2 + \left(\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}\right)^2 + \frac{4\sum_{i=1}^{n-1}\sum_{j=1}^{p-1}\sum_{k=i+1}^{n}\sum_{l=j+1}^{p} \upsilon_{ij}\upsilon_{kl}\left(\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right)_{i,j}\left(\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right)_{k,l}}{\left(\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{p} \upsilon_{ij}\right)^2} + \frac{4\sum_{i=1}^{n-1}\sum_{j=1}^{p-1}\sum_{k=i+1}^{n}\sum_{l=j+1}^{p} \upsilon_{ij}\upsilon_{kl}\left(\frac{u(r_T)\big|_\eta}{r_T}\right)_{i,j}\left(\frac{u(r_T)\big|_\eta}{r_T}\right)_{k,l}}{\left(\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{p} \upsilon_{ij}\right)^2} \right]^{1/2} \quad \textbf{(79)}$$

3.4.3 Comptages de plusieurs produits de fission

Enfin, lorsque la mesure du taux de capture est normalisée à partir de *q* produits de fission, les résultats se combinent de la façon suivante :

$$\overline{r_C} = \frac{\sum_{k=1}^{q} \varsigma_k r_{C,k}}{\sum_{j=1}^{q} \varsigma_k} \text{ avec } \varsigma_k = \frac{1}{\left(\frac{u(N_f)}{N_f}\right)_k^2 + \left(\frac{u(T_f)}{T_f}\right)_k^2 + \left(\frac{u(C_{dec,f})}{C_{dec,f}}\right)_k^2 + \left(\min\left(\frac{u(I(E_f))}{I(E_f)}\right)\right)_k^2 + \left(\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}\right)_k^2} \quad \textbf{(80)}$$

Le calcul d' incertitude de la moyenne devient excessivement complexe à ce niveau de combinaison des résultats car les contributions liées à la capture et à la fission ne peuvent être séparées en deux termes distincts. Il est donc illusoire de chercher à réaliser une propagation purement analytique des incertitudes à ce stade. Une étude au cas par cas doit alors être menée afin de retenir un estimateur adapté. Si les incertitudes obtenues à partir des différents produits de fission sont du même ordre de grandeur, on pourra considérer le cas enveloppe d' une corrélation totale qui conduit au majorant suivant de l' incertitude sur la moyenne $\overline{r_C}$:

$$\frac{u(\overline{r_C})}{\overline{r_C}} \leq \frac{\sum_{k=1}^{q} \varsigma_k \frac{u(r_{C,k})}{r_{C,k}}}{\sum_{j=1}^{q} \varsigma_k} \quad \textbf{(81)}$$

En revanche, si les incertitudes varient significativement d' un produit de fission à l' autre, on risque de pénaliser l' incertitude finale en considérant la moyenne. Etant donné qu' il n' existe aucune règle générale qui permette de traiter ce type de cas complexe, on pourra simplement retenir un résultat individuel et son incertitude associée à partir du radionucléide qui semble le mieux maîtrisé.

4 CONCLUSION

Ce chapitre a permis d' appliquer aux mesures par spectrométrie γ habituellement réalisés sur EOLE et MINERVE, les principes généraux d' estimation et de propagation des incertitudes présentés au début de ce mémoire. Il met en lumière la spécificité de ces mesures où seuls des rapports d' activité sont considérés, soit à partir du même radionucléide pour deux crayons différents, soit entre deux radionucléides différents pour le même crayon. Les principales innovations par rapport au traitement des incertitudes réalisé par le passé concernent **[65]**:

- la prise en compte des covariances et dépendances mutuelles entre paramètres d' influence, en particulier les rendements effectifs de fission et les rendements d' absorption totale. Ce travail permet une **réduction d' un facteur 4 des incertitudes par rapport au passé** sur les rapports de ces deux grandeurs, qui constituaient les principale sources d' incertitude sur les mesures de recalage de taux de fission (cf. chapitre 1, partie III) et d' indice de capture (cf. chapitre 1, partie IV).
- l' établissement d' une méthodologie rigoureuse de combinaison des résultats obtenus à partir de différents comptages, raies γ et radionucléides. Ce travail permet une **minimisation de la composante de l' incertitude due aux données nucléaires de base utilisées**.

Les mesures présentées dans la suite de ce mémoire permettront d' illustrer l' apport en terme de maîtrise des biais systématiques et de réduction des incertitudes, obtenu grâce aux méthodologies de traitement des données brutes et de propagation des variances développées dans ces deux derniers chapitres.

CONCLUSION

Cette seconde partie constituait le cœur du travail d'optimisation des techniques de mesure par spectrométrie γ appliquées aux maquettes critiques. Elle comportait deux volets majeurs.

Dans le premier chapitre, une analyse qualitative et quantitative de l'instrumentation a été menée à partir de plusieurs électroniques. Elle a permis de déterminer le système le plus adapté pour répondre aux exigences de minimisation des erreurs liées au temps mort. Sur la base de cette étude comparative, le SPEx a réalisé **l'acquisition de 5 chaînes de mesure DSP** pour tous les bancs de spectrométrie γ utilisées sur EOLE et MINERVE, afin de remédier aux biais systématiques induits par les précédentes électroniques.

Ces dispositifs ont ensuite été caractérisés et optimisés pour répondre aux besoins des mesures de taux de réaction sur les combustibles des réacteurs EOLE et MINERVE. Le principal apport de ce travail concerne l'optimisation des réglages de la correction de temps mort qui permet, désormais, un **fonctionnement quantitatif précis à mieux que 0.5%, jusqu'à un taux de comptage de 1.5×10^5 s^{-1}**.

La dernière partie du chapitre était consacrée à la caractérisation du logiciel GENIE 2000 pour l'analyse de spectres γ de produits de fission. L'étude permet de **qualifier du modèle d'ajustement des pics par une gaussienne et d'un paramètre d'asymétrie à mieux que 0.1%**. Elle montre également que pour des pics noyés dans des fonds continus élevés (H_f / $H_p \cong 10$) une **réduction d'un facteur 3 des erreurs systématiques** commises sur l'estimation de la surface nette est obtenue, après étalonnage des paramètres de forme (résolution et *tail*) en fonction de l'énergie.

Les deux chapitres suivants ont permis de figer une méthodologie de traitement et de propagation des incertitudes sur les mesures de taux de réaction par spectrométrie γ de pic particulier. Les principales innovations concernent :

- le développement de méthodes optimisées de correction du temps mort, des coïncidences vraies et des transferts de rendement. L'apport de ce travail par rapport au passé consiste en la **correction d'erreurs systématiques de mesure de 2 à 8%** (cf. chapitre 1 de la partie IV).
- la mise en place de méthodes rigoureuses de propagation des incertitudes, appliquées aux mesures de recalage de taux de fission et d'indice de capture. Les principaux bénéfices de ce travail concerne le rapport des rendements d'absorption totale et le rapport des rendements effectifs de fission dont **les incertitudes ont été réduites d'un facteur 4** par rapport au passé (cf. chapitre 1 des parties III et IV).

Cette méthodologie a ensuite été intégrée dans des logiciels **[80]** développés au cours de la thèse en VBA (*Visual Basic Applications*). Ils ont été conçus pour faciliter le traitement des données brutes de mesure et la propagation des incertitudes associées. La finalité de ce travail est la mise à disposition d'outils figés qui permettent un **traitement uniforme** des mesures par spectrométrie γ, tout en assurant la **pérennité des méthodes** pour des applications futures **[81][82]**.

PARTIE III :
DEVELOPPEMENT ET OPTIMISATION DE MESURES DE DISTRIBUTION DE TAUX DE FISSION

Pour tirer le meilleur parti des connaissances acquises, pour en extraire toute la richesse, il importe de ne pas s'y habituer trop vite, de se laisser le temps de la surprise et de l'étonnement.
Hubert REEVES

INTRODUCTION

Dans cette troisième partie, les progrès réalisés sur l'instrumentation et le traitement des mesures par spectrométrie γ vont être mis à profit pour des études qui visent à qualifier des paramètres d'intérêt de la physique des réacteurs. La comparaison des méthodes de traitement développées au cours de la thèse par rapport à celles utilisées par le passé permettra de quantifier les bénéfices obtenus en terme de maîtrise des erreurs systématiques et de réduction des incertitudes.

Le premier chapitre présente la mesure de la **distribution radiale de taux de fission** d'un réseau de crayons UO_2 enrichis à 3% en uranium 235, au milieu duquel est inséré un crayon constitué d'UMoAl, enrichi à 19.75%. Ce combustible, qui doit équiper à terme le cœur du futur réacteur d'irradiation RJH (Réacteur Jules Horowitz), a fait l'objet d'un programme expérimental dans le réacteur MINERVE, pour la qualification de son comportement neutronique **[83]**. L'étude présentée dans ce chapitre vise à mesurer le facteur de recalage de taux de fission, par la technique de spectrométrie γ de pic particulier, entre le crayon UMoAl et trois crayons du réseau UO_2. In fine, les mesures réalisées contribuent à **[84]** :

- vérifier l'influence des caractéristiques de ce combustible non standard (structure métallique constitué d'une matrice en aluminium, géométrie annulaire, enrichissement à 19.75%, densité inférieure à l'UO_2) sur des formulaires de calcul dédiés aux réacteurs à eau légère,
- améliorer la connaissance des données nucléaires de base qui contribuent en majorité à l'incertitude sur l'estimation du facteur de multiplication effectif K_{eff} et donc de la taille critique du cœur (663 et 505 pcm respectivement dues à l'uranium 235 et à l'aluminium 27).

Le second chapitre est ensuite consacré à l'étude d'une **distribution axiale de taux de fission** sur un crayon UO_2, par la technique de spectrométrie γ intégrale. Ce type de mesure vise à vérifier l'aptitude des formulaires à calculer la fuite axiale des neutrons dans le cœur, qu'on caractérise par le laplacien géométrique (sous-entendu « axial ») B_z^2. Les enjeux concernent la maîtrise de la puissance thermique dégagée (études de thermohydraulique relatives à la crise d'ébullition) et de l'hétérogénéité axiale d'usure du combustible. Différentes problématiques liées à la mesure seront évoquées :

- la qualification expérimentale et calculatoire de la technique de mesure, par comparaison à la spectrométrie γ de pic particulier et par rapport à une simulation de type Monte-Carlo,
- la méthode d'extraction du laplacien géométrique et en particulier l'évaluation de la zone axiale du combustible où le mode fondamental peut-être considéré comme établi,
- l'influence sur le profil axial mesuré, du biais lié à la mauvaise compensation du temps mort par les anciennes électroniques.

CHAPITRE 1 :
MESURE DE RECALAGE DE TAUX DE FISSION D' UN CRAYON COMBUSTIBLE UMoAl

1 INTRODUCTION

Dans le cadre des études de définition du RJH (Réacteur Jules Horowitz) et de l'élaboration du rapport préliminaire de sûreté, le programme expérimental VALMONT (Validation du combustible ALuminium MOlybdène uranium pour la NeuTronique) a été réalisé dans le réacteur MINERVE entre 2003 et 2004 **[83]**. Il vise à qualifier, du point de vue neutronique, un ensemble d'outils nécessaires pour la conception du RJH, appelé HORUS3D (HOrowitz Reactor simulation Unified System). Une partie de la campagne de mesures est consacrée à l'étude des effets de production et d'absorption dans un crayon combustible contenant de l'UMoAl. Il est pour cela irradié au centre du réacteur afin de caractériser ses propriétés dans un spectre représentatif d' un REP-UO_2.

L'étude, qui fait l' objet de ce chapitre, est consacrée à lamesure de la distribution radiale de taux de fission (proportionnel à la puissance neutronique) au centre du cœur, et en particulier à la détermination du facteur de recalage entre le crayon UMoAl et trois crayons UO_2 de référence du réseau **[85]**. Il s' agit d'appliquer la méthodologie décrite dans les deux derniers chapitres, de comparer les résultats obtenus à partir de la nouvelle approche de traitement et de qualifier le facteur de recalage mesuré à partir de différents formulaires de calcul. Après avoir explicité les mesures réalisées, le traitement des données brutes sera détaillé et une intercomparaison des résultats obtenus à partir de plusieurs produits de fission sera présentée. Enfin, les écarts calcul / expérience obtenus à partir de calculs probabilistes MCNP4C2 et déterministes APOLLO2, utilisant les bibliothèques de données nucléaires JEF2.2, JEFF3.1 et ENDF/B-VI.8, permettront des dégager des remarques intéressantes quant à la qualification du combustible UMoAl d' un point de vue neutronique.

2 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES

Le crayon UMoAl, auquel on affectera par la suite l'indice V, est un combustible de forme annulaire (diamètre intérieur / extérieur ≅ 5 / 8 mm) et de densité 9.93, constitué d' un alliage d'aluminium (11.2%), de molybdène (6.4%) et d'uranium (82.2%) avec un enrichissement à 19.75% en uranium 235 **[86]**. Il est introduit dans le réacteur MINERVE, au centre du réseau R1-UO2 (**Fig. 56**), constitué de 776 crayons UO_2 (diamètre 8 mm), de densité 10.2 et enrichis à 3% en uranium 235 **[87]**.

Le taux de fission du crayon V est mesuré relativement à trois crayons UO_2 de référence, situés en (-2 ; 0), (2 ; 0) et (3 ; 3) par rapport au centre (0 ; 0) et respectivement notés U1, U2 et U3. Les deux premiers permettent de vérifier la symétrie radiale du réseau ainsi que l' aptitude du formulaire à calculer le creusement de puissance lié au durcissement local du spectre. Le troisième est suffisamment éloigné de la perturbation centrale pour que son comportement se rapproche du mode fondamental obtenu pour un réseau homogène.

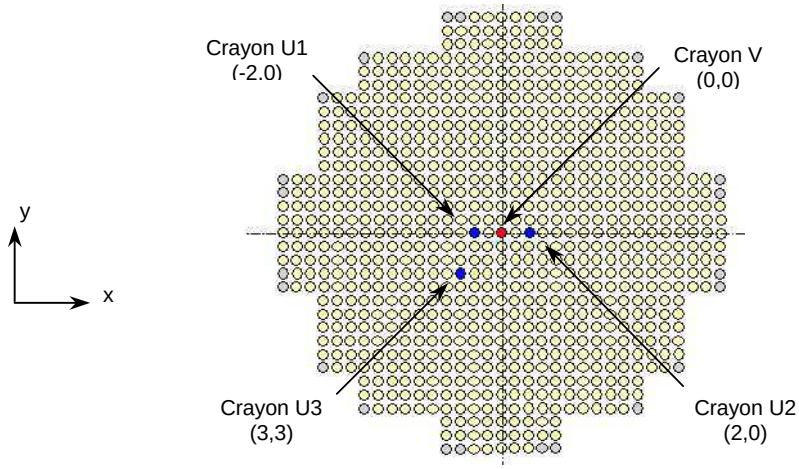

Fig. 56 : coupe axiale de la zone expérimentale du réacteur MINERVE en réseau R1-UO2

Le Programme de Principe d'Expérience prévoit la réalisation de deux campagnes de mesure destinées à l'étude de deux produits de fission, historiquement « de référence », à savoir :

- le strontium 92, radionucléide à courte durée de vie ($T_{1/2}$ = 2.71 h **[23]**) produit par une filiation d'ordre 1 et dont on étudie la raie γ à 1383.9 keV,
- le lanthane 140, radionucléide produit par une filiation d'ordre 2 suite à la décroissance du baryum 140 ($T_{1/2}$ = 12.7 j **[23]**) et dont on mesure la raie γ à 1596.2 keV.

Des mesures complémentaires ont été effectués sur certains crayons afin d'étudier la possibilité d'exploiter d'autres produits de fission. Il s'agit également de vérifier la cohérence des différents résultats obtenus et de les combiner afin de réduire l'incertitude sur le facteur de recalage final. Les radionucléides suivants ont donc été considérés :

Produit de fission	Type de filiation	Période radioactive fils / père **[23]**	Raie γ étudiée
rubidium 88	ordre 2	17.8 min / 2.84 j	1836.0 keV
yttrium 91m	ordre 2	49.7 min / 9.52 h	555.6 keV
iode 132	ordre 2	2.30 j / 3.20 j	954.6 keV 1398.6 keV
iode 133	ordre 2	20.8 h / 12.5 min	1236.4 keV
iode 135	ordre 1	6.61 h	1260.4 keV 1678.0 keV 1706.5 keV 1791.2 keV
cérium 143	ordre 2	33.0 h / 14.1 min	293.3 keV

Tab. 17 : produits de fission étudiés pour la mesure des facteurs de recalage de taux de fission

L'expérience consiste en 3 campagnes de mesure, associées à 2 expériences d'irradiation, au cours desquelles différents bancs de mesure, équipés des électroniques 2026+PCA3, 2024+MP2 et DSP+PCA3, ont été utilisés. La comparaison des résultats obtenus permet de quantifier les erreurs systématiques provenant des électroniques utilisées par le passé. A noter que dans le cas de la campagne dédiée à l'étude du lanthane 140, les 4 bancs ont été équipés des anciennes chaînes de mesure en raison de l'indisponibilité des électroniques 2024 et DSP. Toutefois, le taux de comptage lors de la mesure ($\cong 10^4\ s^{-1}$) est tel que le biais dû au temps mort n'est pas trop pénalisant ($\leq 1\%$).

Les durées de mesure t_m ont été adaptées en fonction du taux de comptage des radionucléides étudiés (600 s < t_m < 3600 s) et chaque crayon combustible a été compté 3 fois sur chacun des bancs afin de contrôler la reproductibilité de la mesure. Les différentes étapes sont synthétisées ci-dessous :

Campagne de mesures	Puissance intégrée	Durée de décroissance	Banc de mesure[27] + électronique	Combustibles mesurés	Produits de fission mesurés
A	10.2 W.h	3 h	N°1 + 2026 + PCA3 N°2 + 2024 + MP2 N°3 + 2024 + MP2 N4 + DSP + PCA3	V U1 U2 U3	^{88}Rb, ^{91m}Y, ^{92}Sr, ^{135}I
B	160.1 W.h	7 j	N°1 + 2026 + PCA3 N°2 + 2026 + PCA3 N°3 + 2026 + PCA3 N°4 + 2026 + PCA3	V U1 U2 U3	^{140}La
C	160.1 W.h	22 h	N°4 + DSP + PCA3	V U3	^{91m}Y, ^{92}Sr, ^{132}I, ^{133}I, ^{135}I, ^{140}La, ^{143}Ce

Tab. 18 : déroulement des mesures de facteurs de recalage de taux de fission

3 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans cette partie, les différentes étapes du traitement des données brutes de mesure seront explicitées. Elles s'appuient directement sur les équations présentées dans les précédents chapitres.

3.1 Taux de comptage à saturation

L'allure des spectres post-irradiation est similaire entre les quatre crayons étudiés. On donne à titre d'exemple celui du crayon V, 22 heures après irradiation :

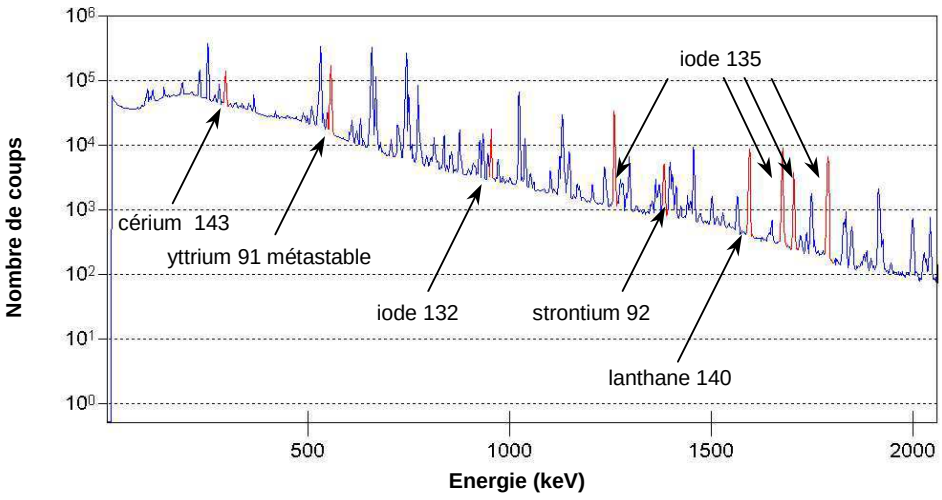

Fig. 57 : spectre post-irradiation du crayon V (campagne C)

Après s'être assuré que les différents pics étudiés ne sont perturbés par aucun pic voisin, à une énergie telle qu'ils ne puissent être résolus, la mesure des surfaces nettes est réalisée en utilisant les recommandations émises dans le chapitre 1 de la partie II.

[27] Les détecteurs utilisés sont tous de type coaxial et différent seulement par leur efficacité relative (N°1,2,3 = 15%, N°4 = 65%).

Les facteurs correctifs de temps mort et de décroissance sont ensuite calculés. Les durées de mesure sont suffisamment faibles devant les périodes radioactives (λt_m < 0.3) pour que la post-correction ξ soit négligeable devant 1 et que le rapport des corrections de temps mort r_θ puisse être estimé par son expression simplifiée (cf. relation **(23)**). Pour les bancs équipés de chaînes de mesure dont le comportement quantitatif a été caractérisé (cf. partie II, chapitre 1, section §2.3.4), l' incertitude sur r_θ est calculée selon la relation **(42)** avec :

- ε = 1% à θ_{max} = 50% pour la chaîne de mesure 2024+MP2,
- ε = 0.5% à θ_{max} = 65% pour la chaîne de mesure DSP+PCA3,

De même, on aura vérifié que les transitoires de puissance et la correction induite par le terme de fission direct ont une influence négligeable sur le rapport des corrections de décroissance r_{dec}.

Les tableaux suivants donnent les rapports r_N, r_{dec} et r_θ, pour les crayons V et U3, ainsi que les rapports des taux de comptage à saturation r_{sat}, obtenus en utilisant les évaluations JEFF3.1 des périodes radioactives (cf. **Annexe B**):

Banc de mesure	r_N	$\frac{u(r_N)}{r_N}$	r_{dec}	$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}$	r_θ	$\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}$	r_{sat}	$\frac{u(r_{sat})}{r_{sat}}$	$\overline{r_{sat}}$	$\frac{u(\overline{r_{sat}})}{\overline{r_{sat}}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
N° 1 2026+PCA3	2.273	0.92%	0.939	0.010%	1.079	-	2.302	0.92%	2.382	0.56%	12.0
	2.443	0.98%	0.944	0.009%	1.050	-	2.422	0.98%			
	2.514	1.02%	0.940	0.010%	1.036	-	2.449	1.02%			
N° 2 2026+MP2	2.001	0.82%	0.945	0.021%	1.400	0.40%	2.647	0.91%	2.651	0.60%	0.83
	2.222	0.88%	0.948	0.020%	1.269	0.32%	2.675	0.93%			
	2.342	0.88%	0.937	0.024%	1.200	0.26%	2.633	0.92%			
N° 3 2026+MP2	2.092	0.79%	0.941	0.022%	1.364	0.39%	2.687	0.88%	2.662	0.57%	2.5
	2.252	0.85%	0.947	0.020%	1.255	0.31%	2.675	0.91%			
	2.436	0.84%	0.935	0.025%	1.151	0.20%	2.622	0.87%			
N° 4 DSP+PCA3	1.841	0.36%	1.193	0.065%	1.221	0.11%	2.681	0.39%	2.662	0.25%	3.2
	1.924	0.39%	1.178	0.060%	1.169	0.10%	2.649	0.40%			
	1.948	0.40%	1.212	0.071%	1.124	0.08%	2.653	0.41%			

Tab. 19 : rapports des taux de comptage à saturation du strontium 92 (campagne A)

Banc de mesure	r_N	$\frac{u(r_N)}{r_N}$	r_{dec}	$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}$	r_θ	$\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}$	r_{sat}	$\frac{u(r_{sat})}{r_{sat}}$	$\overline{r_{sat}}$	$\frac{u(\overline{r_{sat}})}{\overline{r_{sat}}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
N° 1 2026+PCA3	2.613	0.57%	1.003	0.001%	1.004	-	2.630	0.57%	2.623	0.29%	0.72
	2.613	0.57%	1.005	0.001%	1.003	-	2.634	0.57%			
	2.499	0.41%	1.043	0.005%	1.003	-	2.614	0.41%			
N° 2 2026+PCA3	2.558	0.55%	0.998	0.001%	1.006	-	2.565	0.55%	2.582	0.28%	0.99
	2.584	0.54%	0.996	0.001%	1.006	-	2.587	0.54%			
	2.685	0.40%	0.959	0.005%	1.005	-	2.589	0.40%			
N° 3 2026+PCA3	2.585	0.48%	0.997	0.001%	1.006	-	2.594	0.48%	2.596	0.24%	0.71
	2.581	0.49%	0.995	0.001%	1.006	-	2.584	0.49%			
	2.699	0.34%	0.959	0.005%	1.006	-	2.602	0.34%			
N° 4 2026+PCA3	2.566	0.49%	1.003	0.001%	1.004	-	2.586	0.49%	2.607	0.26%	1.9
	2.594	0.51%	1.004	0.001%	1.004	-	2.616	0.51%			
	2.500	0.37%	1.043	0.005%	1.003	-	2.615	0.37%			

Tab. 20 : rapports des taux de comptage à saturation du lanthane 140 (campagne B)

Produit de fission	r_N	$\frac{u(r_N)}{r_N}$	r_{dec}	$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}$	r_θ	$\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}$	r_{sat}	$\frac{u(r_{sat})}{r_{sat}}$	$\overline{r_{sat}}$	$\frac{u(\overline{r_{sat}})}{\overline{r_{sat}}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
yttrium 91m (555.6 keV)	2.537	0.68%	1.058	0.029%	1.126	0.08%	3.024	0.71%	3.030	0.30%	2.2
	2.559	0.35%	1.065	0.032%	1.116	0.07%	3.041	0.40%			
	2.542	0.72%	1.063	0.032%	1.107	0.07%	2.991	0.74%			
strontium 92 (1383.9 keV)	1.951	1.78%	1.223	0.074%	1.126	0.08%	2.687	1.79%	2.644	0.94%	0.14
	1.930	2.22%	1.249	0.082%	1.116	0.07%	2.690	2.23%			
	1.956	2.73%	1.242	0.080%	1.107	0.07%	2.691	2.74%			
iode 132 (954.6 keV)	2.416	1.38%	1.007	0.002%	1.126	0.08%	2.739	1.39%	2.722	0.82%	0.23
	2.397	1.97%	1.008	0.003%	1.116	0.07%	2.696	1.98%			
	2.438	1.19%	1.008	0.003%	1.107	0.07%	2.720	1.20%			
iode 132 (1398.6 keV)	2.419	3.15%	1.007	0.002%	1.126	0.08%	2.743	3.15%	2.695	1.69%	0.33
	2.405	3.01%	1.008	0.003%	1.116	0.07%	2.705	3.02%			
	2.379	2.69%	1.008	0.003%	1.107	0.07%	2.654	2.70%			
iode 133 (1236.4 keV)	2.339	1.85%	1.017	0.002%	1.126	0.08%	2.678	1.86%	2.664	1.63%	0.20
	2.330	4.77%	1.018	0.003%	1.116	0.07%	2.648	4.78%			
	2.300	4.86%	1.018	0.003%	1.107	0.07%	2.593	4.87%			
iode 135 (1260.4 keV)	2.204	0.66%	1.087	0.025%	1.126	0.08%	2.697	0.69%	2.677	0.40%	1.9
	2.197	0.73%	1.096	0.028%	1.116	0.07%	2.687	0.76%			
	2.189	0.65%	1.093	0.027%	1.107	0.07%	2.651	0.68%			
iode 135 (1678.0 keV)	2.202	1.45%	1.087	0.025%	1.126	0.08%	2.694	1.46%	2.652	0.74%	0.82
	2.155	1.18%	1.096	0.028%	1.116	0.07%	2.637	1.19%			
	2.179	1.27%	1.093	0.027%	1.107	0.07%	2.638	1.28%			
iode 135 (1706.5 keV)	2.178	1.45%	1.087	0.025%	1.126	0.08%	2.665	1.46%	2.647	0.87%	0.67
	2.175	1.42%	1.096	0.028%	1.116	0.07%	2.661	1.44%			
	2.151	1.65%	1.093	0.027%	1.107	0.07%	2.604	1.66%			
iode 135 (1791.2 keV)	2.148	1.12%	1.087	0.025%	1.126	0.08%	2.629	1.14%	2.638	0.72%	0.15
	2.168	1.25%	1.096	0.028%	1.116	0.07%	2.652	1.26%			
	2.176	1.41%	1.093	0.027%	1.107	0.07%	2.634	1.43%			
lanthane 140 (1596.2 keV)	2.431	1.05%	0.975	0.000%	1.126	0.08%	2.670	1.07%	2.665	0.57%	0.052
	2.454	1.12%	0.975	0.000%	1.116	0.07%	2.669	1.14%			
	2.458	0.85%	0.977	0.000%	1.107	0.07%	2.659	0.87%			
cérium 143 (293.3 keV)	3.310	1.60%	1.017	0.002%	1.126	0.08%	3.790	1.61%	3.801	0.83%	0.068
	3.338	1.37%	1.018	0.003%	1.116	0.07%	3.794	1.38%			
	3.386	1.35%	1.018	0.003%	1.107	0.07%	3.816	1.36%			

Tab. 21 : rapports des taux de comptage à saturation d'autres produits de fission (campagne C)

On observe, d'après ces trois tableaux, que la majorité de l'incertitude sur le taux de comptage à saturation provient de la mesure des surfaces nettes. La quasi-constance du temps qui sépare deux mesures successives d'un même crayon et la similitude dans la décroissance de l'activité globale conduit à des incertitudes sur les facteurs r_{dec} et r_θ quasi-constante entre les trois mesures de chaque radionucléide. De ce fait, l'approximation réalisée au chapitre précédent (cf. §2.4.1) qui consiste à assimiler l'incertitude de reproductibilité à la composante liée au comptage, est tout à fait justifiée.

Le premier tableau de synthèse consacré au strontium 92 (**Tab. 19**), montre que les résultats obtenus sur les bancs N°2, N°3 et N°4 sont cohérents à $k = 2$, aussi bien en terme de répétabilité du comptage qu'en terme de reproductibilité entre chaînes électroniques. Par ailleurs, les valeurs obtenues sont compatibles avec les résultats de la campagne de mesures C, réalisée 22 heures après l'irradiation.

En revanche, un écart de 10% est identifié entre la mesure réalisée sur le banc N°1, avec la chaîne 2026+PCA3, et les 3 autres bancs. Le test de χ^2 bilatéral à 2 degrés de liberté permet d'affirmer, avec un risque de première espèce $\alpha = 5\%$, que si le rapport des variances externes et internes est extérieur à l'intervalle [0.025; 3.689], alors il existe une différence entre ces deux estimations de variance. Le rapport χ^2 / ν, égal à 12, traduit donc un problème de reproductibilité entre les trois mesures qui s'explique par l'absence de correction des empilements électroniques. L'écart observé entre ce banc et les trois autres est directement imputable à la mauvaise compensation du temps mort par la chaîne 2026+PCA3. Cet effet est alors responsable d'une erreur de 10% sur le facteur de recalage mesuré.

Pour des raisons identiques, les mesures de lanthane 140 réalisées sur les 4 bancs équipés des électroniques 2026+PCA3 (**Tab. 20**) conduisent à des écarts de l'ordre de 2% avec cellesréalisées à partir du DSP (**Tab. 21**). Cette écart est significatif puisque l'incertitude sur la moyenne des trois mesurages est inférieure à 0.6%. Cependant, comme le taux de comptage total des crayons mesurés après 7 jours de décroissance est faible (inférieur à 10^4 s^{-1}), les incertitudes de comptage ne sont pas suffisamment petites pour que le test de χ^2 soit rejeté comme dans le cas du strontium 92. Ce biais étant faible, il peut toutefois être compensé expérimentalement en estimant une post-correction à partir de la méthode des deux sources. L'étude conduit alors à **[65]** :

$$\theta_{corrigé} \cong 4.26 \times \theta$$

Compte tenu de l'incertitude sur l'approche expérimentale qui permet d'établir cette post-correction, on impose $\varepsilon = 2\%$ à $\theta_{max} = 10\%$. Les résultats obtenus sont alors nettement plus cohérents avec la mesure réalisée après 22 heures de décroissance :

Banc de mesure	r_N	$\frac{u(r_N)}{r_N}$	r_{dec}	$\frac{u(r_{dec})}{r_{dec}}$	r_θ	$\frac{u(r_\theta)}{r_\theta}$	r_{sat}	$\frac{u(r_{sat})}{r_{sat}}$	$\overline{r_{sat}}$	$\frac{u(\overline{r_{sat}})}{\overline{r_{sat}}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
N° 1 2026+PCA3	2.613	0.57%	1.003	0.001%	1.015	0.30%	2.661	0.65%	2.650	0.39%	1.2
	2.613	0.57%	1.005	0.001%	1.014	0.28%	2.663	0.64%			
	2.499	0.41%	1.043	0.005%	1.012	0.23%	2.638	0.48%			
N° 2 2026+PCA3	2.558	0.55%	9.970	0.001%	1.026	0.51%	2.617	0.75%	2.631	0.54%	0.58
	2.584	0.54%	9.956	0.001%	1.024	0.47%	2.635	0.72%			
	2.685	0.40%	9.592	0.005%	1.023	0.45%	2.635	0.60%			
N° 3 2026+PCA3	2.585	0.48%	9.970	0.001%	1.029	0.54%	2.651	0.73%	2.647	0.55%	0.55
	2.581	0.49%	9.954	0.001%	1.026	0.50%	2.636	0.70%			
	2.699	0.34%	9.587	0.005%	1.025	0.47%	2.651	0.58%			
N° 4 2026+PCA3	2.566	0.49%	1.003	0.001%	1.020	0.38%	2.625	0.62%	2.641	0.41%	1.2
	2.594	0.51%	1.004	0.001%	1.018	0.35%	2.652	0.62%			
	2.500	0.37%	1.043	0.005%	1.015	0.29%	2.644	0.47%			

Tab. 22 : rapports des taux de comptage à saturation du lanthane 140 (campagne B) après correction du biais lié à la correction de temps mort des chaînes de mesure 2026+PCA3

Enfin, l'analyse réalisée à partir des autres produits de fission (**Tab. 21**) montre une bonne reproductibilité de comptage dees différents radionucléides étudiés puisque le test de χ^2 bilatéral à 2 degrés de liberté n'est jamais rejeté. Par ailleurs, on constate que pour un certain nombre d'entre eux (yttrium 91 métastable, iode 132 et 135, cérium 143) les incertitudes de comptage sont comparables à celles obtenues pour le lanthane 140 ou le strontium 92, ce qui en font des candidats intéressants, en complément des 2 produits de fission « de référence ».

3.2 Transferts de rendement

Une fois l'analyse des taux de comptage à saturation réalisée, il faut calculer les transferts de rendement qui permettent de corriger la différence d'autoabsorption γ entre le combustible UMoAl, creux et de densité 9.93, et le combustible UO_2, plein et de densité 10.2. Les géométries des 4 bancs de mesure sont différentes mais basées sur la même configuration, schématisée ci-dessous :

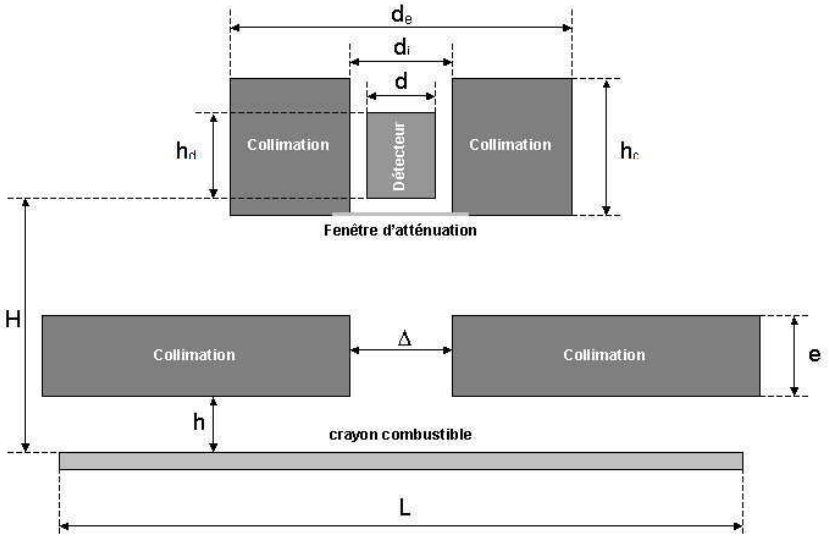

Fig. 58 : géométrie type des 4 bancs de mesure utilisés

Afin d'obtenir des taux de comptage équivalents entre les différents bancs de mesure, les distances crayon – détecteur et l'ouverture des fenêtres de collimation ont été adaptées en conséquence. Ainsi, à chaque banc est associé un jeu de paramètres géométriques (d, d_i, d_e, h_d, h_c, H, h, e, L, Δ). Les schémas de calcul de transfert de rendement comportent tous les éléments représentés ci-dessus. La description des crayons a été réduite à la portion centrale vue par le détecteur. En effet, une étude préliminaire **[65]** montre que plus de 97% des photons reçus par le détecteur et n'ayant subi aucune interaction depuis leur émission, proviennent d'un tronçon de longueur L égale à :

$$L = \frac{H\Delta + dh}{H - h}$$

Ensuite, d'après l'étude d'optimisation du maillage décrite dans le chapitre 2 de la partie II, la description de l'hétérogénéité des sources de photons dans le combustible peut s'affranchir totalement de la dépendance axiale du taux de fission, étant donné les faibles variations observées sur le tronçon vu par le détecteur (variation maximale de 7% entre le centre et les bords).

Pour la dépendance radiale, le maillage dépend de l'importance de l'autoabsorption γ et donc de l'énergie de la raie γ étudiée. En considérant une erreur de modélisation de 0.1%, cette même étude permet de déterminer le nombre optimum de couronnes isosurfaciques à considérer, à savoir :

Energie de la raie γ	Maillage du crayon UO_2	Maillage du crayon UMoAl
250 keV < E < 600 keV	4	4
900 keV < E < 1800 keV	2	2

Tab. 23 : maillage radial optimum pour la description de l'hétérogénéité des sources de photons

Ces distributions radiales de taux de fission sont estimées à partir d' un calcul APOLLO2, utilisant la bibliothèque JEF2.2 et décrivant le centre de MINERVE en géométrie 2 dimensions, sur une portion d' un huitième de cœur de 7x7 cellules. Ce schéma a été qualifié par comparaison à un calcul MCNP4C2 utilisant la même bibliothèque et décrivant toute la zone expérimentale en géométrie 3 dimensions **[65]**. Les hétérogénéités radiales obtenues par calcul sont alors les suivantes :

Rayon interne (mm)	Rayon externe (mm)	Probabilité ρ_i de fission par couronne
2.5	2.951	23.42%
2.951	3.345	23.83%
3.345	3.697	25.17%
3.697	4.019	27.58%

Rayon interne (mm)	Rayon externe (mm)	Probabilité ρ_i de fission par couronne
0	2.012	24.09%
2.012	2.845	24.62%
2.845	3.484	25.24%
3.484	4.022	26.05%

Tab. 24 : profil radial des sources γ dans le combustible UMoAl (*à gauche*) et UO_2 (*à droite*)

Ces profils sont ensuite insérés dans les schémas MCNP4C2 de transport γ décrivant la géométrie complète du banc de mesure (cf. partie II, chapitre 1, section §5.3) Afin de vérifier la validité du maillage à 4 couronnes, un calcul plus détaillé à 20 couronnes est également réalisé puis inséré dans les mêmes schémas MCNP4C2 pour s' assurer que l' écart obtenu est inférieur à 0.1%. Pour éviter de réaliser des calculs redondants, on vérifiera aussi l' indépendance du rapport $r_{\eta(E)}$ au banc de mesure utilisé, en observant sur un cas particulier enveloppe, l' influence de la géométrie de mesure (type de détecteur, épaisseur des collimations, distance du crayon au détecteur).

A titre de comparaison, le calcul des rapports de transferts de rendement ont été repris avec l' ancienne approche qui consistait à calculer le flux de photonsissu d' un crayon décrit en géométrie réelle, rapporté au flux de photons issu du même crayon, fictivement vide **[88]**. Deux géométries de calcul étaient alors envisagées :

- une géométrie « type A », où l' on ne décrivait que le crayon combustible et où l' on estimait le flux de photons émis dans tout l' espace,
- une géométrie « type B », où l' on décrivait le crayon combustibleet un cylindre représentant le cristal de germanium, et où l' on estimait le flux de photons entrant dans le détecteur.

Pour cette étude comparative, on considère le cas du cérium 143 dont la raie γ à 293.3 keV est la plus sensible au phénomène d' autoabsorption γ :

Type de calcul	Maillage radial du combustible	Banc de mesure	Géométrie de calcul	$r_{\eta(E)}$	$\left.\frac{u(r_{\eta(E)})}{r_{\eta(E)}}\right\|_{MC}$
Nouvelle approche	4	N°1	complète	1.504	0.23%
	4	N°2	complète	1.501	0.23%
	4	N°3	complète	1.504	0.23%
	4	N°4	complète	1.502	0.23%
	20	N°4	complète	1.503	0.28%
Ancienne approche	4	N°4	type B	1.505	0.20%
	4	N°4	type A	1.552	0.05%

Tab. 25 : étude comparative des schémas de calcul de transfert de rendement (raie à 293.3 keV)

Conformément à l' étude d' optimisation du maillage, on observe que le rapport $r_{\eta(E)}$ calculé pour une discrétisation à 20 couronnes diffère de moins de 0.1% de l' approche à 4 couronnes. Ce rapport est également identique, à l' incertitude de convergence près, entre les bancs de mesure n°1 et n°4. Le rapport $r_{\eta(E)}$ caractérise donc bien la différence d' autoabsorption γ entre les deux crayons et s' avère donc indépendant du banc et du détecteur considéré. De ce fait, les résultats obtenus à partir du calcul de dépôt d' énergie ou de flux sont rigoureusement identiques, ce qui valide l' ancienne approche pour ce type de mesure.

En revanche, le calcul simplifié qui consiste à ne décrire que le crayon combustible et à estimer une autoabsorption γ « intégrale », à partir des photons émis dans toutes les directions de l' espace, conduit à des écarts de plus de 3%. Ce type de calcul n' est pas représentatif du cas réel puisqu' il tient compte des photons émis parallèlement à l' axe du crayon et qui n' atteignent jamais le détecteur sans perte d' énergie. Or ces photons traversent une épaisseur plus importante de combustible que ceux qui sont émis perpendiculairement ce qui tend à sur-estimer l' autoabsorption γ, surtout pour le crayon UO_2 qui est plein, d' où une valeur de $r_{\eta(E)}$ plus élevée.

En conclusion, les rapports de transferts de rendement peuvent être déterminés d' après un seul des bancs de mesure mais doivent s' appuyer sur la description exacte de sa géométrie. Les valeurs obtenues pour toutes les raies γ étudiées sont alors les suivantes :

E (keV)	$r_{\eta(E)}$	$\frac{u(r_{\eta(E)})}{r_{\eta(E)}}$
293.3	1.504	0.80%
555.6	1.197	0.44%
954.6	1.106	0.31%
1236.0	1.084	0.29%
1260.4	1.083	0.28%
1383.9	1.077	0.28%
1398.5	1.076	0.28%
1596.2	1.069	0.28%
1678.0	1.067	0.28%
1706.5	1.067	0.28%
1791.2	1.066	0.28%
1836.0	1.065	0.28%

Tab. 26 : synthèse des calculs de rapports de transferts de rendement

3.3 Rendements effectifs de fission

Pour déterminer le facteur de recalage, il reste à corriger les rapports d' activités par le rapport des rendements effectifs de fission. Il s' agit tout d' abord de déterminer les probabilités de fission par isotope fissionnable τ_i qui pondèrent les données nucléaires associées. Ces termes sont estimés à partir du schéma de calcul APOLLO2 utilisé pour le calcul de l' hétérogénéité des sources de photons, après qualification à k = 2 par rapport à un calcul de référence MCNP4C2. Compte tenu de la faible abondance en isotope 234 et 236 dans le crayon V et les crayons U1, U2 et U3 (contribution au taux de fission total inférieur à 0.02%), seuls l' uranium 235 et 238 sont considérés :

	Crayon UMoAl		Crayon U1 et U2		Crayon U3	
Groupe d'énergie	uranium 235	uranium 238	uranium 235	uranium 238	uranium 235	uranium 238
thermal	95.90%	< 0.01%	92.24%	<0.01%	92.38%	<0.01%
fast	2.69%	1.33%	1.63%	5.86%	1.60%	5.74%
high	0.03%	0.06%	0.02%	0.27%	0.01%	0.26%

Tab. 27 : probabilités de fission par isotope fissionnable

La probabilité de fission de l'uranium 238 est légèrement plus élevée pour les crayons U1 et U2 que pour le crayon U3, car le crayon V induit un durcissement local du spectre, du fait de son fort enrichissement en uranium 235. Néanmoins, comme cet écart est faible (0.13%), son influence sur le rendement effectif est négligeable (< 0.1%) et on pourra considérer que le rapport r_Y est indépendant du crayon UO_2 choisi.

De même que précédemment, le calcul APOLLO2 est repris sur la base d'un maillage à deux groupes d'énergie séparés à 1 keV, tel que préconisé par le passé **[43]**, afin d'estimer l'influence de la nouvelle méthode de calcul des rendements effectifs de fission. La synthèse des résultats obtenus à partir des données JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 (cf. **Annexe B**), est donnée ci-dessous :

Produit de fission	Ancienne approche						Nouvelle approche					
	JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1		JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1	
	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$
rubidium 88	1.020	12.2%	1.020	2.77%	1.017	2.62%	1.020	0.36%	1.020	0.10%	1.017	0.19%
yttrium 91m	1.013	1.82%	1.014	9.85%	1.013	1.28%	1.013	0.04%	1.014	0.08%	1.013	0.13%
strontium 92	1.014	7.46%	1.013	1.95%	1.013	1.56%	1.014	0.18%	1.013	0.12%	1.013	0.15%
iode 132	0.992	1.40%	0.992	1.91%	0.996	1.39%	0.992	0.13%	0.992	0.11%	0.996	0.20%
iode 133	0.999	1.89%	0.995	1.98%	0.999	2.20%	0.999	0.33%	0.995	0.12%	0.999	0.18%
iode 135	0.998	4.07%	0.995	1.98%	0.999	4.67%	0.998	0.41%	0.995	0.12%	0.999	0.25%
lanthane 140	1.003	1.67%	1.003	1.37%	1.002	2.03%	1.003	0.31%	1.003	0.05%	1.002	0.08%
cérium 143	1.008	10.2%	1.010	1.92%	1.009	1.91%	1.008	0.46%	1.010	0.07%	1.009	0.10%

Tab. 28 : rapports des rendements effectifs de fission entre les combustibles UMoAl et UO_2

On constate que ni le choix de l'approche à deux ou à trois groupes d'énergie, ni le choix d'une coupure *thermal* / *fast* à 1 keV ou à 9.118 keV, n'a d'influence sur le calcul des rapports de rendements de fission. La comparaison des résultats obtenus à partir des trois bibliothèques montre également une faible influence (< 0.5%).

En revanche, on remarque de fortes disparités sur les incertitudes calculées d'après les deux approches. Ces rapports sont tous proches de 1 puisque les combustibles UMoAl et UO_2 sont tous deux constitués d'uranium et ne diffèrent que par leur vecteur isotopique. Les rendements de fission associés à chacun sont donc très fortement corrélés et le calcul d'incertitude réalisé auparavant, en considérant une simple somme quadratique des contributions individuelles, conduit à des valeurs pénalisantes de l'incertitude sur le facteur de recalage. La nouvelle approche, qui tient compte de l'incertitude sur la connaissance du bilan isotopique et des corrélations entre les données nucléaires utilisées, permet alors d'atteindre des incertitudes réduites et mieux maîtrisées qu'auparavant.

3.4 Synthèse des facteurs de recalage mesurés

A partir des données présentées dans les trois précédents paragraphes, on en déduit les facteurs de recalage de taux de fission, obtenus à partir des différents radionucléides mesurés. Les tableaux suivants présentent la synthèse des résultats obtenus avec les données nucléaires issues de JEFF3.1 :

Produit de fission	Raie γ étudiée	Banc de mesure	$r_{F,1}$	$\frac{u(r_{F,1})}{r_{F,1}}$	$r_{F,2}$	$\frac{u(r_{F,2})}{r_{F,2}}$	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$
rubidium 88	1836.0 keV	N°2	2.446	3.32%	2.442	2.78%	2.465	4.05%
		N°3	2.411	1.66%	2.377	2.81%	2.408	3.16%
		N°4	2.419	0.97%	2.386	0.83%	2.466	0.97%
yttrium 91m	555.6 keV	N°2	2.426	0.94%	2.394	0.92%	2.458	0.94%
		N°3	2.386	2.04%	2.381	1.57%	2.471	0.90%
		N°4	2.424	1.51%	2.423	0.62%	2.504	0.63%
strontium 92	1383.9 keV	N°2	2.368	0.65%	2.374	0.68%	2.432	0.67%
		N°3	2.394	0.63%	2.344	0.61%	2.442	0.65%
		N°4	2.392	0.41%	2.377	0.40%	2.442	0.52%
iode 135	1260.4 keV	N°2	2.373	1.15%	2.356	1.14%	2.439	1.15%
		N°3	2.404	1.09%	2.404	1.08%	2.437	1.07%
		N°4	2.376	0.61%	2.385	0.61%	2.468	0.61%

Tab. 29 : synthèse des facteurs de recalage de taux de fission mesurés (campagne A)

Produit de fission	Raie γ étudiée	Banc de mesure	$r_{F,1}$	$\frac{u(r_{F,1})}{r_{F,1}}$	$r_{F,2}$	$\frac{u(r_{F,2})}{r_{F,2}}$	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$
lanthane 140	1596.2 keV	N°1	2.403	0.48%	2.400	0.48%	2.474	0.49%
		N°2	2.381	0.58%	2.383	0.59%	2.455	0.62%
		N°3	2.399	0.59%	2.396	0.58%	2.471	0.63%
		N°4	2.380	0.49%	2.389	0.49%	2.465	0.51%

Tab. 30 : synthèse des facteurs de recalage de taux de fission mesurés (campagne B)

Produit de fission	Raie γ étudiée	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$
yttrium 91m	555.6 keV	2.500	0.54%
strontium 92	1383.9 keV	2.426	0.99%
iode 132	954.6 keV	2.472	0.90%
	1398.6 keV	2.515	1.73%
iode 133	1236.4 keV	2.434	1.65%
iode 135	1260.4 keV	2.474	0.55%
	1678.0 keV	2.486	0.84%
	1706.5 keV	2.482	0.95%
	1791.2 keV	2.475	0.82%
lanthane 140	1596.2 keV	2.487	0.65%
cérium 143	293.3 keV	2.503	1.15%

Tab. 31 : synthèse des facteurs de recalage de taux de fission mesurés (campagne C)

A partir de chacun des tableaux, on peut constater que les résultats obtenus entre les différents produits de fission sont tous compatibles à $k = 2$ avec la moyenne pondérée des résultats. La bonne cohérence entre les facteurs de recalage mesurés à partir de la raie γ à 293.3 keV du cérium 143 et de la raie γ à 1791.2 keV de l' iode 135 tend à prouver la validité des calculs detransfert de rendement puisque la correction atteint 50% dans le premier cas et moins de 7% dans le second.

Par ailleurs, compte tenu des incertitudes de comptage associées à chaque produit de fission, aucune dépendance au banc de mesure ni à l' électronique utilisée nepeut être mise en évidence ce qui tend à valider les réglages des circuits de rejet d' empilements ainsi que le calcul des post-corrections appliquées aux mesures de lanthane 140 sur les chaînes 2026+PCA3.

De ce fait, les résultats peuvent être combinés entre les différents bancs, électroniques de mesure et raies γ d' un même produit de fission en les pondérant selon la relation **(53),** par les incertitudes à caractère non corrélé, à savoir le comptage et la convergence des calculs Monte-Carlo. Le tableau suivant donne les facteurs de recalage obtenus par produit de fission, à partir des données nucléaires issues de JEFF3.1 :

Produit de fission	$r_{F,1}$	$\frac{u(r_{F,1})}{r_{F,1}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$	$r_{F,2}$	$\frac{u(r_{F,2})}{r_{F,2}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
rubidium 88	2.419	1.31%	0.075	2.389	1.25%	0.33	2.461	1.41%	0.27
yttrium 91m	2.420	1.25%	0.29	2.411	0.89%	0.94	2.494	0.61%	2.1
strontium 92	2.387	0.58%	1.0	2.368	0.57%	1.9	2.439	0.54%	0.25
iode 132	-	-	-	-	-	-	2.480	1.23%	0.81
iode 133	-	-	-	-	-	-	2.434	1.65%	-
iode 135	2.381	0.84%	0.49	2.383	0.84%	0.84	2.470	0.53%	0.76
lanthane 140	2.391	0.58%	0.94	2.393	0.58%	0.34	2.468	0.47%	1.1
cérium 143	-	-	-	-	-	-	2.503	1.15%	-

Tab. 32 : synthèse par produit de fission des facteurs de recalage mesurés

Le test du χ^2 n' étant jamais rejeté, on peut conclure que l' incertitude sur l' estimation de l' écart-type obtenu à partir de s_{ext}^2 ne permet pas d' admettre de différence entre la variancethéorique et la variance estimée à partir de u_{int}^2. Autrement dit, les incertitudes associées aux résultats obtenus sur les différents bancs et à partir des différentes raies γ, sont compatibles avec la dispersion observée.

La dernière étape consiste à combiner les résultats associés à tous les produits de fission étudiés selon la relation **(55)**. La même démarche que celle décrite ci-dessus est également reprise dans le cas où l' on utilise les bibliothèques JEF2.2 et ENDF/B-VI.8 pour le calcul des rendements effectifs de fission. Le tableau de synthèse final est alors le suivant :

Bibliothèque	$r_{F,1}$	$\frac{u(r_{F,1})}{r_{F,1}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$	$r_{F,2}$	$\frac{u(r_{F,2})}{r_{F,2}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
JEF2.2	2.393	0.69%	0.72	2.387	0.67%	1.2	2.469	0.57%	2.5
ENDF/B-VI.8	2.391	0.56%	0.99	2.386	0.54%	1.6	2.468	0.45%	2.7
JEFF3.1	2.391	0.57%	0.59	2.386	0.56%	1.2	2.467	0.47%	2.3

Tab. 33 : synthèse finale des facteurs de recalage mesurés

On observe que le facteur de recalage moyen est indépendant du choix de la bibliothèque de données nucléaires à 0.1% près. Dans le cas du recalage réalisé à partir du crayon U3, où l'on dispose de davantage de résultats de mesure et donc d'incertitudes à caractère non corrélé plus faibles, l'écart du χ^2 / ν par rapport à 1 provient presque exclusivement du strontium 92 qui s'écarte de la valeur moyenne d'un peu plus que $k = 2$. Le test de χ^2 bilatéral à 7 degrés de liberté est par conséquent rejeté puisque la limite supérieure, pour un risque de première espèce de 5%, est de 2.28. Cet écart, imputable à une erreur sur l'évaluation de la période radioactive du strontium 92, sera discuté plus en détails dans la partie V et conduit à écarter, pour le moment, les résultats de mesure obtenus à partir de ce radionucléide. Les facteurs de recalage moyens, recalculés sans le strontium 92 sont les suivants :

Bibliothèque	$r_{F,1}$	$\frac{u(r_{F,1})}{r_{F,1}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$	$r_{F,2}$	$\frac{u(r_{F,2})}{r_{F,2}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$	$\frac{\chi^2}{\nu}$
JEF2.2	2.395	0.76%	0.91	2.395	0.76%	0.45	2.475	0.66%	1.0
ENDF/B-VI.8	2.393	0.65%	1.3	2.394	0.63%	0.8	2.474	0.54%	1.6
JEFF3.1	2.393	0.64%	0.59	2.394	0.65%	1.2	2.474	0.56%	1.1

Tab. 34 : synthèse finale des facteurs de recalage mesurés (sans le strontium 92)

4 INTERPRETATION

L'interprétation des mesures de recalage de taux de fission est réalisée à partir du schéma de calcul de référence MCNP4C2 décrivant le réacteur MINERVE en géométrie réelle trois dimensions (**Fig. 59**) et utilisant les bibliothèques de données nucléaires JEF2.2, ENDF/B-VI.8 ou JEFF3.1.

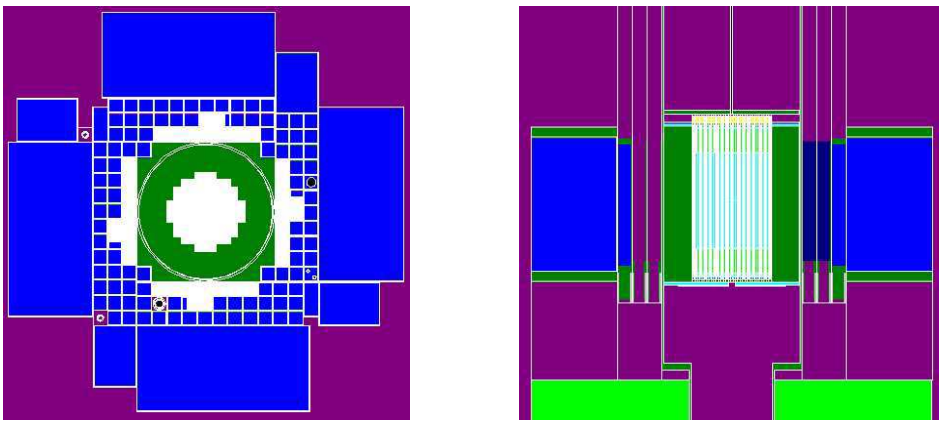

Fig. 59 : géométrie du schéma de calcul MCNP4C2 décrivant le réacteur MINERVE. Coupe axiale (*à gauche*) et radiale (*à droite*)

Le profil radial de taux de fission, dont la représentation est donnée ci-après (**Fig. 60**), montre la perturbation locale induite par le crayon V au centre du réseau et le mode fondamental caractéristique d'un réseau UO_2 homogène qui s'établit autour, proche d'un profil de type $J_o(Kr)$. L'incertitude sur le calcul du facteur de recalage est estimée en tenant compte de :

- la convergence statistique de l'approche Monte-Carlo : un calcul d'une durée de 24 heures et utilisant 31 processeurs permet d'atteindre une incertitude inférieure à 0.5%,
- la teneur massique en uranium contenue dans les pastilles d'UO_2 (connue à 0.9% **[86]**) et d'UMoAl (connue à 0.1% **[87]**).

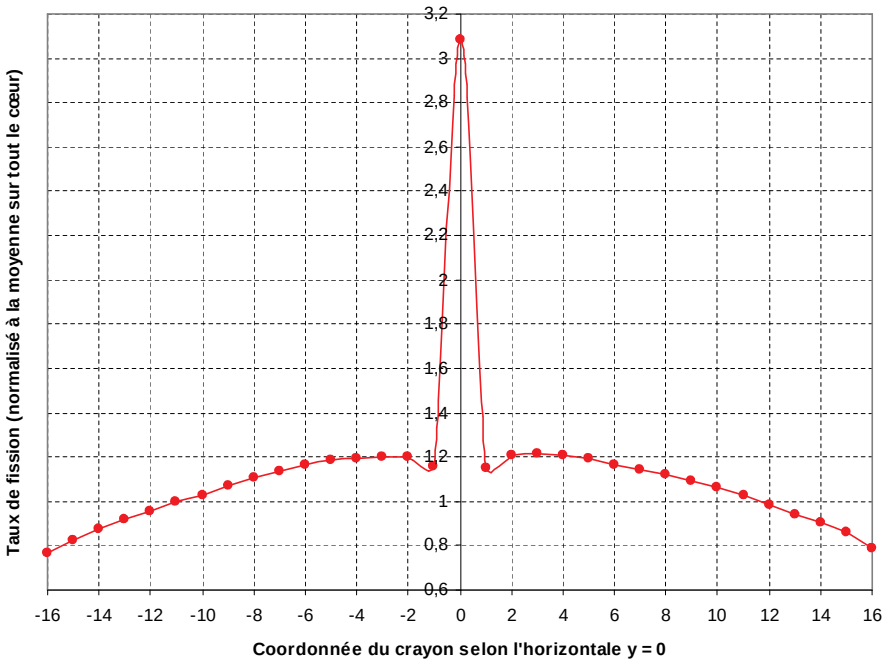

Fig. 60 : profil radial de taux de fission (y = 0) calculé par MCNP4C2 + JEFF3.1

La comparaison des facteurs de recalage de taux de fission mesurés par rapport aux valeurs calculées est présentée ci-dessous :

	V / U1		V / U2		V / U3	
Bibliothèque	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
JEF2.2	0.998	1.30%	1.009	1.30%	0.976	1.25%
ENDF/B-VI.8	1.003	1.30%	1.014	1.30%	0.978	1.25%
JEFF3.1	1.004	1.30%	1.007	1.30%	0.978	1.25%

Tab. 35 : comparaison calcul / expérience des facteurs de recalage de taux de fission

On note tout d' abord une faible dépendance des résultats au choix de la bibliothèque de données nucléaires. En effet, les différences d' évaluation des sections efficaces de fission de l' uranium 235 et 238 entre JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1, sont pratiquement annulées par les effets de corrélation qui existent entre le numérateur et le dénominateur du rapport r_F, puisque le taux de fission total des 4 crayons est dominé par la contribution thermique de l' uranium 235 (**Tab. 27**).

Ensuite, la comparaison des facteurs de recalage mesurés et calculés pour les trois crayons de normalisation, montre une cohérence à $k = 2$ avec l' unité. Néanmoins, un écart plus important est obtenu pour le crayon U3 ($\cong$ 2.3%). Celui-ci est significatif car l' incertitude sur la teneur massique des pastilles UO_2 est totalement corrélée entre les différents crayons. Il pourrait provenir d' erreurs systématiques de modélisation sur la représentation du réseau. En effet, le massif dans lequel sont insérés les crayons combustibles est susceptible de présenter des défauts d' arcure compte tenu de son ancienneté (plus de 40 ans). De plus, le panier central (3×3 cellules) est amovible pour permettre l' introduction d' un crayon ou d' une canne dédiée aux mesures par oscillation. Son insertion peut présenter un jeu mécanique de quelques dixièmes de millimètres conduisant à une dissymétrie de la lame d' eau **[89]** et à des variations locales de quelques pourcents du taux de fission **[90]**.

Ces résultats montrent que des études complémentaires seraient nécessaires pour caractériser précisément la géométrie du massif et/ou des crayons, afin de progresser sur l'interprétation des écarts C / E obtenus pour le recalage de taux de fission du crayon UMoAl

5 CONCLUSION

Ce chapitre était consacré à la qualification expérimentale de la distribution radiale de taux de fission, obtenue pour un réseau homogène de crayons UO_2 perturbé par un crayon UMoAl introduit en son centre. Il a permis d'appliquer les méthodologies de traitement des données brutes et de propagation des incertitudes développées dans les chapitres 2 et 3 de la partie II à la mesure du facteur de recalage de taux de fission. Les principales innovations par rapport au passé sont les suivantes :

- la comparaison des résultats obtenus dans des conditions expérimentales différentes a permis l'**identification d'erreurs respectives de 1 et 12% sur les mesures de lanthane 140 et de strontium 92, réalisées avec les anciennes électroniques (2026+PCA3).**
- l'utilisation de chaînes de mesure optimisées pour la correction de temps mort (DSP+PCA3 et 2024+MP2) conduit à une **cohérence à $k = 2$ des facteurs de recalage obtenus à partir de 10 autres raies γ de produits de fission qui jusqu'alors n'avaient jamais été étudiées**. En particulier, l'étude conduit, pour la toute première fois, à un accord d'environ 1% entre les mesures réalisées à partir du lanthane 140 et du strontium 92 (contre 5% par le passé **[43]**).
- la combinaison des résultats obtenus à partir de différents radionucléides, bancs de mesure et raies γ ainsi qu'une propagation rigoureuse des variances, notamment sur le rapport des rendements effectifs de fission, conduit à une **incertitude réduite d'un facteur 3 par rapport au passé sur le facteur de recalage de taux de fission [43]** (soit environ 0.7%).

In fine, l'étude réalisée ouvre des perspectives nouvelles sur la mise en œuvre de ce type de mesure. L'utilisation d'autres produits de fission que le lanthane 140, considéré jusqu'à présent comme « référence », offre plus de souplesse dans la réalisation des expériences (i.e. réduction des durées de mesure pour la même incertitude de comptage). Enfin, la liste des radionucléides étudiés au cours de ce chapitre n'étant pas exhaustive, il existe une possibilité supplémentaire de réduire les incertitudes en utilisant d'autres produits de fission, comme le strontium 91, le ruthénium 103, ou l'iode 131.

CHAPITRE 2 :
MESURE DE PROFIL AXIAL DE TAUX DE FISSION TOTAL SUR CRAYON COMBUSTIBLE

1 INTRODUCTION

En complément des études de distribution radiale de puissance présentées dans le chapitre précédent, la mesure du profil axial de taux de fission total (proportionnel à la puissance neutronique) constitue un enjeu majeur permettant de caractériser un assemblage critique. La fuite des neutrons, combinée aux effets de migration du xénon 135 vers le haut des assemblages industriels, doit être prédite avec précision par le calcul pour l'optimisation des cycles et la gestion des combustibles usés.

Pour cela, les maquettes critiques du SPEx sont bien adaptées et permettent de qualifier les formulaires de calcul sur des expériences « idéales », proches du mode fondamental. Le profil axial est alors assimilable à un cosinus, caractérisé par son laplacien géométrique axial B_z^2. Différentes techniques de mesure peuvent être employées pour déterminer ce paramètre fondamental :

- *mesure par activation*, par insertion de détecteurs de type feuille entre les pastilles de combustible d'un crayon, puis mesurage de l'activité β ou γ des radionucléides créés,
- *mesure par chambre à fission*, par translation d'un détecteur contenant un isotope fissionnable à l'intérieur d'un canal dédié, puis en mesurant le taux de comptage obtenu,
- *mesure par spectrométrie γ sur combustible*, en mesurant en différentes portions du crayon l'activité γ intégrale post-irradiation due aux produits de fission créés.

Ces techniques de mesure sont complémentaires et peuvent être combinées lorsqu'elles sont représentatives du même mesurande. Par le passé, les laplaciens géométriques axiaux obtenus pour des cœurs homogènes ont montré des écarts allant de 1 à 4% entre les deux dernières techniques, parfois incompatibles avec les incertitudes associées (exemples : MISTRAL 1 **[91]** et MISTRAL 2 **[92]**).

Afin d'identifier et de corriger des sources d'erreurs systématiques potentielles, ce chapitre est consacré à une analyse critique de la technique de spectrométrie γ intégrale appliquée à la mesure d'une distribution axiale de taux de fission total. Il répond à 4 objectifs :

- **valider la configuration géométrique du banc de spectrométrie γ dédié**, en particulier son aptitude à bien collimater le flux total issu du combustible à une portion de largeur donnée,
- **qualifier la technique de mesure par spectrométrie γ intégrale** par rapport à la technique de de pic particulier, en comparant les deux mesures de profil réalisées sur un même crayon,
- **figer une méthode de traitement des profils axiaux**, permettant de déduire le laplacien géométrique axial B_z^2.
- **quantifier l'apport des électroniques DSP en terme d'erreur systématique,** en étudiant l'influence du biais commis par les anciennes chaînes de mesure sur le laplacien B_z^2.

2 ETUDE DU BANC DE MESURE PAR CALCUL MONTE-CARLO

Cette section vise à vérifier la représentativité de la distribution axiale mesurée, c'est-à-dire que le profil d'activité γ vu par le détecteur est cohérent avec le profil de taux de fission total dans le combustible. Pour cela, la simulation Monte-Carlo constitue un outil particulièrement adapté.

2.1 Schéma de calcul MCNP du banc de mesure axial

Le banc de mesure permettant la translation axiale d'un crayon face au détecteur a été décrit dans un schéma de calcul MCNP4C2 incluant le détecteur, les écrans d'atténuation, les blocs de collimation et de protection biologique en plomb, le crayon combustible et son support (**Fig. 62**). Pour cette étude, un crayon EOLE, de colonne fissile longue de 800 mm, a été considéré. On note z_o le décalage entre l'axe de symétrie du détecteur et le plan médian du combustible.

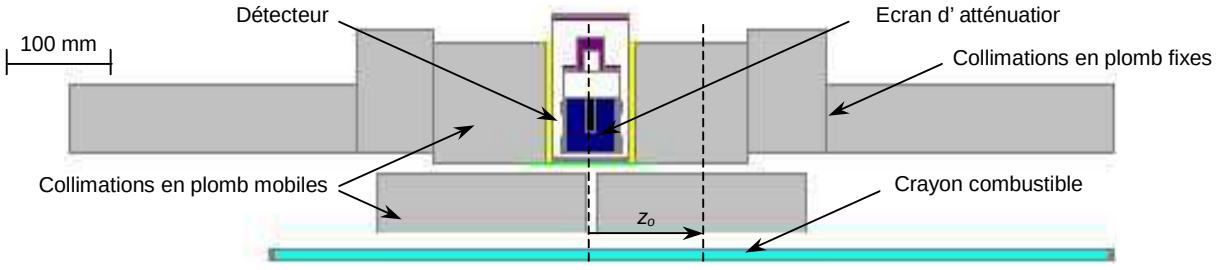

Fig. 61 : coupe selon X du banc de mesure simulé par MCNP

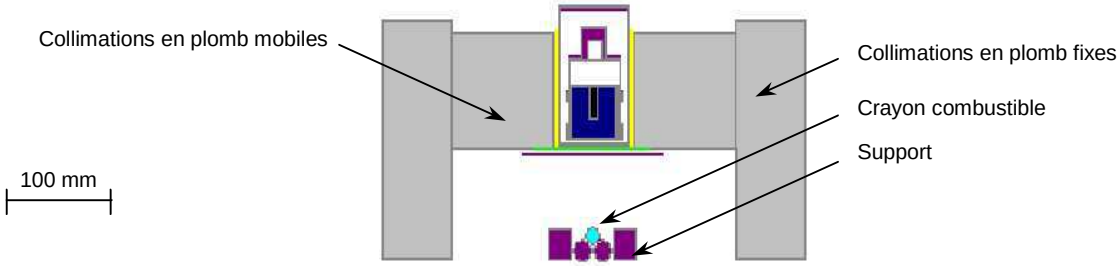

Fig. 62 : coupe selon Z du banc de mesure simulé par MCNP

Pour simuler l'expérience réelle, on doit au préalable estimer le spectre d'émission de raies γ provenant, pour la plupart, des produits de fission à vie courte. Pour cela, on exploite les 60 pics les plus intenses obtenus sur des spectres réels. Les surfaces nettes mesurées doivent ensuite être corrigées des rendements d'absorption totale pour remonter au flux d'émission associé à chaque raie γ. L'étude menée au chapitre 2 de la partie II a permis de montrer l'adaptation du code MCNP4C2 à calculer les courbes de rendement avec une erreur inférieure à 3%. Un étalonnage relatif avec une incertitude de 10% étant suffisant pour les besoins de l'étude, le schéma de calcul est utilisé pour simuler la réponse en rendement du détecteur. A partir des quelques énergies réparties de façon ad-hoc, la loi suivante est ajustée aux valeurs calculées (avec E_o = 1750 keV):

$$\log R^P(E) = -0.3908\left(\log\frac{E}{E_o}\right)^3 - 0.7477\left(\log\frac{E}{E_o}\right)^2 - 0.6136\left(\log\frac{E}{E_o}\right) - 4.1761$$

Une fois les surfaces nettes corrigées des rendements, on obtient un histogramme en énergie, tel que représenté ci-dessous (**Fig. 63**), qu' on insère dans la définition de la source de photons :

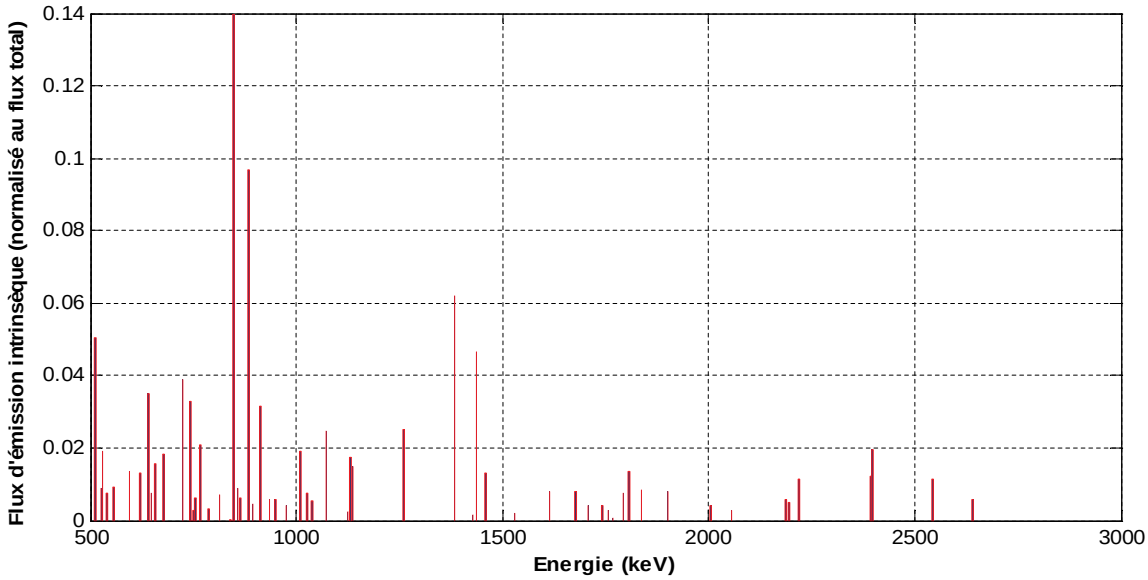

Fig. 63 : spectre des principales raies γ d' un crayon combustible, deux heures après irradiation

Un profil en cosinus est imposé axialement selon un maillage à 500 tranches de 1 mm avec un laplacien géométrique axial B_z^2 de 10^{-5} mm^{-2} (ordre de grandeur représentatif du cas réel). A noter que la technique de mesure employée consiste à prendre en compte tous les évènements qui interviennent dans le détecteur. Ainsi, aucun biaisage sur la direction d'émission des photons ne peut être réalisé sans nuire à la généralité du problème (diffusions sur les matériaux du banc, fluorescence).

2.2 Comparaison du profil mesuré au profil réel

Ce schéma de calcul est ensuite utilisé pour estimer le dépôt d' énergie total dans le détecteur pour différents positionnements axiaux du combustible. Le résultat calculé pour un décalage z_o est ensuite comparé au profil réel utilisé dans la définition de la source de photons. La simulation de 10^9 particules est nécessaire pour obtenir une convergence statistique à 0.5%. Le tableau suivant synthétise les écarts entre le profil réel et le profil mesuré, pour différents décalages z_o :

Décalage z_o (mm)	$F_{réel}(z_o)$	$F_{mesuré}(z_o)$	$\frac{F_{mesuré}(z_o)-F_{réel}(z_o)}{F_{réel}(z_o)}$
150	0.890	0.889	(-0.10 ± 0.25)%
250	0.703	0.704	(0.02 ± 0.46)%
300	0.583	0.581	(-0.33 ± 0.45)%
330	0.503	0.496	(-1.50 ± 0.23)%
350	0.448	0.432	(-3.50 ± 0.29)%
370	0.390	0.363	(-7.10 ± 0.31)%
380	0.361	0.326	(-9.60 ± 0.32)%
390	0.331	0.277	(-16.30 ± 0.34)%

Tab. 36 : comparaison au profil réel du profil axial mesuré sur le banc de référence

Si pour des décalages inférieurs à 300 mm, le profil vu par le détecteur est conforme au profil réel, à l'incertitude de convergence du calcul près, une sousestimation du profil atteignant 16% est observée au-delà de cette limite. Pour interpréter cet écart, on utilise une fonctionnalité du code qui permet de connaître le lieu d'émission des photons qui contribuent au dépôt d'énergie :

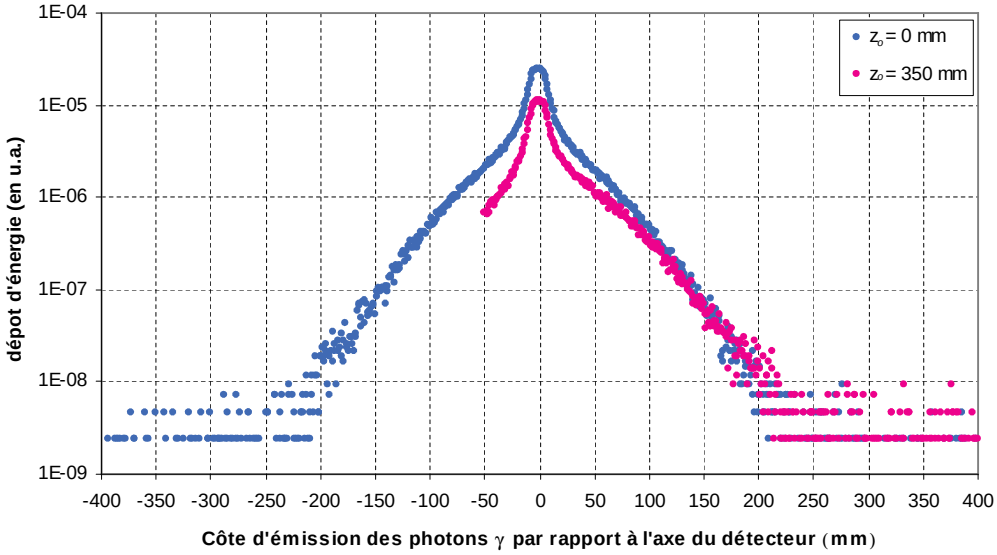

Fig. 64 : provenance axiale des photons contribuant au dépôt d'énergie dans le détecteur

La figure ci-dessus montre qu'en dépit d'une ouverture de collimation de 10 mm, seule une partie des évènements créés dans le détecteur est due à des photons émis par la tranche de combustible de 10 mm (environ 26%), le restant étant dû à des photons dont l'énergie est suffisante pour atteindre le détecteur suite à de multiples diffusions Compton. De ce fait, l'activité $A(z_o)$ mesurée pour un décalage de combustible z_o, peut être assimilé à la convolution du profil de taux de fission par une fonction d'élargissement $\Psi(z)$ qui caractérise la résolution spatiale du banc de mesure :

$$A(z_o) = \int_{z=-H/2+z_0}^{H/2+z_0} \cos(B_z(z-z_o))\Psi(z)dz$$

Pour des décalages suffisamment faibles (z_o < 300 mm), l'intégrale de la fonction $\Psi(z)$ sur toute la longueur du combustible est pratiquement constante et l'activité vue par le détecteur est directement proportionnelle au taux de fission du tronçon visé. En revanche, pour des décalages plus élevés, il apparaît des effets de bord et l'intégrale de la fonction $\Psi(z)$ devient plus petite que pour un combustible centré par rapport au détecteur. En effet, pour atteindre 95% du dépôt d'énergie total, il faut considérer une longueur de combustible d'au moins 85 mm de part et d'autre de l'axe du détecteur. Aussi, dès que le décalage dépasse les 300 mm, une sous-estimation du profil réel apparaît.

Autrement dit, la mesure telle que réalisée par le passé n'était pas nécessairement représentative du profil axial réel de taux de fission du crayon combustible. La quantification des erreurs commises sur la mesure du B_z^2 sera discutée dans la section §4 de ce chapitre. Différentes solutions vont être étudiées pour remédier à ce dimensionnement non optimal du banc de mesure :

- la fabrication d'une collimation permettant d'améliorer la résolution spatiale du banc,
- le recours à la spectrométrie γ de pic particulier à partir d'une raie γ de faible énergie telle que la probabilité de traverser les 50 mm de la collimation mobile est négligeable (E < 500 keV).

2.3 Optimisation de la géométrie du banc de mesure

La solution la plus facile à mettre en œuvre et la moins coûteuse consisterait à fabriquer un cylindre en plomb (idéalement en tungstène) de diamètre 80 mm et de hauteur 100 mm, fendu en son centre sur 10×50 mm, interposé entre le détecteur et la fenêtre de collimation existante (**Fig. 65**) :

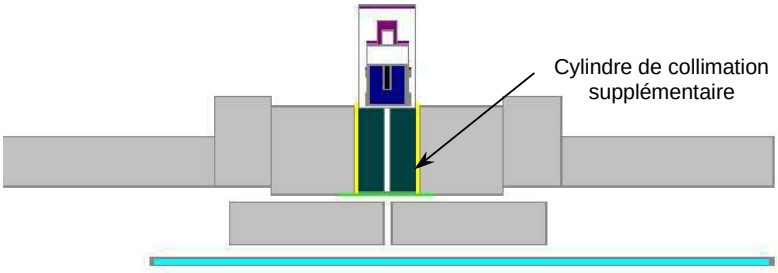

Fig. 65 : banc de mesure optimisé simulé par MCNP

On reprend l'étude précédente à partir de cette nouvelle géométrie de banc et on évalue, pour un décalage $z_o = 0$, le gain obtenu en résolution spatiale par rapport au banc de référence :

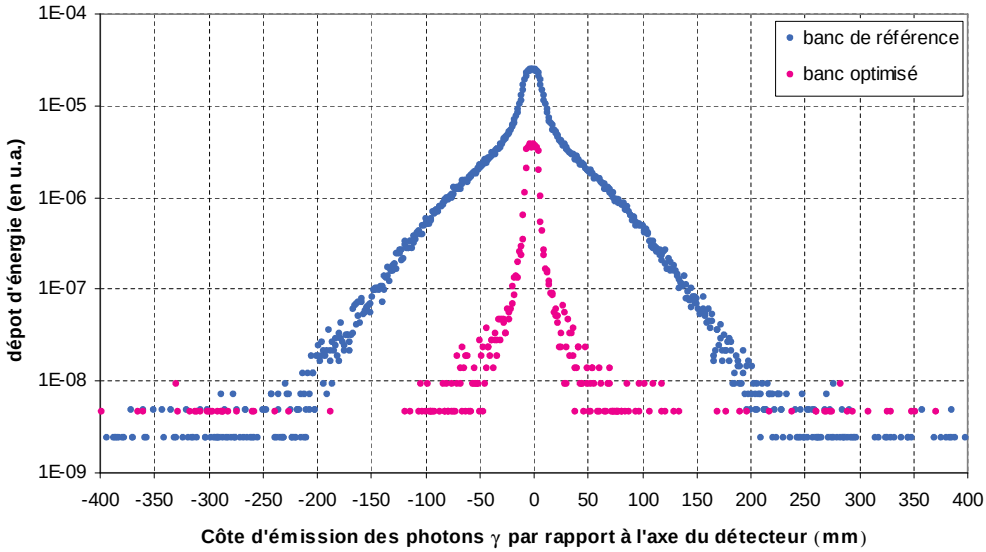

Fig. 66 : comparaison des résolutions spatiales des bancs de mesure (combustible à $z_o = 0$)

Grâce à l'ajout de la collimation cylindrique, 67% du dépôt d'énergie total est dû aux photons provenant du tronçon de 10 mm face au détecteur, contre 26% auparavant. L'amélioration de la résolution spatiale conduit alors à un meilleur accord entre le profil réel et mesuré :

Décalage z (mm)	$F_{réel}(z)$	$F_{mesuré}(z)$	$\frac{F_{mesuré}(z)-F_{réel}(z)}{F_{réel}(z)}$
250	0.703	0.702	(-0.12 ± 0.58)%
350	0.448	0.450	(0.52 ± 0.68)%
370	0.391	0.393	(0.77 ± 0.71)%
380	0.361	0.360	(-0.10 ± 0.74)%
390	0.331	0.327	(-1.25 ± 0.76)%

Tab. 37 : comparaison au profil réel du profil axial mesuré sur le banc optimisé

Le profil mesuré est donc représentatif du profil réel jusqu' à environ 20 mm des extrémités. Par ailleurs, les erreurs commises sont suffisamment faibles pour que le schéma de calcul Monte-Carlo puisse être utilisé afin d' établir un facteur correctif des effets de bord.

En revanche, l' éloignement du détecteur et l' absorption d' une grande partie des photons diffusés conduit à une réduction d' un facteur 17 du dépôt d' énergie dans le détecteur. Autrement dit, pour atteindre une incertitude comparable aux mesures actuelles, il serait nécessaire d' augmenter la puissance d' irradiation intégrée et/ou la durée de comptage d' un facteur équivalent.

Cette solution n' étant pas acceptable du point de vue de la radioprotection et compte tenu des contraintes de temps sur la réalisation des campagnes de mesures, une autre solution consiste à utiliser la technique de pic particulier qui présente une meilleure résolution spatiale puisqu' on ne tient compte que des photons n' ayant subi aucune interaction depuis leur émission. La section suivante sera consacrée à la comparaison des deux techniques et à leur influence sur le profil mesuré.

3 COMPARAISON DE TECHNIQUES DE MESURE

3.1 Présentation des mesures effectuées

L' étude suivante est dédiée à la mesure du profil axial de taux de fission d' un crayon MINERVE UO_2 enrichi à 3% en uranium 235. Ce choix est motivé par deux raisons :

- la colonne fissile, de longueur 500 mm, est plus courte que celle d' un crayon EOLE. De ce fait, les effets de bord sont davantage pénalisants et conduisent à exclure une proportion plus importante du profil mesuré, rendant l' extraction du laplacien plus délicate.
- le combustible est maintenu entre deux cales de plexiglas de 130 mm de longueur qui diffusent et modèrent les neutrons, et conduisent à des remontées de puissance aux extrémités de la colonne fissile. La maîtrise de ces variations présente un intérêt tant pour valider la technique de mesure aux extrémités que pour qualifier le calcul des effets réflecteurs.

Trois techniques de mesure différentes vont être appliquées pour mesurer le profil axial de taux de fission total :

- tout d' abord, on utilise la technique de référence qui consiste à réaliser l' acquisition simultanée en mode PHA du spectre γ du crayon étudié et du spectre γ d' un crayon équivalent qui suit la décroissance de l' activité totale. Le profil axial est obtenu selon la méthode décrite au chapitre 3 de la partie I, en se limitant à la gamme d' énergie [500 keV ; 2700 keV]. A noter que toutes les mesures ont été réalisées à partir du DSP, après optimisation de ses réglages.
- parallèlement, on réalise une dérivation des chaînes de mesure en exploitant la sortie ICR du DSP (signal TTL délivré pour chaque impulsion reçue), qu' on connecte à une échelle de comptage (analyseur MP2). Le profil est obtenu selon le même principe que précédemment, mais le comptage tient compte de l' intégrale totale des évènements créés dans le détecteur.
- enfin, on exploite les spectres mesurés en étudiant la distribution d' activité d' un produit de fission selon la technique de spectrométrie γ de pic particulier. Le xénon 135 a été retenu car il présente une raie γ à basse énergie (249.8 keV), d' activité suffisante pour obtenir une statistique de comptage inférieure à 1% sur chaque tronçon de combustible mesuré.

L' expérience consiste en l' irradiation pendant 3 heures à une puissance de 80 W sur tout le cœur, de deux crayons combustibles UO_2, introduits de façon symétrique par rapport au centre du réacteur, dans une zone éloignée où le mode fondamental est supposé bien établi (**Fig. 67**).

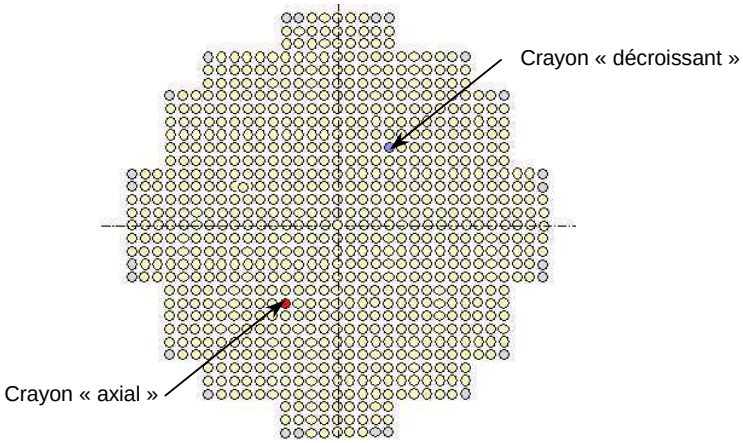

Fig. 67 : position des crayons irradiés dans le réseau R1-UO2 du réacteur MINERVE

La mesure se déroule 16 heures après l' arrêt du réacteur etconsiste en 3 séries de 33 mesures de durée réelle 240 secondes (soit une durée cumulée de 7 heures). Préalablement, une série identique de 33 mesures a été réalisée avant irradiation des crayons afin de tenir compte des résiduels d' activité dus aux produits de fission à vie longue créés lors de précédentes irradiations.

Par le passé, il était courant de réaliser une translation du crayon à pas constant (généralement 20 mm), par commodité. Dans cette étude, un maillage plus adapté a été défini, en partant d' un profil supposé et en ajustant le pas à l' amplitude des variations (i.e. maillage àgradient constant) :

Zone (mm)	[-255 ; -185]	[-185 ; -110]	[-110 ; -50]	[-50 ; 50]	[50 ; 110]	[110 ; 185]	[185 ; 255]
Pas (mm)	10	15	20	50	20	15	10

Tab. 38 : maillage optimisé à gradient constant

3.2 Synthèse des résultats expérimentaux

3.2.1 Traitement des mesures intégrales de type PHA

L' allure des spectres PHA obtenus est donnée ci-dessous (**Fig. 68**) :

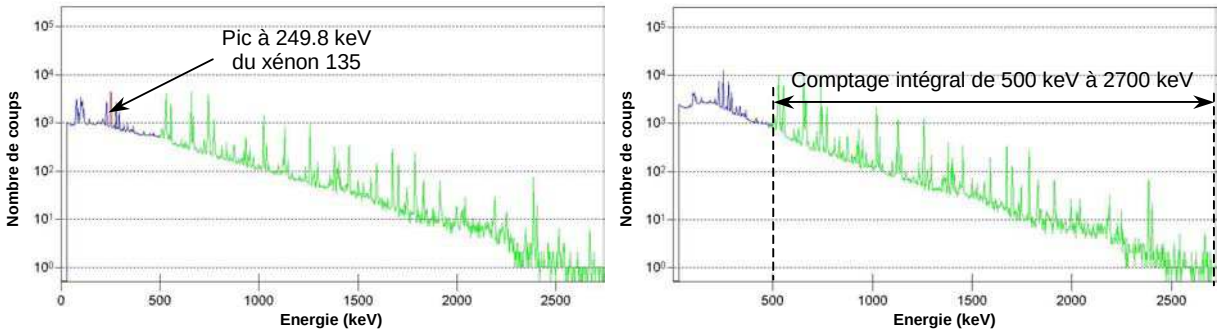

Fig. 68 : spectres PHA obtenus sur le banc axial (*à gauche*) et décroissant (*à droite*)

En notant N_i le nombre de coups enregistrés de 500 keV à 2700 keV, pendant la durée t_i et pour une position i, en indiçant a et d les mesures relatives aux bancs axial et décroissant, et en désignant par res les mesures d'activité résiduelle, la distribution de taux de fission est obtenue par :

$$F_i = \frac{\dfrac{N_{a,i}}{t_{a,i}(1-\theta_{a,i})} - \dfrac{N_{a,i,res}}{t_{a,i,res}(1-\theta_{a,i,res})}}{\dfrac{N_{d,i}}{t_{d,i}(1-\theta_{d,i})} - \dfrac{N_{d,i,res}}{t_{d,i,res}(1-\theta_{d,i,res})}} \qquad \textbf{(82)}$$

L'incertitude associée est calculée à partir de la loi de Poisson en remarquant que la variance est égale au comptage moyen et en négligeant l'incertitude liée au temps mort[28] :

$$\frac{u(F_i)}{F_i} = \sqrt{\frac{\dfrac{N_{a,i}}{t_{a,i}^2(1-\theta_{a,i})^2} + \dfrac{N_{a,i,res}}{t_{a,i,res}^2(1-\theta_{a,i,res})^2}}{\left(\dfrac{N_{a,i}}{t_{a,i}(1-\theta_{a,i})} - \dfrac{N_{a,i,res}}{t_{a,i,res}(1-\theta_{a,i,res})}\right)^2} + \frac{\dfrac{N_{d,i}}{t_{d,i}^2(1-\theta_{d,i})^2} + \dfrac{N_{d,i,res}}{t_{d,i,res}^2(1-\theta_{d,i,res})^2}}{\left(\dfrac{N_{d,i}}{t_{d,i}(1-\theta_{d,i})} - \dfrac{N_{d,i,res}}{t_{d,i,res}(1-\theta_{d,i,res})}\right)^2}} \qquad \textbf{(83)}$$

Dans le cas présent où l'activité résiduelle contribue à moins de 1% à l'activité post-irradiation et où les taux de comptage sont du même ordre de grandeur, cette expression se simplifie selon :

$$\frac{u(F_i)}{F_i} \cong \sqrt{\frac{1}{N_{a,i}} + \frac{1}{N_{d,i}}}$$

3.2.2 Traitement des mesures intégrales de type MCS

L'allure des spectres MCS obtenus simultanément aux mesures de type PHA est donnée ci-dessous (**Fig. 69**) :

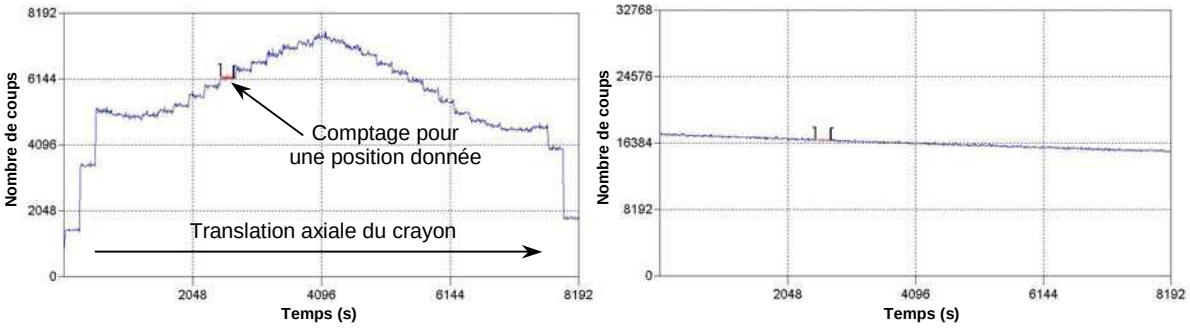

Fig. 69 : spectres MCS obtenus sur le banc axial (*à gauche*) et décroissant (*à droite*)

Une procédure automatique a été développée pour traiter ces deux spectres en excluant la durée qui correspond à la translation du crayon. Le traitement des données brutes et de propagation des incertitudes est réalisé selon la même méthode que pour la mesure intégrale de type PHA, au moyen des relations **(82)** et **(83)**.

[28] Le temps mort sur le banc axial est faible ($\theta < 5\%$) compte tenu de l'ouverture réduite de la fenêtre de collimation (10 mm). Sur le banc décroissant, comme la variation temporelle de l'activité est lente à l'échelle de la mesure, il n'influe pratiquement pas la forme du profil mais intervient de façon systématique pour toutes les positions mesurées.

3.2.3 Traitement des mesures de pic particulier xénon 135

La mesure du profil axial de taux de fission par la technique de spectrométrie γ de pic particulier est réalisée à partir du pic à 249.8 keV du xénon 135 (**Fig. 70**) :

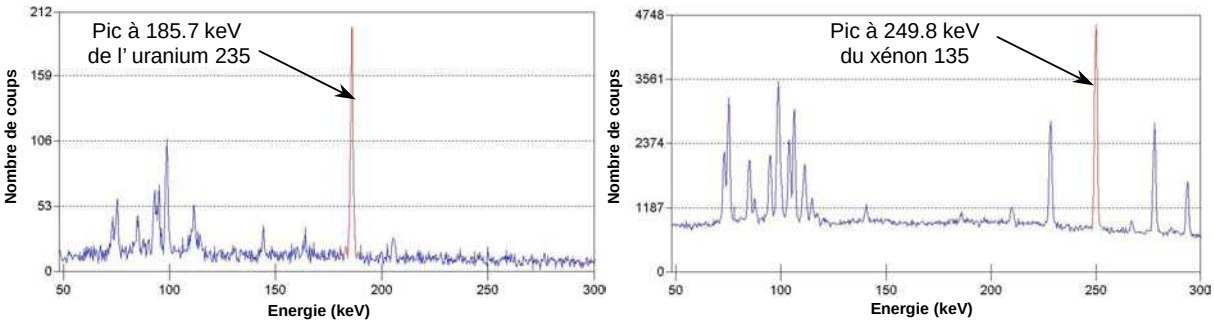

Fig. 70 : spectres PHA obtenus avant (*à gauche*) et après irradiation (*à droite*), de 50 à 300 keV

A partir de la relation **(22)** et en regroupant tous les termes indépendants de la position *i* du crayon sous forme d' une constante *c*, la distribution de taux de fission est obtenue par :

$$F_i \cong c\,\frac{N_i(E)}{t_i} C_{\theta,i} C_{dec,i} \qquad \textbf{(84)}$$

Les corrections $C_{dec,i}$ et $C_{\theta,i}$ sont estimées d' après les relations **(20)** et **(26)** en assimilant les rendements effectifs de fission indépendants du xénon 135 (fils) et cumulés de l' iode 135 (père) aux données relatives à l' uranium 235 en spectre thermique. La durée d' une série de mesure étant faible (environ 2.3 h) devant la période radioactive du xénon 135 ($T_{1/2}$ = 9.14 ± 2 h), l' incertitude associée à chaque mesure F_i dépend essentiellement de la statistique de comptage.

Pour s' affranchir des « effets de bords », les spectres de résiduel d' activité obtenus sont utilisés pour établir des post-corrections sur les points extrêmes de l' échelle axiale (i.e. ± 245 mm). En effet, le volume « effectif » de combustible vu par le détecteur lorsque le crayon est translaté jusqu' aux extrémités est plus faible que lorsqu' il est mesuré en son centre. On exploite donc la raie γ à 185.7 keV émise par l' uranium 235 (**Fig. 70**), dont l' énergie est comparable à celle du xénon 135 et dont le taux de comptage est proportionnel au volume de combustible vu par le détecteur. Les taux de fission mesurés aux deux extrémités sont ensuite corrigés de l' activité $A_i(^{235}U)$ en uranium 235 mesurée lors du résiduel pour la même position *i*, normalisée à l' activité moyenne $\overline{A(^{235}U)}$ vue sur le reste de la colonne fissile de –235 mm à + 235 mm, soit :

$$F_{i,corrigé} = F_i\,\frac{A_i(^{235}U)}{\overline{A(^{235}U)}} \qquad \textbf{(85)}$$

Dans le cas présent, l' incertitude sur cette correction est relativement importante (environ 5%) car le taux de comptage de la raie γ de l' uranium 235 est faible (inférieur à 4 s^{-1}). Si besoin est, il est envisageable de réaliser deux comptages spécifiques de plus longues durées pour les deux positions extrêmes afin de minimiser cette source d' incertitude.

3.2.4 Comparaison des techniques de mesure

Pour comparer les profils obtenus à partir des trois techniques de mesure, on normalise chacun par sa moyenne sur la plage [–185 mm ; +185 mm], zone où ils sont tous supposés cohérents. La superposition des distributions obtenues à partir des deux techniques intégrales, PHA et MCS, est représentée ci-dessous (**Fig. 71** avec barres d'incertitudes données pour $k = 2$) :

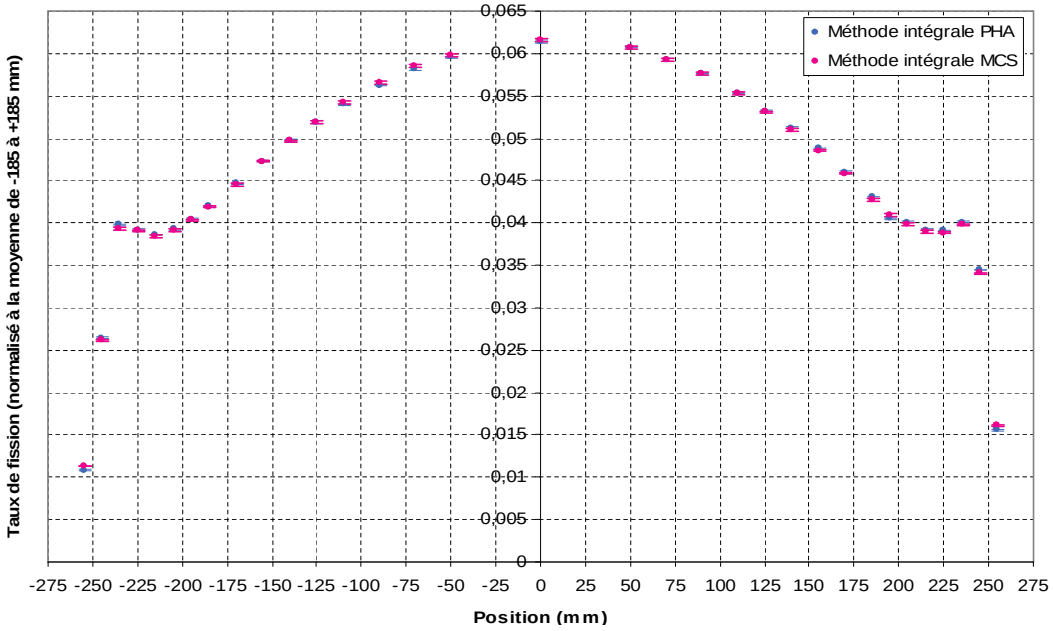

Fig. 71 : comparaison des profils mesurés par spectrométrie γ intégrale PHA et MCS

Mis à part les valeurs extrêmes de l'échelle axiale, les deux profils sont cohérents à $k = 2$, soit un écart maximal de 0.4%. Ce résultat valide la technique intégrale MCS, qui prend en compte la totalité des rayonnements qui interagissent avec le détecteur, par rapport à la technique PHA où seule la gamme d'énergie [500 keV ; 2700 keV] est considérée. Autrement dit, la contribution au spectre intégral des raies γ de l'uranium 235 (radioactivité naturelle), du neptunium 239 (produit par capture sur l'uranium 238) et des raies X d'auto-fluorescence de l'uranium entre 90 et 110 keV, est négligeable. De surcroît, la technique intégrale MCS, mise au point pour la première fois au cours de la thèse, offre plusieurs avantages par rapport au passé :

- tous les comptages sont regroupés au sein d'un seul fichier à traiter alors qu'actuellement, autant de fichiers que de positions mesurées sont créés,
- l'incertitude de comptage est réduite d'un facteur 1.5 pour la même durée de mesure, puisqu'on ne réalise aucune discrimination d'amplitude des signaux générés par le détecteur,
- le temps de traitement des signaux TTL (environ 100 ns) par l'échelle de comptage est tel que pour un taux de comptage de l'ordre de 10^4 s^{-1}, la probabilité de perte d'une impulsion par temps mort est inférieure à 0.1% et aucune correction électronique n'est nécessaire.

Concernant l'allure du profil, la diminution du taux de fission observée aux extrémités de la colonne fissile n'a pas de sens physique et ne peut s'expliquer que par une erreur systématique liée à la technique de mesure. La comparaison avec le profil obtenu à partir du xénon 135 (**Fig. 72** avec barres d'incertitudes données pour $k = 2$), confirme cette hypothèse :

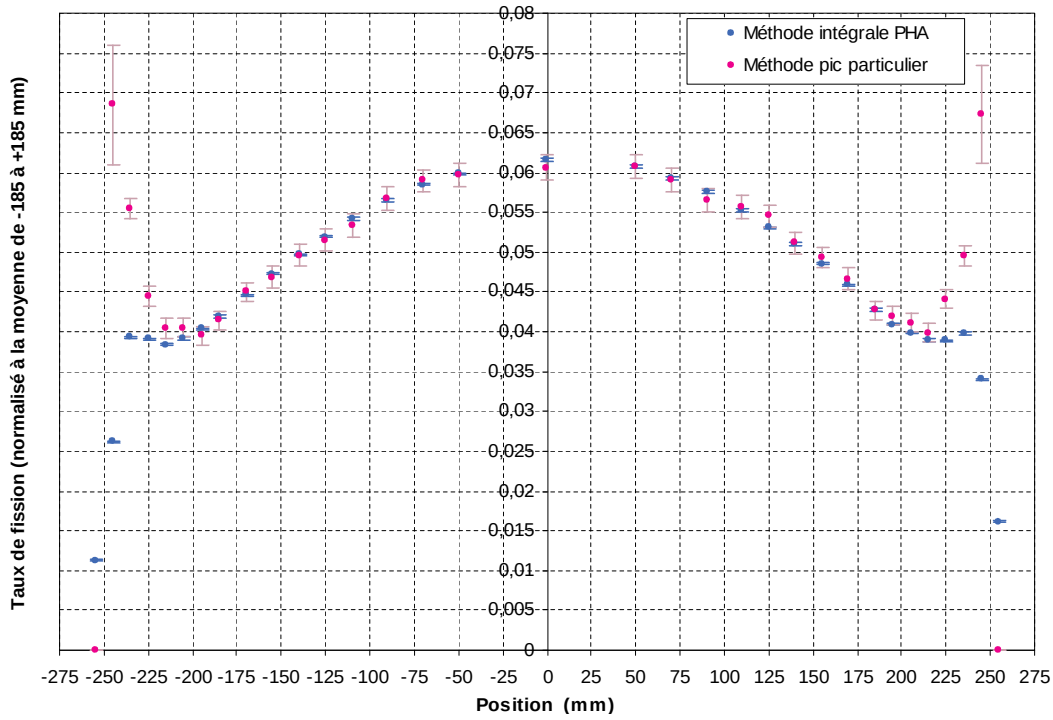

Fig. 72 : comparaison des profils mesurés par spectrométrie γ intégrale et de pic particulier

Pour les trois positions les plus extrêmes de l' échelle axiale, l' écart entre les deux profils est incompatible avec les incertitudes de mesure, pour un facteur $k = 3$. Cette différence traduit la faible résolution spatiale de la technique intégrale par rapport à la technique de pic particulier. En effet, l' énergie de la raie γ à 249.8 keV du xénon 135 est suffisamment faible pour que les photons reçus par le détecteur proviennent en majorité de la tranche de combustible visée par le détecteur.

Le profil obtenu montre alors l' accroissement de puissance neutronique lié à l' effet réflecteur du plexiglas, sur une zone d' environ 50 mm de part et d' autre de la colonne fissile. D'un point de vue quantitatif, on observe une cohérence avec les mesures axiales par chambre à fission à uranium 235 où l' augmentation du taux de fission est d' environ 25% entre $|z_o| = 250$ mm et $z_o = 0$ mm **[93]**.

L' écart entre les deux techniques confirme également l' étude de calculatoire qui montre une sous-estimation du profil mesuré par rapport au profil réel. Par ailleurs, on constate que pour les positions $|z_o| = 255$ mm, la distribution mesurée par spectrométrie γ intégrale n' est pas nulle, alors que le détecteur ne voit plus directement le combustible, d' où l' importance des phénomènes de diffusion.

Sur le reste de la colonne fissile (i.e. pour $|z_o| < 215$ mm), l' incertitude sur le comptage du pic du xénon 135 (environ 1%) ne permet pas d' admettre de différence entre les deux techniques de mesure, pour un facteur $k = 2$. On peut donc considérer que le profil obtenu la technique intégrale est conforme au profil réel, à l' incertitude de comptage près.

En conclusion, si la technique intégrale ne permet pas actuellement de mesurer avec une précision suffisante le profil axial de taux de fission aux extrémités du combustible, la technique de référence de pic particulier prouve la représentativité de la distribution obtenue sur le reste de la colonne fissile, pour peu qu' on s' affranchisse d' une portion d' environ 50 mm. Les laplaciens géométriques axiaux B_z^2 déduits des deux profils mesurés, sont donc censés être cohérents. On se propose de le vérifier dans la section suivante.

4 EXTRACTION DU LAPLACIEN GEOMETRIQUE

Dans cette section, une méthode de traitement du profil mesuré sera proposée afin de déterminer le laplacien géométrique axial B_z^2. Elle sera ensuite appliquée aux distributions obtenues dans la section §3.2.4 et au profil obtenu par un calcul de référence MCNP4C2 + JEFF3.1.

4.1 Méthode de détermination du laplacien

La détermination du laplacien à partir du profil mesuré consiste à estimer la zone où le mode fondamental est bien établi. La théorie de la diffusion montre que le taux de fission suit une loi de variation de type cosinus **[6]**. La distribution expérimentale peut donc être ajustée par la fonction :

$$F(z) = a\cos(\sqrt{B_z^2}(z-c)) \qquad \textbf{(86)}$$

où a est le taux de fission au centre du combustible et c le décalage potentiel de l'échelle axiale.

Par le passé, en l'absence d'outil informatique adapté, le laplacien était estimé manuellement par une approche dichotomique, de façon à minimiser l'écart entre les points et la courbe ajustée.

Au cours de la thèse, une méthode de traitement automatisé a été conçue et figée au sein d'un logiciel, développé en langage MATLAB. Celle-ci consiste en un ajustement itératif du profil mesuré, en considérant une largeur croissante de zone axiale autour de la position centrale $z_o = 0$. On obtient alors une figure de convergence du laplacien où l'incertitude associée à chaque estimation est calculée d'après la moyenne des résidus. Comme celle-ci caractérise la qualité de l'ajustement de la courbe aux données expérimentales, on pourra retenir l'estimation dont l'incertitude est la plus faible.

4.2 Traitement des profils axiaux de taux de fission mesurés

A partir des profils de taux de fission mesurés (**Fig. 72**), on applique la méthode de traitement précédente en étudiant la figure de convergence du laplacien en fonction de la zone d'ajustement. Le tableau suivant regroupe les résultats obtenus pour les trois mesures de profil axial réalisées :

Mesure	Technique intégrale PHA		Technique pic particulier	
	$B_z^2 \pm u(B_z^2)$ ($\times 10^{-5}$ mm^{-2})	Zone d'ajustement (mm)	$B_z^2 \pm u(B_z^2)$ ($\times 10^{-5}$ mm^{-2})	Zone d'ajustement (mm)
N°1	1.942 ± 0.013	[-170 ; 170]	1.894 ± 0.038	[-195 ; 195]
N°2	1.948 ± 0.016	[-185 ; 185]	1.945 ± 0.046	[-195 ; 195]
N°3	1.933 ± 0.015	[-185 ; 185]	1.849 ± 0.055	[-205 ; 205]

Tab. 39 : synthèse des laplaciens obtenus à partir du profil intégral et du profil pic particulier

Dans le cas de la technique intégrale de type PHA, les laplaciens obtenus présentent une excellente reproductibilité entre les différentes mesures, avec un écart-type estimé sur les 3 valeurs inférieur à 0.4%. Cet écart-type est à comparer à celui associé à chaque estimation du laplacien, de l'ordre de 0.8%, qui caractérise la qualité de l'ajustement du modèle aux points expérimentaux. Si le

test de χ^2 bilatéral à 2 degrés de liberté ne permet pas d'admettre de différence entre ces deux estimations de l'écart-type pour un risque $\alpha = 5\%$ ($\chi^2 / \nu = 0.26$), il est toutefois possible qu'une sous-estimation de l'incertitude associée à chaque point soit responsable de cet écart. En effet, pour cette mesure, les durées de comptage ont été tellement prolongées par rapport au passé (30 à 45 s) que d'autres sources d'incertitude ne peuvent plus être considérées comme négligeables, notamment :

- *la reproductibilité de la distance source – détecteur* : les défauts d'arcure des crayons combinés à l'incertitude sur le positionnement des pastilles combustibles à l'intérieur de la gaine ne sont qu'en partie corrigés par la mise en rotation du crayon.
- *la non-continuité de la colonne fissile* : le combustible des crayons MINERVE est constitué d'un empilement de pastilles de hauteur 15 mm. Aussi, les jonctions qui séparent deux d'entre-elles peuvent-elles varier selon la planéité des pastilles et introduire des incertitudes de reproductibilité du volume combustible vu par le détecteur.

De ce fait, les laplaciens déterminés d'après les trois mesures peuvent difficilement être considérées comme trois évaluations indépendantes du même paramètre. On pourra donc retenir leur moyenne pondérée, à laquelle on associera la moyenne arithmétique des trois estimations d'écart-type **[94]**. Au final, le laplacien déduit du profil mesuré par la technique intégrale PHA est le suivant :

$$B_z^2 = (1.941 \pm 0.015) \times 10^{-5}\ \mathrm{mm}^{-2}$$

Dans le cas de la technique de pic particulier, les laplaciens obtenus présentent une reproductibilité moins bonne que par la technique intégrale, estimée à 2.5%, puisque l'incertitude sur chaque point est environ 10 fois plus élevée. Néanmoins, on observe une excellente cohérence entre l'écart-type estimé sur les 3 valeurs et l'incertitude associée à chaque laplacien ($\chi^2 / \nu = 1.1$). Cette observation tend à confirmer l'hypothèse précédente puisque dans le cas présent, l'incertitude de comptage domine l'incertitude de mesure sur chaque point.

L'estimation finale du laplacien est alors déduite de la moyenne pondérée des 3 valeurs, à laquelle on associe une incertitude estimée à partir de la variance interne, soit :

$$B_z^2 = (1.891 \pm 0.030) \times 10^{-5}\ \mathrm{mm}^{-2}$$

La comparaison des figures de convergence tend à prouver que les laplaciens déterminés d'après les deux techniques de mesure sont identiques, à l'incertitude près.

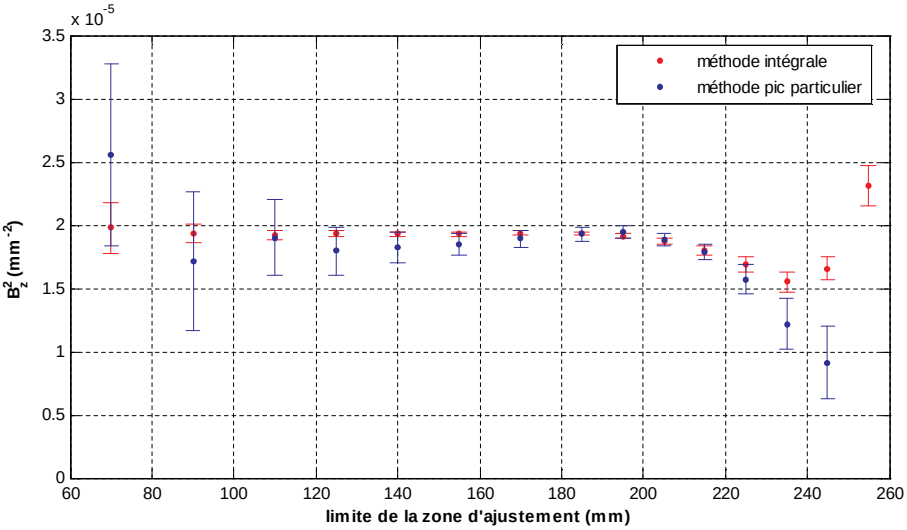

Fig. 73 : figure de convergence du laplacien en fonction de la largeur de la zone d'ajustement

Cette figure met en évidence deux comportements distincts. Pour des zones d'ajustement inférieures à [-200 mm ; 200 mm], toutes les estimations du laplacien sont compatibles à $k = 1$ et peuvent être considérées équivalentes. Au delà, les effets réflecteurs écartent le profil axial du mode fondamental (i.e. du cosinus) et on observe une divergence dans l'ajustement par la relation **(86)**.

Ensuite, la comparaison des profils déduits des 2 techniques de mesure montre que pour toutes les zones d'ajustement inférieures à 200 mm, les laplaciens estimés sont cohérents à $k = 1$. Aucune tendance ne peut être identifiée ce qui confirme l'étude calculatoire précédente quant à la représentativité du profil mesuré par la méthode intégrale sur la zone centrale.

Les deux techniques de mesure pouvant être considérées indépendantes, puisque l'incertitude est dominée par le comptage, la combinaison des résultats conduit à l'estimation finale suivante :

$$B_z^2 = (1.931 \pm 0.013) \times 10^{-5}\ \mathrm{mm}^{-2}$$

L'augmentation de la durée de comptage et la combinaison des 2 techniques permet donc d'atteindre une incertitude réduite d'un facteur 3 par rapport au passé **[91]** (soit 0.7%).

4.3 Comparaison calcul / expérience

Un calcul MCNP4C2 décrivant le réacteur MINERVE en géométrie réelle trois dimensions est utilisé pour estimer le profil de taux de fission dans le crayon étudié. Les taux de fission sont calculés par tranche de 10 mm, selon le même maillage que celui utilisé lors de la mesure.

A noter qu'un décalage de l'échelle axiale est observé sur le profil mesuré car le centre $z_o = 0$ ne correspond pas exactement au plan médian du combustible (i.e. incertitude technologique). Par ajustement des distributions mesurées par la technique intégrale PHA, on a pu estimer ce décentrage à (4.5 ± 0.3) mm. Le profil calculé doit tenir compte de ce décalage pour être représentatif de la mesure.

Pour atteindre des incertitudes de convergence de 0.7% sur chaque point, un calcul parallélisé sur 31 processeurs et pendant une durée de 48 heures est nécessaire. La comparaison des profils mesurés et calculés est représentée ci-dessous (**Fig. 74** avec barres d'incertitudes données à $k = 2$) :

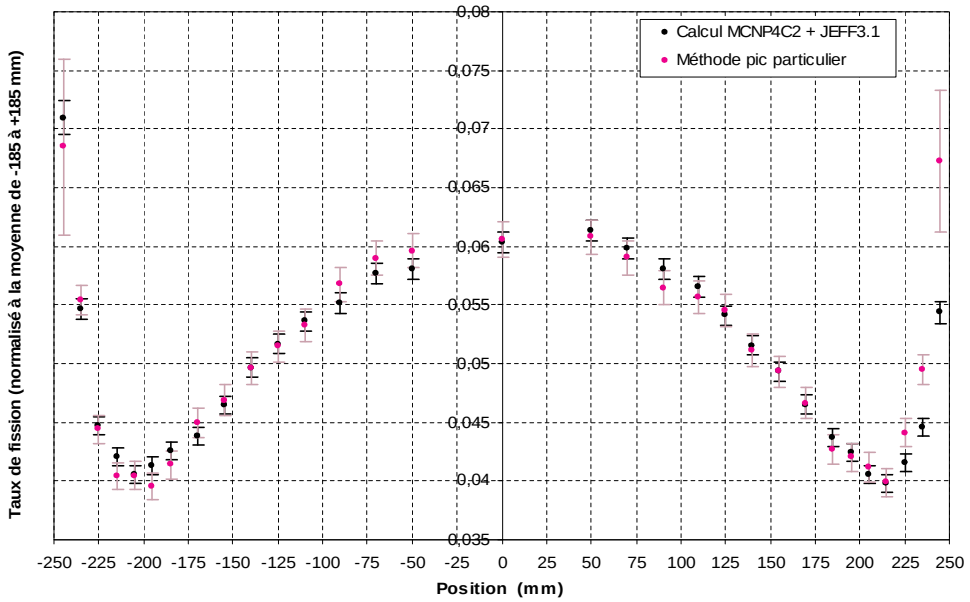

Fig. 74 : comparaison du profil pic particulier et du profil calculé par MCNP4C2 + JEFF3.1

La figure montre la cohérence à $k = 2$ des profils calculés et mesurés sur la zone centrale où le mode fondamental est bien établi. Par ailleurs, on observe que la méthode de pic particulier suffit, en première approximation, à rendre compte de l'allure des effets réflecteurs aux extrémités du combustible. La sous-estimation du profil calculé pour les positions $z_o > 215$ mm, probablement due à une connaissance trop imprécise de la géométrie du cœur, sera discutée dans le paragraphe suivant.

A partir du profil calculé, le laplacien géométrique axial est déduit à partir de la figure de convergence en fonction de la zone d'ajustement et conduit à :

$$B_z^2 = (1.831 \pm 0.013) \times 10^{-5}\ \mathrm{mm}^{-2}$$

Cette valeur conduit à un rapport C / E égal à 0.948 ± 0.009. L'incertitude est suffisamment faible pour cet écart de 5% entre le laplacien calculé et mesuré soit significatif. Différentes hypothèses peuvent être avancées pour l'interpréter, en particulier l'existence d'incertitudes technologiques sur la connaissance de la géométrie axiale du réacteur.

Tout d'abord, il existe une incertitude sur la longueur exacte des cales plexiglas de part et d'autre de la colonne fissile, dont l'influence est loin d'être négligeable sur le calcul du profil axial.

Ensuite, la correspondance entre le plan médian de la zone expérimentale et le plan médian de la zone nourricière n'est maîtrisée qu'à ±10 mm **[95]**. Du fait de la hauteur de 600 mm de ces plaques, l'accroissement du taux de fission aux extrémités du combustible, lié à l'effet réflecteur du plexiglas, est renforcé par les 50 mm de zone nourricière délivrant des neutrons de part et d'autre de la colonne fissile. Un décalage axial entre ces deux zones peut alors expliquer l'écart entre le profil mesuré et calculé (**Fig. 74**). Cette hypothèse pourrait être vérifiée en mesurant le profil axial de taux de fission d'un crayon situé à proximité de la zone nourricière où ces effets sont découplés.

Enfin, une incertitude réside dans la description du tablier de support du cœur, constitué d'un assemblage soudé de tôles d'alliage en AG3 **[86]**. Par manque d'informations sur ses caractéristiques géométriques, il est homogénéisé à de l'eau dans le schéma de calcul. Cette approximation peut constituer un biais de modélisation quant à la symétrie du profil calculé.

En conclusion, l'existence d'un certain nombre d'incertitudes liées à la maîtrise des caractéristiques géométriques de MINERVE ne permet pas de progresser davantage quant à l'interprétation de l'écart calcul / expérience sur le laplacien géométrique axial. Ce type de paramètre peut en revanche être qualifié avec une meilleure incertitude cible à partir du réacteur EOLE, où le degré d'exigence sur la maîtrise du bilan matière et des caractéristiques géométriques du cœur est plus sévère, et où la longueur de la colonne fissile (800 mm) se prête davantage à ce type de mesure.

5 INFLUENCE DE LA CHAINE DE MESURE

Depuis le programme MISTRAL débuté en 1995, jusqu'à l'acquisition en novembre 2004 des électroniques DSP, les chaînes de mesure 2026+PCA3 ont équipé les deux bancs de spectrométrie γ dédiés à la translation axiale et au suivi de la décroissance radioactive. L'étude menée au chapitre 1 de la partie II a permis de quantifier les erreurs commises par ces systèmes, due à une correction de temps mort non optimale. Les pertes de comptage étant d'autant plus élevées que le flux reçu par le détecteur est important (**Fig. 17**), le phénomène de temps mort conduisait à un aplatissement du profil de taux de fission mesuré, davantage marqué au centre du combustible qu'à ses extrémités. Cette déformation conduisait à une sous-estimation du laplacien B_z^2, que l'on va chercher à quantifier dans cette section.

Au cours de la thèse, la comparaison des profils de taux de fission mesurés sur un même crayon, à partir des anciennes et des nouvelles chaînes de mesure, n' a pas pu être réalisée. Toutefois, il est possible d' obtenir une estimation a posteriori de l' erreur commise sur la mesure du laplacien en reprenant des profils obtenus par le passé et en s' appuyant sur l' étude de caractérisation de la chaîne 2026+PCA3. En utilisant la méthode des deux sources, on peut établir le lien entre l' erreur relative ε (en %) et le taux de comptage $n(t)$ (en s^{-1}) en entrée de la chaîne. Au premier ordre, on a une dépendance linéaire sous la forme :

$$\varepsilon = -4.828\times10^{-6} \times n(t)$$

Cette relation peut être utilisée pour corriger le biais de mesure lié au temps mort en divisant chaque comptage par une post-correction $(1 - \varepsilon)$. La figure suivante montre, dans le cas du crayon UMoAl irradié au centre du réseau R1-UO2 dans MINERVE **[83]**, la comparaison entre les profils mesurés, avec et sans post-correction du temps mort :

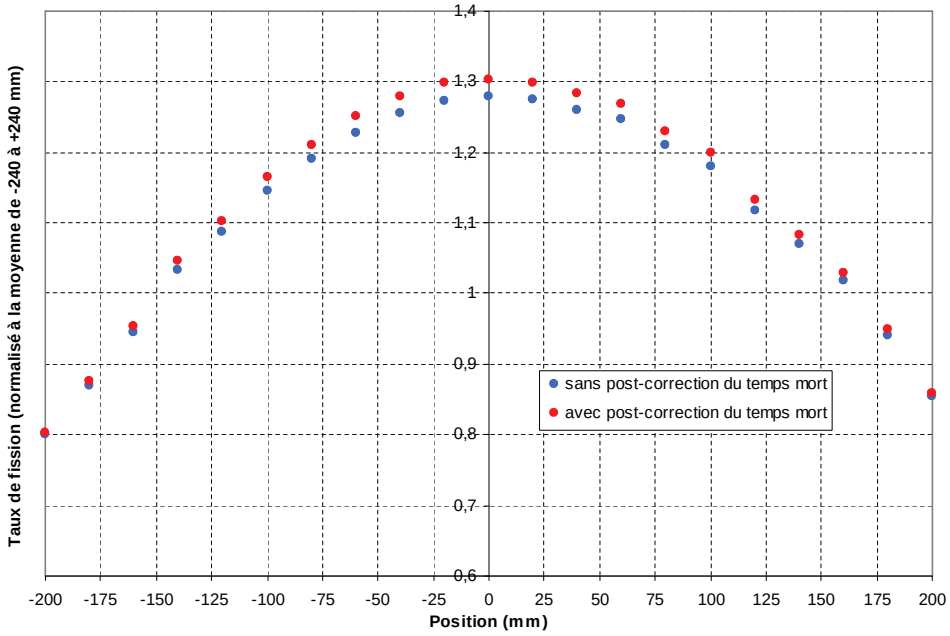

Fig. 75 : profil axial de taux de fission du crayon UMoAl irradié dans MINERVE

Pour le banc de mesure axiale, l' erreur ε varie, selon la position, de 0.4% ($|z_o|$ = 200 mm) à 2% (z_o = 0 mm). Pour le banc qui suit la décroissance de l' activité totale du crayon au cours du temps, l' erreur ε varie de 2.5% à 3% entre la première mesure (z_o = -200 mm) et la dernière (z_o = +200 mm).

Le traitement des deux profils présentés ci-dessus avec la méthode d' extraction du laplacien décrite dans la section §4.1 de ce chapitre, conduit aux résultats suivants :

Mesure	Sans post-correction		Avec post-correction		Ecart relatif sur les laplaciens
	$B_z^2 \pm u(B_z^2)$ ($\times10^{-5}$ mm^{-2})	Zone d' ajustement (mm)	$B_z^2 \pm u(B_z^2)$ ($\times10^{-5}$ mm^{-2})	Zone d' ajustement (mm)	
N°1	1.887 ± 0.019	[-200 ; 200]	1.943 ± 0.020	[-200 ; 200]	2.97%
N°2	1.874 ± 0.025	[-200 ; 200]	1.920 ± 0.025	[-200 ; 200]	2.46%
N°3	1.864 ± 0.022	[-200 ; 200]	1.904 ± 0.022	[-200 ; 200]	2.15%

Tab. 40 : influence du biais de mesure lié au temps mort sur la détermination du laplacien B_z^2

Ce tableau montre que l'erreur commise par les anciennes électroniques 2026+PCA3 sur la mesure du laplacien géométrique axial, atteint jusqu'à 3%. La diminution du biais entre les trois mesures réalisées, est corrélée à la décroissance de l'activité γ totale du combustible. Celle-ci permet d'établir une relation entre le taux de comptage $n_{reduit}(t)$ de la gamme [500 keV ; 2700 keV], pour la position centrale z_o = 0 mm, et l'erreur relative $\varepsilon_{laplacien}$ commise sur la mesure de B_z^2 :

$$\varepsilon_{laplacien} \cong \mathbf{1.035 \times 10^{-5}} \times n_{reduit}(t)$$

Cette relation offre la possibilité de corriger simplement des mesures réalisées par le passé dans EOLE ou dans MINERVE, à partir de crayons UO_2 ou MOX, quelle que soit la longueur de la colonne fissile. On retiendra qu'un taux de comptage $n_{reduit}(t)$ de 1000 s^{-1} au centre du combustible conduit à une erreur systématique $\varepsilon_{laplacien}$ d'environ 1%.

A noter enfin que le biais obtenu dans le cas du crayon UMoAl constitue un cas enveloppe pour toutes les mesures d'axiales réalisées par le passé car il s'agit du combustible le plus enrichi en uranium 235 ayant été étudié depuis le programme MISTRAL. Pour les autres mesures réalisées à partir de crayons UO_2 ou MOX standards, intégrant la même puissance d'irradiation, le taux de comptage obtenu est de 1.5 à 3 fois plus faible et le laplacien doit être corrigé de 1 à 2 %.

6 CONCLUSION

Dans ce chapitre, une analyse critique de la technique de spectrométrie γ intégrale a été menée pour la mesure des profils axiaux de taux de fission. Elle passe en revue les différentes étapes, depuis la mise en œuvre expérimentale (configuration du banc, chaînes électroniques) jusqu'à l'extraction du laplacien géométrique axial à partir du profil mesuré.

Un schéma de calcul MCNP, décrivant le banc de spectrométrie γ dédié, a tout d'abord été mis au point afin de valider la technique intégrale. Il montre **la représentativité à moins de 0.3% du profil mesuré par rapport à un profil supposé, sur une portion centrale de 600 mm d'un crayon EOLE** et l'existence d'erreurs systématiques au-delà cette zone, liées à un dimensionnement non adapté des collimations. La modification du banc n'étant pas pour l'heure envisageable, la simulation offre la **possibilité de post-corriger un profil mesuré**, moyennant une puissance de calcul suffisante.

En complément de cette étude, la technique de spectrométrie γ intégrale a été validée par rapport à la spectrométrie γ de pic particulier sur une portion centrale de 400 mm d'un crayon MINERVE. Cette dernière technique montre son intérêt lors des mesures de taux de fission impliquant de forts gradients et nécessitant une résolution spatiale fine. Pour l'étude des effets réflecteurs dus à la présence de plexiglas, une erreur de 250% est identifiée aux extrémités de la colonne fissile, lors de la mesure du profil axial par spectrométrie γ intégrale.

Une méthode d'extraction du laplacien géométrique axial a ensuite été proposée et figée au sein d'un logiciel de traitement. Au final, l'allongement des durées de comptage et la combinaison des deux techniques de mesure conduit à une **incertitude réduite d'un facteur 3 sur l'estimation du laplacien par rapport au passé** (soit environ 0.7%).

Enfin, l'étude a permis de quantifier l'influence sur les mesures de profil axial de taux de fission total, des erreurs systématiques commises par la correction non optimale du temps mort sur les anciennes chaînes de mesure 2026+PCA3. Elle prouve la **sous-estimation de 1 à 3% de tous les laplaciens géométriques axiaux mesurés par spectrométrie γ intégrale depuis 1995**.

CONCLUSION

Cette troisième partie a permis de quantifier précisément les apports du travail de thèse sur des mesures de distribution radiale et axiale de taux de fission total (i.e. de puissance neutronique) dans un cœur de réacteur. Ces expériences présentent un intérêt capital pour les études de sûreté et pour la définition des marges de conception par l'industriel.

En terme d'identification et de correction des erreurs systématiques, le principal bénéfice de ce travail concerne la maîtrise des pertes de comptage par temps mort, obtenue grâce à l'utilisation d'électroniques adaptées et optimisées. L'amélioration en terme de justesse est **de 1 à 12%** pour les mesures de recalage de taux de fission (respectivement à partir de la raie γ à 1596.2 keV émise par le lanthane 140 et à partir de la raie γ à 1383.9 keV émise par le strontium 92) et **de 1 à 3%** pour les mesures de laplacien géométrique axial. L'une des conséquences de ce travail est la cohérence, obtenue pour la toute première fois, entre des mesures réalisées à partir de plusieurs produits de fission (notamment le lanthane 140 et le strontium 92 à environ 1%, contre 5% auparavant)..

En terme de maîtrise et de réduction des incertitudes, les principales innovations par rapport au passé concernent la propagation rigoureuse des variances et la définition de méthodes de combinaison de plusieurs résultats de mesure. **Un gain d'un facteur 3** est obtenu par rapport au passé, pour ces deux types de mesure, soit une incertitude d'environ 0.7% à $k = 1$.

En terme d'innovations techniques, l'étude a permis d'ouvrir des perspectives nouvelles sur la mise en œuvre des expériences. Par exemple, la validation du fonctionnement quantitatif des nouvelles chaînes de mesure DSP sur une large gamme de taux de comptage (jusqu'à 1.5×10^5 s^{-1}) autorise **plus de souplesse** dans le choix des produits de fission permettant de mesurer le facteur de recalage et apporte un **gain de temps** dans la réalisation des campagnes de mesure, pour une même incertitude cible. Ensuite, la mise au point d'une nouvelle technique de spectrométrie γ intégrale, fonctionnant en mode MCS plutôt qu'en mode PHA, vise à **faciliter le traitement des mesures** en regroupant les comptages des positions axiales au sein d'un seul fichier. Enfin, l'application, pour la première fois de la technique de spectrométrie γ de pic particulier à la mesure d'un profil axial de taux de fission, contribue à **élargir les possibilités d'expériences**, notamment pour la qualification des effets réflecteurs aux extrémités du combustible.

Au travers des deux études présentées dans cette partie, l'interprétation par calcul neutronique des paramètres physiques mesurés est parfois pénalisée par des incertitudes à caractère technologiques (cas du réacteur MINERVE). A l'avenir, les progrès accomplis sur les techniques de mesure auront plus de portés dans des maquettes critiques telles que EOLE où le degré d'exigence sur la maîtrise des compositions et des caractéristiques géométriques du cœur est nettement plus sévère. Aussi, la réduction des incertitudes obtenue grâce à ce travail, bénéficiera-t-elle directement à la qualification des formulaires de calcul.

En revanche, le réacteur MINERVE est bien adapté aux études destinées à améliorer la connaissance des données nucléaires de base. Les deux parties suivantes de cette thèse vont montrer les possibilités qu'offre la spectrométrie γ pour la qualification de grandeurs telles que les sections efficaces, les rendements de fission ou les données de décroissance radioactive.

PARTIE IV :
DEVELOPPEMENT DE MESURES CONTRIBUANT A LA QUALIFICATION DE SECTIONS EFFICACES

La théorie, c'est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c'est quand tout fonctionne et que personne ne sait pourquoi. Ici, nous avons réuni théorie et pratique : Rien ne fonctionne... et personne ne sait pourquoi !

Albert EINSTEIN

INTRODUCTION

La qualification des calculs d'évolution des combustibles industriels est primordiale dans l'optique d'un allongement de leur durée de vie en réacteur. L'exploitant doit en effet disposer d'outils lui permettant de connaître, avec la meilleure précision possible, l'inventaire des matières fissiles et capturantes créées au cours du temps. Au travers de ses différents programmes, le réacteur MINERVE participe à la qualification des sections efficaces d'absorption par la technique d'oscillation, pour des isotopes contribuant de façon significative au comportement neutronique d'un réacteur.

Dans ce contexte, l'un des principaux enjeux de cette thèse réside dans la mise au point d'une technique basée sur la spectrométrie γ de pic particulier pour la mesure d'indices de capture, définis comme le rapport des sections efficaces de deux isotopes présents dans un même combustible, convoluées par le même spectre neutronique. Le taux de conversion, qui correspond à la quantité de plutonium 239 formée par capture sur l'uranium 238 par rapport à l'usure des matières fissiles, a fait l'objet d'études au cours du programme MISTRAL **[39]** et en constitue un cas particulier.

Cette quatrième partie présente les mesures de taux de capture développées sur échantillon combustible. Elle s'appuie sur les programmes expérimentaux VALMONT **[96]**, OCEAN **[97]** et OSMOSE **[98]** réalisés dans MINERVE **[99]** et vise à qualifier les sections efficaces de capture des isotopes suivants : ^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf, ^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{238}U, ^{242}Pu.

Le premier chapitre détaille la **mise en œuvre expérimentale** et les principales étapes du traitement des données brutes de mesure. Il s'appuie directement sur la méthodologie et les recommandations émises dans la seconde partie de ce mémoire et quantifie, étape par étape, les bénéfices apportés en terme de réduction des incertitudes par rapport aux méthodes de traitement utilisées par le passé.

Le second chapitre sera ensuite consacré à l'**interprétation des écarts entre les indices de capture mesurés et calculés** à partir des codes MCNP4C2 et APOLLO2.5, utilisant les bibliothèques de données nucléaires JEF2.2, ENDF/B-VI.8 ou JEFF3.1. Des tendances sur les données nucléaires de base (sections efficaces et probabilités d'émission γ) seront proposées et comparées à d'autres études menées sur les mêmes isotopes.

CHAPITRE 1 :
MESURES DE TAUX DE CAPTURE

1 INTRODUCTION

Les programmes OCEAN **[97]** et OSMOSE **[98]**, menés conjointement sur MINERVE entre 2005 et 2010, visent à qualifier les sections efficaces d'absorption de poisons neutroniques et d'actinides, dans différents types de spectre. Une partie importante du programme consiste en la fabrication d'échantillons combustibles constitués de pastilles UO_2 dopées par des isotopes séparés pour lesquels un besoin en amélioration des données nucléaires a été identifié **[100][101]**. Le programme expérimental est dédié à la mesure, dans le réacteur MINERVE, de la réactivité de ces échantillons par la technique d'oscillation. Du fait de la rareté des isotopes étudiés, ce type d'étude présente des enjeux majeurs dans plusieurs domaines : concepts de réacteurs innovants, allongement des cycles, gestion des déchets et réduction des marges.

En parallèle de ces programmes, il a été envisagé d'utiliser la spectrométrie γ pour caractériser les sections efficaces de capture à partir de ces même échantillons, en adaptant la technique de mesure du taux de conversion de l'uranium 238 développée au SPEx au cours du programme MISTRAL. D'autre part, afin d'étudier l'influence de la composant épithermique (E > 0.5 eV) du spectre neutronique pour l'interprétation des écarts calcul / expérience, des mesures innovantes de rapport cadmium de capture ont été mises au point à partir d'un dispositif d'irradiation dédié. La complémentarité des deux mesures avec les expériences d'oscillation et la facilité de mise en œuvre sont autant d'atouts qui justifient l'utilisation de la spectrométrie γ en support à la qualification des sections efficaces.

Dans ce chapitre, après une étude préliminaire de faisabilité aboutissant à la définition les isotopes les mieux adaptés, la mise en œuvre expérimentale et le traitement des mesures d'indice de capture et de rapports cadmium sera présentée. La cohérence des résultats obtenus à partir de différentes raies γ et produits de fission est ensuite étudiée ainsi que l'influence des bibliothèques de données nucléaires de base utilisées.

2 ETUDE PRELIMINAIRE

2.1 Isotopes adaptés à la mesure par spectrométrie γ

Les programmes expérimentaux réalisés ces dernières années sur MINERVE ont conduit à la fabrication de divers échantillons qu'on peut regrouper selon les catégories suivantes :

- *les échantillons de calibration* : il s'agit de combustibles UO_2 enrichis de 0.25% à 5% en uranium 235 et utilisés pour l'étalonnage du pilote automatique de MINERVE.
- *les échantillons OCEAN* : il s'agit de combustibles UO_2 constitués d'uranium naturel et dopés par les poisons neutroniques suivants **[97]** : ^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{nat}Eu, ^{155}Gd, ^{157}Gd, ^{nat}Gd, ^{160}Dy, ^{161}Dy, ^{162}Dy, ^{163}Dy, ^{164}Dy, ^{166}Er, ^{167}Er, ^{168}Er, ^{170}Er, ^{177}Hf, ^{178}Hf, ^{179}Hf, ^{180}Hf.

- *les échantillons OSMOSE* : il s' agit de combustibles UO_2 constitués d' uranium naturel et dopés par les actinides suivants **[98]** : ^{232}Th, ^{233}U, ^{234}U, ^{236}U, ^{237}Np, ^{238}Pu, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am, ^{243}Am, ^{244}Cm, ^{245}Cm.
- *les échantillons VALMONT* : il s' agit de combustibles de type UAl ou UMoAl, de densité 2.7 ou 9.9, de géométrie annulaire ou cylindrique et enrichis à 0.4% ou 20% en uranium 235 **[83]**.

Ces échantillons sont constitués d' une colonne de pastilles combustible d' environ 95 mm de hauteur et de 8 mm de diamètre, insérée dans une double gaine étanche en zircaloy-4 (Zy4). Le diamètre extérieur de chaque échantillon est de 10.6 mm et sa longueur de 103.5 mm (**Fig. 76**).

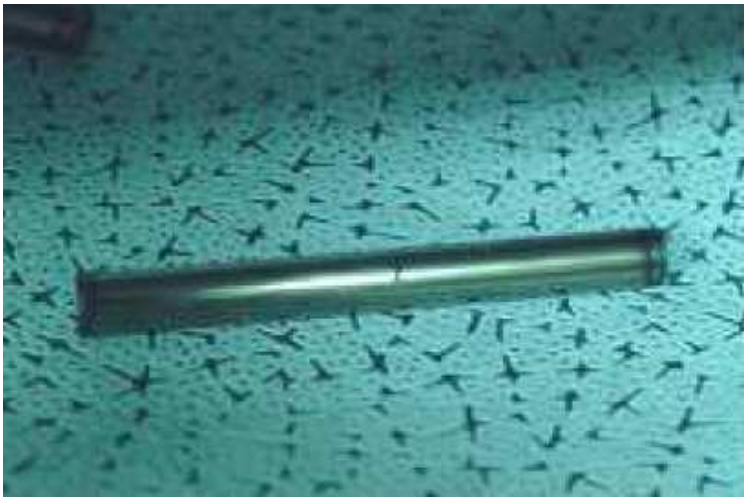

Fig. 76 : échantillon d' oscillation OSMOSE

A partir de ces différents échantillons, une étude de faisabilité a été menée afin d' identifier les plus adaptés à la mesure par spectrométrie γ. Plusieurs critères sont requis :

- radioactivité du produit de capture avec une décroissance autorisant la mesure post-irradiation,
- émission de raies γ avec des probabilités suffisantes, si possible à haute énergie (E > 1 MeV) pour diminuer la contribution du fond continu, et dans une zone du spectre non perturbée par d' autres raies γ.

Pour cela, les sections macroscopiques de capture Σ_c de tous les isotopes X disponibles ont été estimées par un calcul déterministe APOLLO2 + JEFF3.1, relativement à l' uranium 238. Afin de disposer d' un point de recalage expérimental, un échantillon de calibration à 0.71% en uranium 235 a été irradié au centre du réseau R1-UO2 dans MINERVE, pendant 3 heures à une puissance de 80 W, et placé à 200 mm du détecteur planaire. A partir des sections macroscopiques calculées et du taux de comptage de la raie γ du neptunium 239 (produit de capture de l' uranium 238) à E_{Np} = 277.6 keV, les taux de comptage estimés pour les différents isotopes sont déduits de la relation :

$$n(E_X) = \frac{\Sigma_c(X)}{\Sigma_c(^{238}U)} \frac{I(E_X)R^P(E_X)T(E_X)C_{dec}(^{239}Np)}{I(E_{Np})R^P(E_{Np})T(E_{Np})C_{dec}(X)} n(E_{Np})$$

En utilisant la courbe d' étalonnage déterminée dans le chapitre 2 de la partie II (**Fig. 52**) et les calculs de transferts de rendement menés au chapitre 1 de la partie III pour déterminer un ordre de grandeur de $T(E)$, les réactions de capture suivantes sont finalement retenues :

Réaction	Produit de capture	Période radioactive **[23]**	Principales raies γ
^{151}Eu(n,γ)	^{152}Eu	13.5 a	344.3 keV 964.1 keV 1408.0 keV
^{153}Eu(n,γ)	^{154}Eu	8.59 a	1004.7 keV 1274.4 keV
^{164}Dy(n,γ)	^{165}Dy	2.33 h	279.8 keV 361.7 keV
^{170}Er(n,γ)	^{171}Er	7.52 h	295.9 keV 308.3 keV
^{180}Hf(n,γ)	^{181}Hf	42.4 j	345.9 keV 482.2 keV
^{232}Th(n,γ)	^{233}Pa	27.0 j	300.1 keV 312.0 keV
^{236}U(n,γ)	^{237}U	6.75 j	208.0 keV
^{238}U(n,2n)	^{237}U	6.75 j	208.0 keV
^{238}U(n,γ)	^{239}Np	2.36 j	277.6 keV
^{237}Np(n,γ)	^{238}Np	2.12 j	984.5 keV 1028.5 keV
^{242}Pu(n,γ)	^{243}Pu	4.96 h	84.0 keV 381.7 keV

Tab. 41 : radionucléides adaptés pour la mesure d'indice de capture par spectrométrie γ

2.2 Conceptions mécaniques

Afin d'optimiser la mesure des réactions de capture précédentes, des modifications ont été apportées au banc de spectrométrie γ utilisé pour les études de taux de conversion de l'uranium 238 :

- fabrication d'un berceau pour supporter l'échantillon et permettre sa mise en rotation, grâce à un système de transmission de l'arbre moteur,
- fabrication d'une couronne de collimation en dénal (95% de tungstène) doublée d'un écran interne de 1 mm de cuivre et 1 mm de cadmium, afin de protéger le détecteur de la fluorescence X du plomb provenant des bancs de mesure voisins et de l'activité γ provenant de l'environnement de travail.

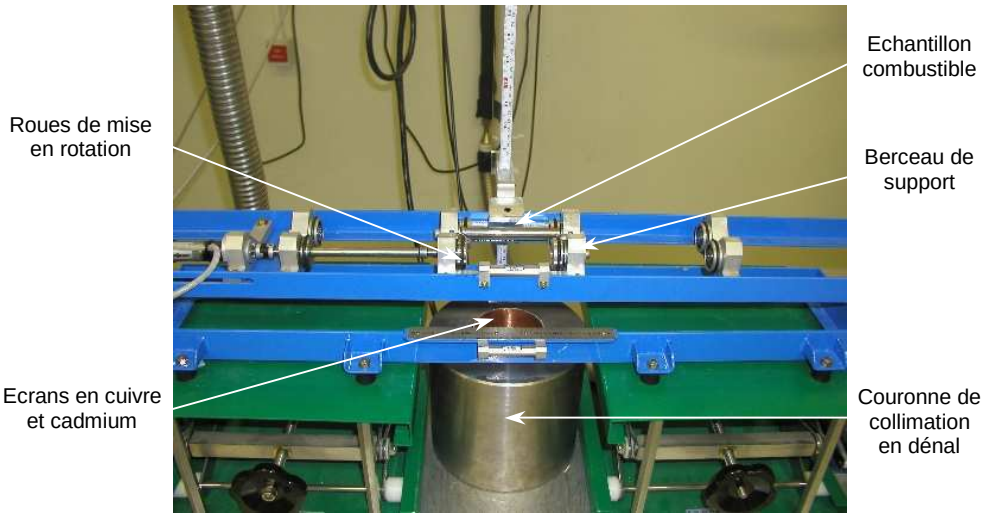

Fig. 77 : banc de spectrométrie γ adapté pour la mesure d'échantillons combustible

Pour dégager des informations sur la contribution de la composante épithermique du spectre neutronique au taux de réaction total, des expériences d'irradiation sous cadmium ont été conçues. Un conteneur de Zy4, d'épaisseur 0.2 mm et doublé d'une enveloppe interne de 0.5 mm de cadmium, a été fabriqué pour permettre l'introduction d'un échantillon combustible et son irradiation au centre du réacteur MINERVE. Des bouchons en Zy4, doublés d'une pastille de cadmium de 0.5 mm, sont maintenus solidaires du tube par un joint en silicone qui assure l'étanchéité de l'ensemble (**Fig. 78**) :

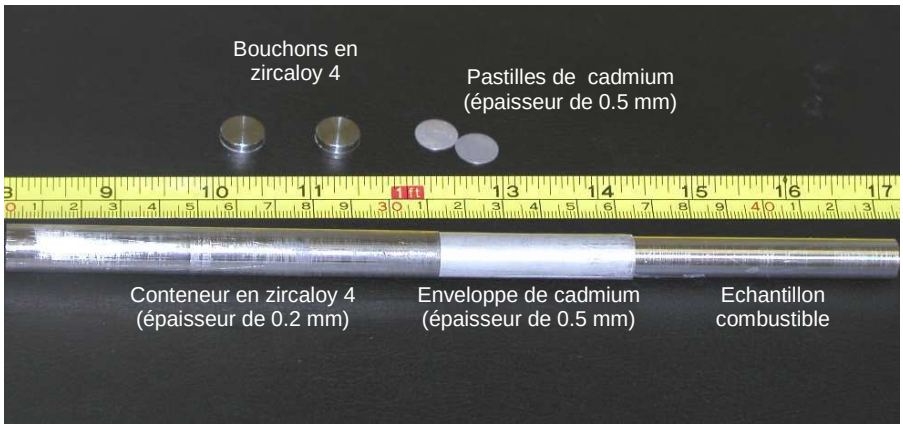

Fig. 78 : dispositif pour la réalisation d'irradiations sous cadmium d'échantillons combustibles

2.3 Etude des phénomènes perturbateurs de fluorescence X

Par le passé, la mesure de la capture sur le plutonium 242 via la raie γ à 84 keV, avait déjà fait l'objet d'une étude de faisabilité sur des crayons EOLE **[44]**. L'un des principaux phénomènes limitatifs résidait dans l'apparition de raies de fluorescence X du plomb à l'énergie de 84.7 keV. La fabrication d'une couronne de tungstène entourant le détecteur permet de réduire une partie de ce phénomène sans toutefois le faire disparaître complètement.

Une étude a donc été menée pour en comprendre la provenance. Pour cela, le détecteur a été extrait du banc de mesure et entouré d'une enveloppe de protection de 6 mm de cadmium et de 3 mm de cuivre contenant la totalité du capot du détecteur (cristal de germanium et préamplificateur de charges). Des sources de cadmium 109 et de cobalt 60 d'activité semblable, ont été disposées à proximité du détecteur (**Fig. 79**) :

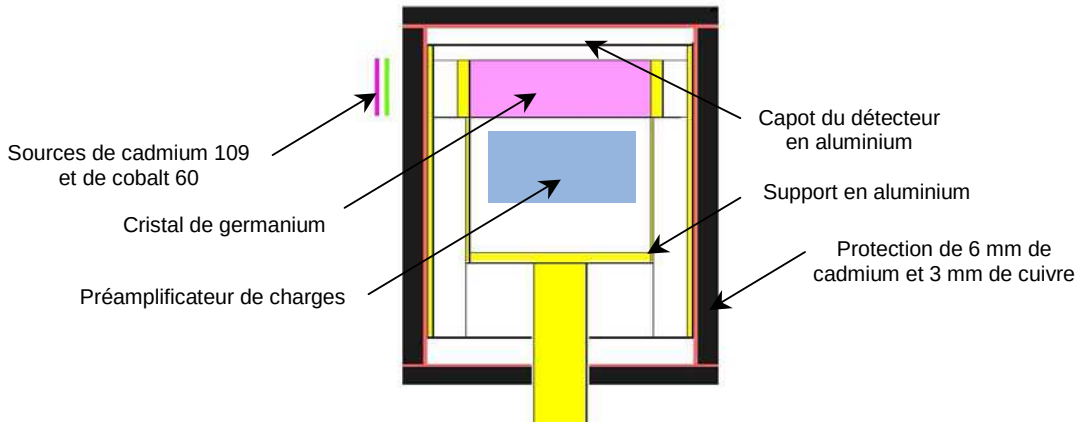

Fig. 79 : expérience d'identification du phénomène de fluorescence X du plomb

Malgré la mise en place de ces protections radiologiques autour du détecteur, le spectre γ mesuré montre toujours des raies X du plomb aux énergies 72.8, 75 et 84.7 keV (correspondant aux raies $K\alpha_1$, $K\alpha_2$ et $K\beta$) alors que la raie γ à 88.0 keV du cadmium 109 est totalement absorbée. Or, si le rayonnement de fluorescence provenait de matériaux extérieurs au détecteur, il serait nécessairement plus faible que celui des sources excitatrices et a fortiori de celle de cadmium 109. De ce fait, on peut conclure que l'origine des raies X observées est interne au détecteur. Une explication probable pourrait provenir des contacts en étain utilisés sur les cartes électroniques du préamplificateur qui ne font pas l'objet des mêmes critères de pureté isotopique que les matériaux constitutifs de la partie supérieure du détecteur (cristal, support, capot). Le phénomène ne peut donc être atténué sans recourir à des moyens lourds et coûteux, impliquant une immobilisation du détecteur pour plusieurs mois.

Aucune solution définitive n'a donc pu être mise en oeuvre au cours de la thèse. Néanmoins, un étalonnage du taux de comptage de la raie à 84.7 keV en fonction de l'activité de la source excitatrice peut être réalisé à partir d'échantillons semblables à celui contenant du plutonium 242. Il est également possible de réaliser une calibration à partir du taux de comptage des raies de fluorescence X de plomb émises à plus basse énergie. Enfin, une troisième solution consiste à optimiser la résolution de la chaîne de mesure afin de permettre la déconvolution les raies à 84.0 et à 84.7 keV. Ces différentes solutions seront examinées par la suite.

3 DESCRITPTION DES MESURES REALISEES

Les expériences d'irradiation ont été mises en œuvre dans le réseau R1-UO2 du réacteur MINERVE. Les échantillons combustibles ont été introduits au centre radial et axial de la zone expérimentale, maintenus entre deux cylindres d'aluminium AG3 dans une canne en acier inoxydable, dite « canne d'oscillation » (**Fig. 87**). Pour les échantillons irradiés sous cadmium, un contrôle d'étanchéité du dispositif d'irradiation a été mené, par pesée avant et après immersion de l'ensemble.

Une fois l'irradiation effectuée, la phase de refroidissement a été adaptée en tenant compte de la période radioactive du radionucléide étudié et de la décroissance temporelle de l'activité γ totale du combustible. Toutes les mesures ont ensuite été réalisées sur le banc de spectrométrie γ dédié, à l'exception de celles consacrées aux échantillons UAl et UMoAl pour lesquelles le détecteur était indisponible. Le banc équipé du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative, a donc été employé. La plupart des échantillons ont été positionnés à une distance de 200 mm du détecteur qui permet un bon compromis entre le temps mort, la durée de mesure et l'influence des coïncidences vraies. Des séries de 5 à 12 mesures successives ont été réalisées pour contrôler la cohérence des variances internes et externes. Leur durée a été adaptée à partir de l'étude de faisabilité précédente (de 30 min à 3 j).

Parmi les différentes réactions étudiées, la capture (n,γ) de l'uranium 238 a fait l'objet d'une attention particulière car elle constitue un bon indicateur pour la qualification du spectre neutronique. En effet, la mesure du taux de conversion est représentative de la proportion de neutrons épithermiques (capture résonnante de l'uranium 238) par rapport aux neutrons thermiques (fission de l'uranium 235). De ce fait, des mesures ont été réalisées sur des crayons du réseau **[102]** (**Tab. 42**), sur des échantillons à différents enrichissements en uranium 235 et pour des combustibles de type UAl et UMoAl (**Tab. 43**). A noter que la capture de type (n,2n) a également été étudiée à partir d'un échantillon UO_2 appauvri en uranium 235 (0.25%) à très faible teneur en uranium 236 (< 1 ppm), afin de découpler les deux modes de production d'uranium 237 pour l'échantillon dopé en uranium 236.

Crayon	Type de combustible	Isotopie $^{235}U / U_{tot}$	Densité	Diamètre (mm)	Hauteur (mm)	Position[29] (x ; y)	Puissance intégrée (W.h)	Durée cumulée de mesure (h)
U1	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(2 ; 0)	239	1.5
U2	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(1 ; 0)	239	1.5
U3	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(-1 ; 0)	239	1.5
U4	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(-2 ; 0)	239	1.5
U5	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(1 ; -1)	239	1.5
U6	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(-1; 1)	239	1.5
U7	UO_2	3.04%	10.21	8.05	500	(4 ; -4)	239	1.5
V	UMoAl	20.0%	9.93	4.99 / 8.04	500	(0 ; 0)	239	1.5

Tab. 42 : descriptif des mesures de taux de conversion de l'uranium 238 sur crayon

Echantillon	Type de combustible	Isotopie $^{235}U / U_{tot}$	Densité	Diamètre (mm)	Hauteur (mm)	Surgaine	Puissance intégrée (W.h)	Durée cumulée de mesure (h)
H1	UO_2	0.251%	10.44	8.09	94.1	-	243	120
H2	UO_2	0.495%	10.46	8.09	94.1	-	143	13
H3	UO_2	0.710%	10.52	8.09	94.1	-	240	6
H3+Cd	UO_2	0.710%	10.52	8.09	94.1	Zy4 + Cd	205	10
H5	UO_2	2.01%	10.61	8.10	94.1	-	63	24
H6	UO_2	3.01%	10.62	8.10	94.1	-	239	2
URE	UO_2	4.00%	10.60	8.12	92.3	-	203	24
H8	UO_2	4.93%	10.65	8.10	94.1	-	102	23
UappAl	UAl	0.476%	4.01	8.05	95.0	-	240	3
U20%Al	UAl	20.0%	4.19	8.05	94.9	-	120	3
UMoAl2.2	UMoAl	20.0%	4.67	4.99 / 8.02	94.7	-	120	3
UMoAl8	UMoAl	20.0%	9.93	4.99 / 8.04	95.0	-	120	3

Tab. 43 : descriptif des mesure de taux de conversion de l'uranium 238 suréchantillon

L'étude des absorbants neutroniques est ensuite menée sur les échantillons OCEAN adaptés à cette technique, à l'exception du gadolinium non disponible au moment de la campagne de mesures (**Tab. 44**). A noter que compte tenu des périodes radioactives de l'europium 152 et 154 ($T_{1/2}$ > 9 a), les mesures sous cadmium n'ont pas pu être réalisées à partir des échantillons correspondants.

Echantillon	Type de combustible	Isotopie $^{235}U / U_{tot}$	Isotopie dopant / U_{tot}	Densité	Diamètre (mm)	Hauteur (mm)	Surgaine	Puissance intégrée (W.h)	Durée cumulée de mesure (h)
Eu151	UO_2 + ^{151}Eu	0.742%	0.121%	10.60	8.13	94.8	-	202	289
Eu153	UO_2 + ^{153}Eu	0.742%	1.73%	10.43	8.16	94.9	-	201	119
Dy164	UO_2 + ^{164}Dy	0.742%	0.465%	10.50	8.21	94.7	Zy4	161	4
Dy164+Cd	UO_2 + ^{164}Dy	0.742%	0.465%	10.50	8.21	94.7	Zy4 + Cd	174	2.5
Er170	UO_2 + ^{170}Er	0.742%	8.28%	10.59	8.19	94.7	Zy4	202	6.7
Er170+Cd	UO_2 + ^{170}Er	0.742%	8.28%	10.59	8.19	94.7	Zy4 + Cd	208	6.7
Hf180	UO_2 + ^{180}Hf	0.742%	8.44%	10.33	8.20	94.6	-	204	25.6
Hf180+Cd	UO_2 + ^{180}Hf	0.742%	8.44%	10.33	8.20	94.6	Zy4 + Cd	208	36

Tab. 44 : descriptif des mesures d'indice de capture d'absorbants neutroniques

[29] cf. **Fig. 56**.

Enfin la campagne de mesures consacrée à l' étude des actinides s' est appuyée sur tous les échantillons OSMOSE mesurables par spectrométrie γ (**Tab. 45**). A noter que la comparaison des deux échantillons contenant du thorium (UO_2 + ^{232}Th et ThO_2) permet de découpler en partie les effets de capture et de fission de cet isotope. Ces mesures contribuent aussi à mettre en évidence des tendances sur les rendements de fission du thorium, mal connus à ce jour, ainsi qu' à évaluer la capacité des codes à calculer le domaine de flux rapide (fission à seuil du thorium pour E > 1.5 MeV).

Echantillon	Type de combustible	Isotopie $^{235}U / U_{tot}$	Isotopie dopant / U_{tot}	Densité	Diamètre (mm)	Hauteur (mm)	Surgaine	Puissance intégrée (W.h)	Durée cumulée de mesure (h)
Th232	ThO_2	-	-	9.30	8.16	93.1	-	201	141.7
U-Th232	UO_2 + ^{232}Th	0.722%	5.09%	10.44	8.08	92.7	-	242	14
U236	UO_2 + ^{236}U	4.00%	0.903%	10.60	8.12	92.3	-	203	24
Np237	UO_2 + ^{237}Np	0.722%	1.31%	10.53	8.12	94.0	-	163	35.7
Pu242	UO_2 + ^{242}Pu	0.722%	1.10%	10.27	8.13	92.3	-	84	24.6

Tab. 45 : descriptif des mesures d' indice de capture d' actinides

4 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

4.1 Taux de comptage à saturation

4.1.1 Traitement des spectres

Les mesures de taux de capture sont obtenues à partir des raies γ présentées lors de l' étude faisabilité (**Tab. 41**). La normalisation au taux de fission total est obtenue à partir d' au moins deux produits de fission de nombre de masse différent. Leur choix dépend de la période radioactive du radionucléide formé par capture, de telle façon que la mesure des deux taux de réaction soit simultanée. Un exemple de spectre γ obtenu pour l' échantillon Eu151 est donné ci-dessous :

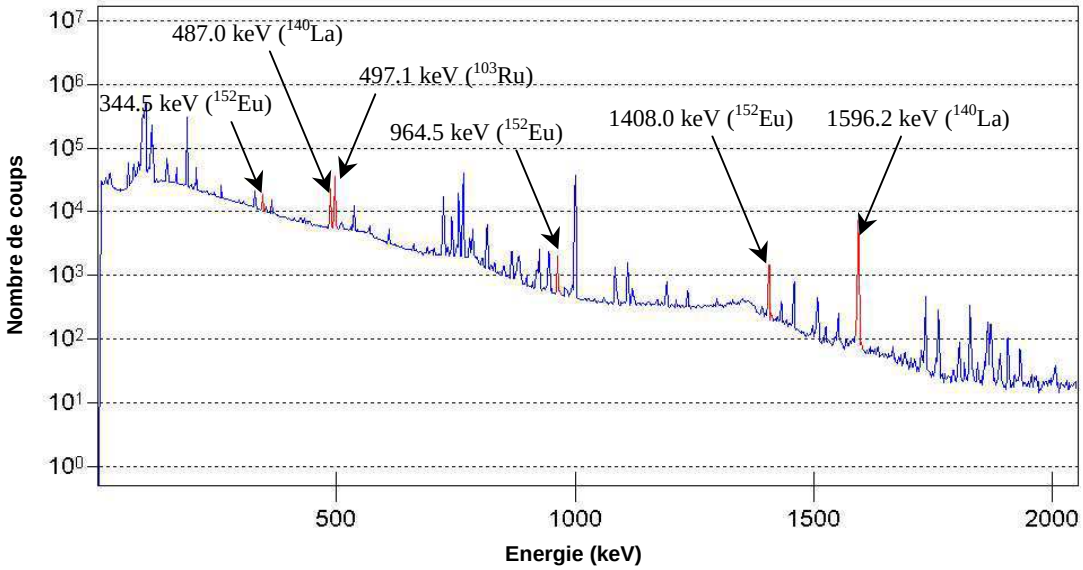

Fig. 80 : spectre γ de l' échantillon Eu151 enregistré pendant 87 heures, 1 mois après irradiation

Les 29 raies γ étudiées entre les différents combustibles correspondent pour la plupart à des cas standards de pics simples ou de multiplets pour lesquels le logiciel GENIE 2000 est bien adapté. En revanche, certains cas nécessitent une étude plus approfondie, quant à la méthode de mesure employée ou bien quant à la représentativité de la surface nette obtenue (i.e. plusieurs raies γ sous un même pic) Le tableau ci-dessous présente, tout d'abord, les trois cas sensibles de mesurage de surface nette pour lesquels une analyse de sensibilité à la méthode de traitement des spectres est nécessaire :

Raie étudiée	Type de pic	Rapport fond / pic
208.0 keV (^{237}U)	Multiplet avec la raie γ à 209.8 keV (^{239}Np)	de 2.5 à 3.5
279.8 keV (^{165}Dy)	Multiplet avec la raie γ à 277.6 keV (^{239}Np)	de 5.5 à 6
381.7 keV (^{243}Pu)	Singulet	de 3.5 à 10

Tab. 46 : synthèse des pics les plus sensibles aux paramètres d'analyse

L'étude menée au chapitre 1 de la partie II montre que ces pics s'approchent des limites de validité du logiciel en terme de rapport fond / pic H_f / H_p, d'autant plus que les deux premiers correspondent à des multiplets. Différentes méthodes de traitement sont donc étudiées :

- la méthode n°1 utilise l'algorithme d'ajustement avec paramètres de forme variable,
- la méthode n°2 utilise l'algorithme d'ajustement avec paramètres de forme fixes, étalonnés à partir de quelques pics bien définis (H_f / H_p < 0.1) et de bonne statistique (< 0.5%).

Pour chacune de ces méthodes, 2 largeurs de RI (2× ou 3× la LTMH) sont considérées ainsi que les 2 modèles de soustraction de fond continu (linéaire ou escalier). On obtient alors 8 estimateurs de surface nette pour chaque spectre analysé et pour chaque combustible. Après correction des facteurs de temps mort r_θ et de décroissance radioactive r_{dec} et calcul de la moyenne pondérée des résultats, on en déduit 8 estimateurs du rapport des taux de comptage à saturation pour chaque combustible. Le résultat retenu est celui dont la reproductibilité entre les différents mesurages est la meilleure (i.e. variance externe la plus faible). L'incertitude associée est estimée en ajoutant à la variance interne de la moyenne, la variance de l'échantillon des 8 estimations obtenues.

Ensuite, il existe des pics dont la surface nette n'est pas directement proportionnelle à l'activité du radionucléide étudié. En recherchant toutes les raies γ et X susceptibles d'apparaître à une énergie ne pouvant être résolue du pic d'intérêt, on identifie les cas suivants:

Raie γ étudiée	Raie perturbatrice non résolue	Ordre de grandeur de la correction
84.0 keV (^{243}Pu)	84.7 keV (X-Kβ Pb)	de 3 à 19%
277.6 keV (^{239}Np)	277.4 keV (^{208}Tl)	< 1.5%
300.1 keV (^{233}Pa)	300.1 keV (^{212}Pb)	de 5% à 10%
361.7 keV (^{165}Dy)	361.1 keV (^{142}La) 361.1 keV (^{133}I) 363.5 keV (^{88}Kr)	de 4.5% à 20%
487.0 keV (^{140}La)	487.5 keV (^{132}I)	< 3%
954.5 keV (^{132}I)	953.3 keV (^{92}Sr)	< 4%
1596.2 keV (^{140}La)	1596.5 keV (^{154}Eu)	< 1.5%

Tab. 47 : synthèse des pics nécessitant une correction analytique de leur surface nette

La correction de la surface nette est obtenue en recherchant dans le spectre d'autres raies γ émises par le radionucléide perturbateur afin d'estimer la contribution du pic ne pouvant être résolu. Par exemple, pour la raie à 487.0 keV du lanthane 140, la surface nette due à la raie à 487.5 keV de l'iode 132 est déduite à partir de celle à 954.5 keV, après correction de la probabilité d'émission γ et du rendement d'absorption totale :

$$N(E_o) = \frac{I(E_o)R^P(E_o)}{I(E_i)R^P(E_i)} N(E_i)$$

Le cas particulier de la raie γ à 84.0 keV du ^{243}Pu a fait l'objet d'une étude à part, compte tenu de la difficulté de mesurer les raies X-Kα_1 et Kα_2 de fluorescence du plomb à 72.8 et 75 keV pour déduire la surface nette du pic perturbateur à 84.7 keV. En premier lieu, il a été nécessaire d'adapter la durée de refroidissement t_o qui maximise la surface nette du pic à 84.0 keV du plutonium 243. En remarquant que la fluorescence X est proportionnelle à l'activité de la source excitatrice et en utilisant la relation **(24)** estimant la décroissance de l'activité d'un échantillon après irradiation, on peut représenter le ratio entre le taux de comptage de la raie γ à 84.0 keV et celui de la raie X à 84.7 keV :

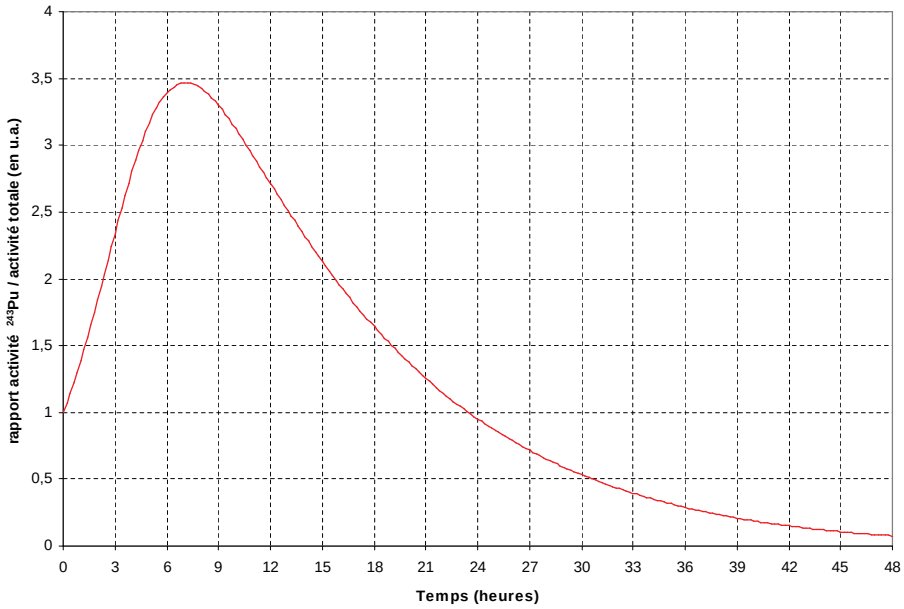

Fig. 81 : évolution du ratio entre le pic du ^{243}Pu et le pic de fluorescence X du plomb à 84.7 keV

Un optimum est obtenu pour une durée t_o = 7 h. Celui-ci correspond également à un rapport pic / fond maximal puisque la hauteur fond continu est proportionnelle à l'activité de l'échantillon. La série des 7 mesures est donc distribuée autour de ce temps afin d'améliorer l'incertitude de comptage.

En second lieu, comme l'écart en énergie entre les deux raies est proche de la résolution théorique du détecteur (LTMH de 565 eV à 122 keV), les réglages du DSP ont été adaptés pour tester une déconvolution numérique des pics. Une constante de mise en forme 4 fois plus élevée a été appliquée (i.e. RT = 4.8 µs) et la distance source-détecteur ajustée à 400 mm pour compenser l'accroissement du temps mort. Pour faciliter la convergence de l'algorithme d'ajustement du pic, le gain de l'amplificateur a été augmenté jusqu'à G = 0.968 et l'échelle de l'analyseur à 16384 canaux. Comme les pics associés à des raies γ et X n'ont pas exactement la même forme, le logiciel d'analyse COLEGRAM **[103]** a été utilisé car il dispose de modèles d'ajustement de la forme du spectre plus sophistiqués pour le traitement de la déconvolution qu'avec GENIE 2000.

Une autre possibilité pour soustraire le pic de fluorescence X-Kβ à 84.7 keV consiste à étalonner sa surface nette en fonction de l' activité de la source, à partir d' un échantillon combustible équivalent, non dopé en plutonium 242, irradié en réacteur et mesuré dans les même conditions :

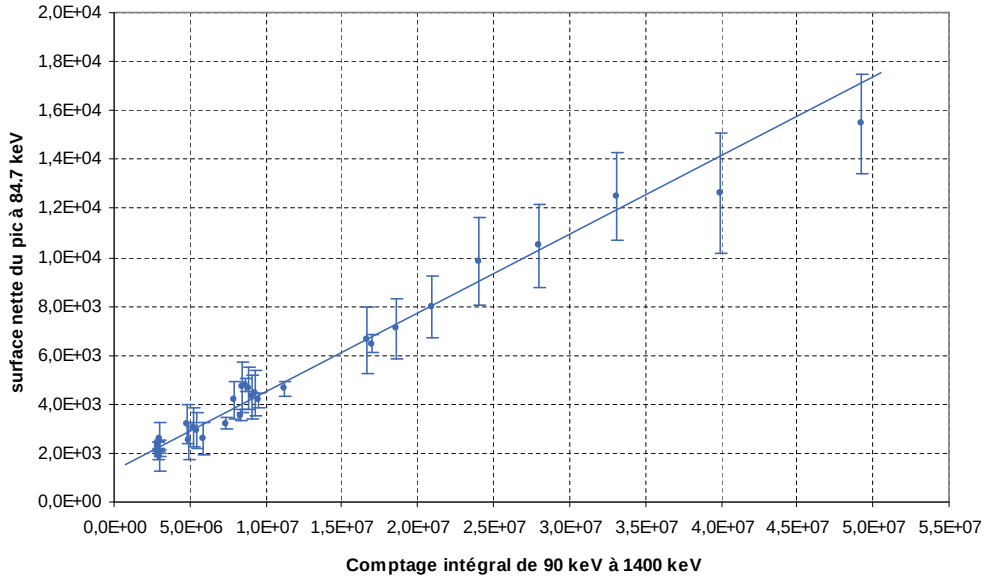

Fig. 82 : étalonnage du pic de fluorescence X à 84.7 keV en fonction du comptage intégral

Le tableau suivant synthétise les taux de comptage à saturation du ^{243}Pu, obtenus d' après les différentes méthodes exposées ci-dessus :

Méthode de soustraction du pic de fluorescence X à 84.7 keV	$\overline{n_{sat}}$ (s^{-1})	$\frac{u_{ext}(\overline{n_{sat}})}{\overline{n_{sat}}}$
Etalonnage fonction du pic X-Kα1 à 72.8 keV	86.8	1.72%
Etalonnage fonction du comptage intégral	87.3	1.70%
Déconvolution numérique de GENIE 2000	88.7	3.79%
Déconvolution numérique de COLEGRAM	88.8	2.53%

Tab. 48 : comparaisons des méthodes de traitement sur la mesure d' activité du ^{243}Pu

On observe que les différentes estimations du taux de comptage à saturation sont cohérentes à $k = 1$ ce qui tend à valider les quatre méthodes mises en œuvre. On note également que la méthode de déconvolution est mieux maîtrisée par COLEGRAM que GENIE 2000 en terme de reproductibilité entre les 7 mesures. Cette différence provient du fait que le pic de fluorescence Kβ à 84.8 keV est en réalité la superposition des trois raies Kβ1, Kβ3 et Kβ5″ aux énergies respectives de 84.94, 84.45 et 84.47 keV, qui ne peuvent être discriminées. Contrairement à GENIE 2000 qui ne permet d' ajuster le pic que par une gaussienne, COLEGRAM est en mesure de décrire ces trois raies X par des lorentziennes (forme réelle d' un pic de raie X). Néanmoins, pourles trois derniers spectres de la série de mesure où le pic du ^{243}Pu devient plus délicat à extraire, la déconvolution numérique est moins bien maîtrisée et les méthodes de soustraction analytique sont alors favorisées. Au final, on a donc retenu le résultat qui correspondait à la meilleure reproductibilité expérimentale, à savoir celle qui consiste à étalonner le comptage du pic à 84.7 keV par rapport au comptage intégral du spectre.

4.1.2 Calcul des facteurs correctifs

Le traitement des différents spectres étant réalisé, les corrections de décroissance radioactive sont appliquées pour tous les radionucléides mesurés, selon les relations **(19)** et **(20)**.

Les rapports de corrections de temps mort r_θ sont calculés en tenant compte de la décroissance de l'activité au cours de la mesure sur l'estimation du temps mort, contrairement au passé où ces rapports étaient systématiquement pris égaux à l'unité **[39]**,. Pour illustrer l'influence de la post-correction ξ sur le rapport r_θ, le tableau suivant présente quelques exemples :

Produit de capture	Produit de fission	r_θ
^{243}Pu	^{143}Ce	1.00384
^{243}Pu	^{91m}Y	1.00108
^{165}Dy	^{143}Ce	1.00081
^{171}Er	^{132}I	1.00002

Tab. 49 : rapports de corrections de temps mort tenant compte de la décroissance radioactive au cours de la mesure

Les corrections induites sont donc mineures et n'affectent que les mesures de radionucléides de courte période radioactive, réalisées dans les heures qui suivent l'irradiation. On rappelle également que comme la réponse de la chaîne numérique DSP est indépendante de l'énergie de la raie γ étudiée, on pourra négliger l'incertitude sur le rapport r_θ.

Enfin, la dernière étape consiste à estimer les facteurs de correction de coïncidences vraies pour tous les radionucléides étudiés. Pour cela, on aura préalablement estimé par calcul MCNP4C2, l'allure de la courbe de rendement total et de rendement d'absorption pour une source de photons distribuée uniformément dans un échantillon UO_2 de densité 10.5, placé à 200 mm du détecteur. Cette courbe est représentative du profil réel, pour une incertitude majorante de 10% (cf. section §5.3, chapitre 2, partie II) et s'avère suffisante pour établir les facteurs correctifs C_{coinc}. Le tableau suivant donne des ordres de grandeur de corrections calculées par ETNA :

Radionucléide	Raie γ	C_{coinc}
^{92}Sr	1383.9 keV	0.99997
^{140}La	487.0 keV	1.00001
^{152}Eu	1408.0 keV	0.99996
^{154}Eu	1004.8 keV	0.99990

Tab. 50 : corrections de coïncidences vraies calculées par ETNA

Pour plusieurs radionucléides, tels que l'iode 132 ou le neptunium 238, la connaissance du schéma de décroissance est incomplète et le calcul ne peut être réalisé par ETNA. Cependant, compte tenu de l'amplitude des corrections observées ci-dessus, on peut supposer que l'erreur commise est négligeable. Par précaution, on a ajouté une incertitude majorante de 0.1% à tous les radionucléides pour lesquels le calcul de C_{coinc} ne peut être réalisé.

Compte tenu du volume de données que représentent toutes les mesures réalisées (environ 1100 raies γ traitées) et pour ne pas alourdir le mémoire de thèse de tableaux de valeurs n'ayant pas de signification physique, la synthèse des rapports de taux de comptage à saturation pour tous les combustibles étudiées n'est pas donnée. En revanche, on trouvera plus loin la synthèse des indices de capture r_C obtenus après correction des différents termes.

4.1.3 Rendements d'absorption totale

A partir des courbes d'étalonnage établies au chapitre 2 de la partie II, on déduit le rapport des rendements d'absorption totale pour toutes les combinaisons de raies γ de capture et de fission. L'incertitude est estimée à partir du calcul de propagation des variances présenté au chapitre 3, en tenant compte de la matrice de variance des données d'étalonnage et en estimant l'influence du modèle mathématique retenu pour représenter la loi $R^P(E)$. Le tableau suivant présente quelques exemples de rapports r_{R^P} obtenus pour différents couples de raies γ d'énergie E_c et E_f (la synthèse complète est reportée en **Annexe D**) :

E_c	E_f	r_{R^P}	$\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}$
84.0 keV (^{243}Pu)	1383.9 keV (^{92}Sr)	0.0471	0.77%
277.6 keV (^{239}Np)	293.3 keV (^{143}Ce)	0.9238	0.04%
279.8 keV (^{165}Dy)	1836.0 keV (^{88}Rb)	0.1006	0.45%
295.9 keV (^{171}Er)	555.6 keV (^{91m}Y)	0.4245	0.46%
312.0 keV (^{233}Pa)	487.0 keV (^{140}La)	0.5419	0.41%
482.2 keV (^{181}Hf)	487.0 keV (^{140}La)	0.9871	< 0.01%

Tab. 51 : rapports de rendements d'absorption totale mesurés (détecteur planaire)

Au cours des études passées, une incertitude enveloppe de 2.5% était associée au rapport r_{R^P}, quelles que soient les énergies E_c et E_f **[39]**. Dans le cas présent, l'incertitude obtenue est d'autant plus faible que les énergies du couple de raies γ sont proches et parmi les 96 cas de figure considérés (cf. **Annexe D**), elles restent systématiquement inférieures à 1%. Cette réduction provient pour l'essentiel de la prise en compte des covariances liées à l'utilisation d'une même courbe d'étalonnage et aux corrélations entre les étalons utilisés. Ces incertitudes sont en outre mieux maîtrisées car elles tiennent compte de l'incertitude sur le modèle mathématique retenu.

Ces deux points constituent le principal progrès réalisé par rapport aux méthodes de traitement utilisées par le passé. La composante de l'incertitude liée à l'expérience, incluant la mesure du taux de comptage et l'étalonnage en rendement, se trouve alors réduite d'un facteur 2 sur les mesures d'indice de capture et jusqu'à un facteur 6 dans le cas particulier du taux de conversion de l'uranium 238.

4.2 Transferts de rendement

Les rapports de rendements d'absorption totale étant déterminés, il reste à calculer le rapport des transferts de rendement pour corriger des effets d'autoabsorption γ et d'angle solide.

4.2.1 Calcul neutronique des distributions de taux de réaction dans le combustible

Au préalable, on doit estimer les profils radiaux de taux de réaction en couronne pour tous les échantillons et crayons combustibles étudiés, afin de tenir compte de l' hétérogénéité des sources de photons dans le combustible. On utilise pour cela le schéma de calcul APOLLO2 + JEF2.2 dédié.

L' uranium 238 est le principal isotope concerné par le phénomène d' autoprotection neutronique. Une discrétisation fine de 10 à 20 couronnes est donc nécessaire pour prendre en compte le fort gradient de taux de capture (n,γ) observé (**Fig. 83**). Dans le cas du plutonium 242, la section de capture et l' autoabsorption γ à 84.0 keV sont si élevées qu' une discrétisation à 20 couronnes est également requise **[104]**. Pour les autres actinides et absorbants (**Fig. 84**) qui interviennent à l' état de dopant, le phénomène est moins marqué et une discrétisation de 1 à 4 couronnes est suffisante.

Les profils de taux fission, dominés par la contribution thermique de l'uranium 235, dépendent essentiellement de l' enrichissement et de la densité du combustible (**Fig. 85**). Pour les mesures réalisées sous cadmium, la fission de l' uranium 238 devient prépondérante et on observe un profil pratiquement plat car la composante rapide du spectre varie peu en fonction du rayon.

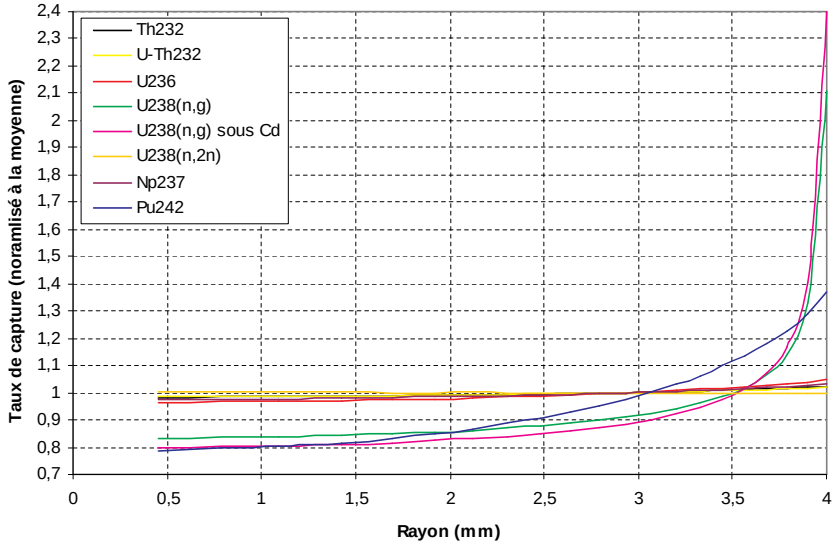

Fig. 83 : profils radiaux de taux de capture calculés sur les actinides

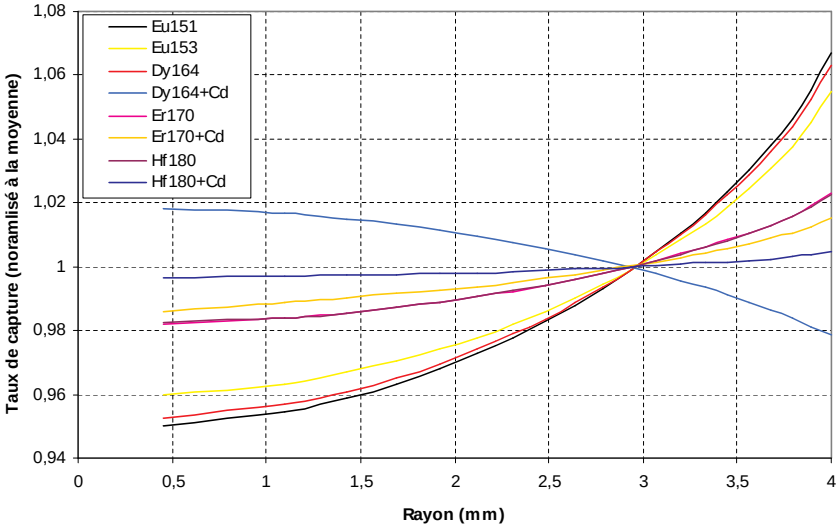

Fig. 84 : profils radiaux de taux de capture calculés sur les absorbants

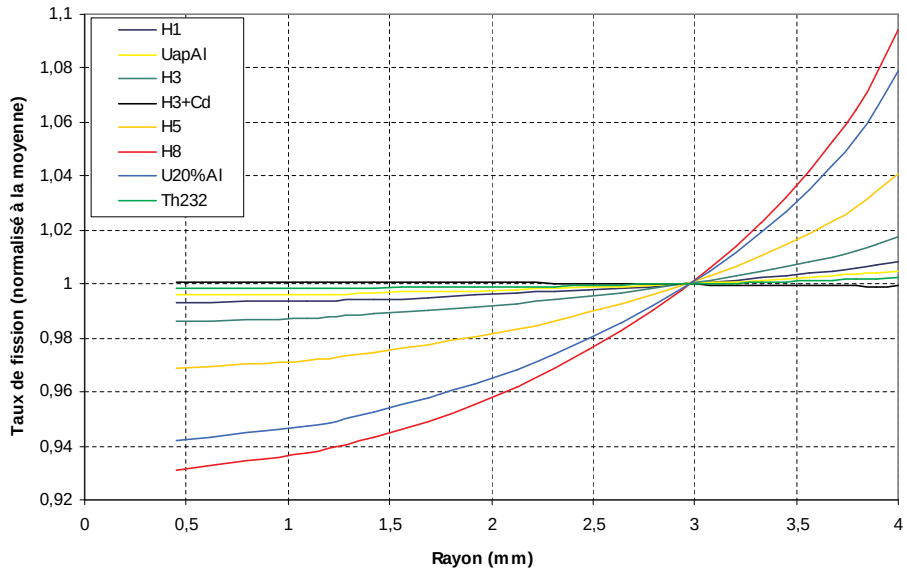

Fig. 85 : profils radiaux de taux de fission calculés sur les échantillons uranium

4.2.2 Calcul photonique des transferts de rendement

Les profils calculés sont ensuite insérés dans les schémas de transport γ. Afin d'estimer l'influence de la nouvelle méthode de calcul par rapport au passé où seule l'autoabsorption γ était prise en compte, on présente ci-dessous les rapports r_T obtenus à partir des deux approches :

		Anciens schémas de calcul (autoabsorption γ seule)		Nouveaux schémas de calcul (autoabsorption γ + angle solide)	
E_c	E_f	r_T	$\frac{u(r_T)}{r_T}$	r_T	$\frac{u(r_T)}{r_T}$
277.6 keV (^{239}Np)	293.3 keV (^{143}Ce)	1.025	0.42%	1.030	0.19%
277.6 keV (^{239}Np)	487.0 keV (^{140}La)	1.305	0.41%	1.350	0.19%
277.6 keV (^{239}Np)	954.5 keV (^{132}I)	1.451	0.38%	1.547	0.21%
277.6 keV (^{239}Np)	1596.2 keV (^{140}La)	1.504	0.36%	1.635	0.23%

Tab. 52 : transferts de rendements calculés pour l'échantillon U20%Al (détecteur coaxial)

On constate que pour les mesures de taux de conversion de l'uranium 238 réalisées par le passé à partir de la raie γ à 277.6 keV du neptunium 239 et la raie γ à 293.3 keV du cérium 143, la différence entre les deux approches est minime et compatible avec l'incertitude de convergence du calcul à k = 1. En effet, les énergies sont suffisamment proches pour que l'absence de prise en compte des effets d'angle solide biaise de façon identique les deux termes du rapport.

En revanche, pour les couples de raies γ dont le décalage en énergie est plus élevé, l'écart entre les deux méthodes n'est plus négligeable et atteint jusqu'à 8% pour le couple de raies γ à 277.6 et 1596.2 keV. Celui-ci est dû à la différence de réponse du détecteur selon l'angle d'incidence des photons sur la fenêtre d'entrée du détecteur, pour une énergie donnée. On peut alors constater que les deux mesures d'activité du lanthane 140, réalisées à partir des raies γ à 487.0 et 1596.2 keV, présentent une meilleure cohérence en utilisant les nouveaux de schémas de calcul :

	Anciens schémas de calcul (autoabsorption γ seule)		Nouveaux schémas de calcul (autoabsorption γ + angle solide)	
Raie γ	$A/\overline{A}$	$\frac{u(A)}{A}$	$A/\overline{A}$	$\frac{u(A)}{A}$
487.0 keV	0.979	0.60%	1.004	0.64%
1596.2 keV	1.021	0.98%	0.996	1.01%

Tab. 53 : comparaison des mesures d' activité du lanthane 140 obtenues à partie des deux méthodes de calcul des transferts de rendement

Ensuite, le calcul de perturbation du transfert de rendement $T(E)$ en fonction de la densité μ, réalisé pour chaque énergie, permet d' établir un profil type du coeficient de sensibilité (**Fig. 86**). Quelle que soit l' énergie E, on observe que l' incertitude propagée sur le transfert de rendement reste toujours inférieure à l' incertitude sur la densité. Or cette caractéristique du combustible est maîtrisée en moyenne à 0.5% pour les échantillons combustibles VALMONT, OCEAN et OSMOSE et à 1% pour les crayons combustibles UO_2. D' après l' expression **(71)**, on remarque que l' incertitude sur le rapport r_T fait intervenir la différence des coefficients de sensibilité. Aussi, la contribution de la densité au calcul du rapport r_T reste-t-elle inférieure à 0.5%.

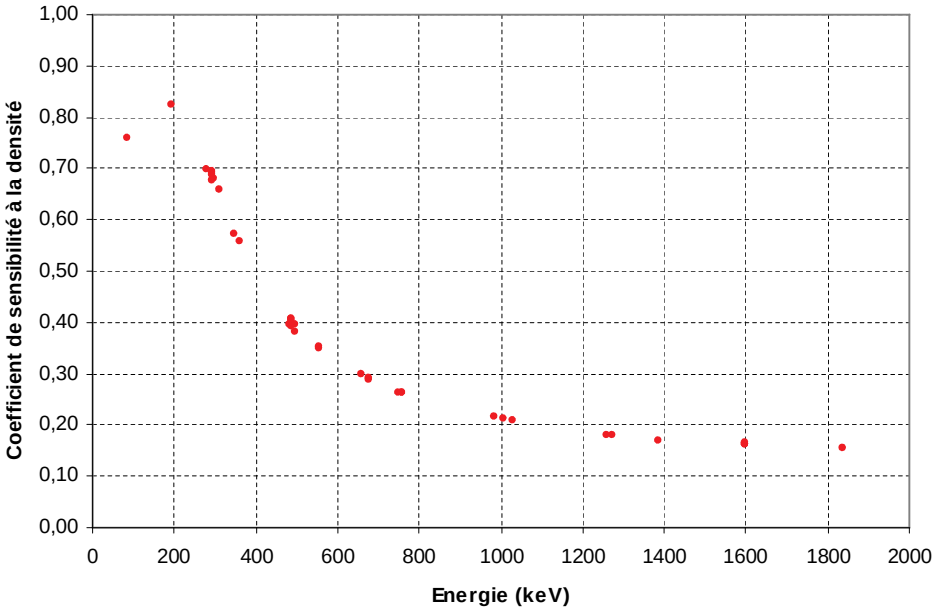

Fig. 86 : coefficient de sensibilité du transfert de rendement $T(E)$ en fonction de la densité μ

4.3 Rendements effectifs de fission

La dernière étape du traitement des mesures d' indice de capture consiste à estimer les rendements effectifs de fission de tous les produits de fission mesurés.

Dans un premier temps, on doit estimer les probabilités de fission relatives à tous les isotopes fissionnables, dans un maillage à trois groupes d' énergie. Le tableau ci-dessous regroupe les résultats de calcul APOLLO2 + JEF2.2, pour quelques échantillons et crayons combustibles :

Combustible	Isotopes fissionnables	*Thermal* [1 eV ; 9.118 keV]	*Fast* [9.118 keV ; 10 MeV]	*High* [10 MeV ; 19.6 MeV]
H1	^{235}U	61.65%	0.86%	<0.01%
	^{238}U	0.02%	36.91%	0.57%
H3	^{235}U	80.43%	1.18%	<0.01%
	^{238}U	0.01%	18.10%	0.28%
H3+Cd	^{235}U	35.96%	4.03%	0.01%
	^{238}U	0.03%	59.06%	0.91%
V	^{235}U	95.90%	2.69%	0.03%
	^{238}U	< 0.01%	1.33%	0.06%
Er170	^{235}U	80.32%	1.24%	0.00%
	^{238}U	0.01%	18.15%	0.28%
Pu242	^{235}U	79.85%	1.22%	0.01%
	^{238}U	0.01%	17.20%	0.81%
	^{242}Pu	-	0.86%	0.02%

Tab. 54 : contribution des différents isotopes fissionnables au taux de fission total

Ce tableau montre que les coefficients $\tau_{i.}$ sont fortement corrélés à l' enrichissement en uranium 235 et dépendent peu du type de dopant considéré. De ce fait, les rendements effectifs de fission entre les différents échantillons sont très similaires (à moins de 0.5% près). Pour éviter les données redondantes, on ne présentera donc que les tableaux des rendements de fission associés à un combustible UO_2 à 0.72% et au combustible ThO_2 :

	JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1	
Produit de fission	$\overline{Y}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}$	$\overline{Y}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}$	$\overline{Y}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}$
rubidium 88	3.219	7.81%	3.270	1.80%	3.316	1.70%
strontium 91	5.552	1.14%	5.496	0.92%	5.529	0.92%
yttrium 91m	2.776	100%	3.188	6.96%	3.253	5.08%
strontium 92	5.658	4.68%	5.635	1.27%	5.723	1.09%
ruthénium 103	3.584	5.39%	3.627	1.06%	3.64	1.94%
iode 132	4.402	0.91%	4.451	1.15%	4.368	1.07%
iode 135	6.350	2.79%	6.397	1.19%	6.384	2.91%
lanthane 140	6.168	1.56%	6.134	0.84%	6.242	1.26%
cérium 143	5.732	6.37%	5.705	1.21%	5.711	1.24%

Tab. 55 : rendements effectifs de fission pour un combustible enrichi à 0.72%

	JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1	
Produit de fission	$\overline{Y}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}$	$\overline{Y}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}$	$\overline{Y}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(\overline{Y})}{\overline{Y}}$
yttrium 91m	3.420	100%	4.255	7.19%	4.176	19.3%
strontium 92	7.008	1.54%	6.892	2.85%	7.038	3.89%
iode 132	2.822	3.26%	2.880	2.05%	2.604	4.02%
iode 135	5.442	6.32%	5.510	2.86%	5.443	4.84%
lanthane 140	7.755	5.45%	7.840	2.82%	7.672	3.21%
cérium 143	6.460	8.95%	6.617	2.85%	6.462	4.60%

Tab. 56 : rendements effectifs de fission pour un combustible de thorium pur

On observe que le lanthane 140 figure parmi les produits de fission dont les données sont les mieux maîtrisées dans JEFF3.1 et dont le rendement de. Du fait de son utilisation courante dans le physique des réacteurs pour caractériser des taux de fission **[105]**, on pourra donc considérer par la suite qu' il fait état de référence par rapport aux autres produits de fission étudiés.

Dans le cas de l' yttrium 91 métastable, une incertitude de 100%a été délibérément imposée sur le rendement de fission JEF2.2. Elle provient du rapport d' embranchement υ qui caractérise la probabilité de décroissance du strontium 91 vers l' état métastable de l' yttrium 91 et dont la connaissance est très approximative dans cette bibliothèque (υ = 0.5 ± ?).

Pour les autres produits de fission, une cohérence à k = 2 est observée entre les trois bibliothèques de données nucléaires considérées. Dans la section §4.5, la comparaison des résultats de mesure d' indice de capture permettra de dégager des tendances sur les différentes évaluations.

4.4 Synthèse des rapports cadmium de capture

Le rapport R_{cd} représente le ratio entre le taux de capture obtenu pour une irradiation sans cadmium et le taux de capture obtenu avec cadmium. A partir des expressions établissant le lien entre le taux de réaction et le taux de comptage à saturation $n_{sat}(E)$, ce rapport s' écrit :

$$R_{cd} = \frac{C_{sans\ cd}}{C_{avec\ cd}} = \frac{\left(n_{sat}(E)T(E)\right)_{sans\ cd}}{\left(n_{sat}(E)T(E)\right)_{avec\ cd}} \qquad \textbf{(87)}$$

La mesure de cette grandeur permet de s' affranchir de toute donnée nucléaire de base et de l' étalonnage en rendement d' absorption totale. L' incertitude dépend alors essentiellement du rapport des comptages et de la convergence des calculs de transfert de rendement.

A la différence des mesures d' indice de capture où les comptages du produit de capture et de fission sont simultanés, une incertitude de reproductibilité du positionnement doit être introduite pour les mesures de rapport cadmium car les comptages sont réalisés à des instants différents. On l' estime à partir du comptage de la raie γ à 185.7 keV de l' uranium 235, dont l' activité est quasi-constante à l' échelle de la mesure, afin de normaliser l' activité du produit de capture étudié.

Enfin, on néglige l' incertitude sur la correction de décroissance et sur le choix de l' évaluation de la période radioactive puisque les comptages sont réalisés après la même durée de refroidissement.

Les rapports cadmium obtenus pour les trois échantillons combustibles OCEAN sont reportés dans le tableau ci-dessous :

Combustible	Raie γ de capture	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$
Dy164	279.8 keV	20.6	2.31%
	361.7 keV	19.7	3.19%
Er170	295.9 keV	2.53	1.32%
	308.3 keV	2.53	1.13%
Hf180	345.9 keV	3.85	1.05%
	482.2 keV	3.91	0.82%

Tab. 57 : rapports cadmium de capture par raie γ

Pour chaque paire de raies γ associée au produit de capture, une cohérence à $k = 2$ est observée entre les deux estimations du rapport R_{cd}, ce qui tend à valider les corrections appliquées aux mesures de surfaces nettes. En combinant les résultats précédents par une moyenne pondérée, on a finalement :

Combustible	$\overline{R_{cd}}$	$\frac{u(\overline{R_{cd}})}{\overline{R_{cd}}}$
Dy164	20.3	2.04%
Er170	2.53	1.24%
Hf180	3.89	0.78%

Tab. 58 : rapports cadmium de capture moyens

4.5 Synthèse des indices de capture

En regroupant les résultats intermédiaires des paragraphes précédents, on en déduit les indices de capture pour tous les échantillons et crayons combustibles, déterminés à partir des différentes raies γ caractéristiques. Dans ce paragraphe, on présentera les tendances observées sur les données nucléaires utilisées pour certains radionucléides, avant de définir un ensemble cohérent de résultats, permettant de retenir un estimateur d'indice de capture pour chaque combustible.

4.5.1 Analyse de la cohérence des résultats

L'analyse de la cohérence des résultats obtenus doit être réalisée en isolant, autant que possible, les paramètres corrélés entre les différentes mesures. Pour la comparaison des produits de fission, on retient :

- l'incertitude expérimentale, incluant la mesure des surfaces nettes, du rendement d'absorption totale et du transfert de rendement,
- l'incertitude sur les données nucléaires de base, incluant rendements de fission et probabilités d'émission γ.

De plus, en comparant la dispersion des résultats autour de la moyenne pour différents enrichissements d'échantillon, on peut contrôler la cohérence des évaluations de rendements de fission associés à l'uranium 235 et/ou 238 puisqu'ils interviennent dans des proportions différentes dans le calcul du rendement effectif de fission.

4.5.1.1 Tendances sur l'iode 132

Pour la plupart des études consacrées à la capture de l'uranium 238, la normalisation au taux de fission est réalisée à partir des quatre raies γ suivantes :

- la raie γ à 954.5 keV émise par décroissance de l'iode 132,
- la raie γ à 293.3 keV émise par décroissance du cérium 143,
- les raies γ à 487.0 keV et 1596.2 keV émises par décroissance du lanthane 140.

En comparant les taux de fission mesurés F_i à partir de ces raies γ entre différents échantillons combustibles, on peut constater que la dispersion autour de la moyenne pondérée $\overline{F}$ n'est pas la même selon la bibliothèque de données nucléaires utilisée :

		H1		H8	
Bibliothèque de données	Raie γ de fission	$F_i / \overline{F}$ [30]	$\frac{u(F_i)}{F_i}$	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$
JEF2.2	**954.4 keV (^{132}I)**	**0.964**	**3.71%**	**0.967**	**3.65%**
	487.0 keV (^{140}La)	1.006	2.94%	0.993	1.62%
	1596.2 keV (^{140}La)	1.022	2.76%	1.007	1.34%
	293.3 keV (^{143}Ce)	1.015	6.95%	1.029	8.18%
ENDF/B-VI.8	**954.4 keV (^{132}I)**	**0.936**	**3.52%**	**0.945**	**3.59%**
	487.0 keV (^{140}La)	1.027	2.06%	1.027	2.06%
	1596.2 keV (^{140}La)	1.006	0.99%	1.004	1.10%
	293.3 keV (^{143}Ce)	0.990	1.47%	0.998	1.82%
JEFF3.1	**954.4 keV (^{132}I)**	**0.999**	**3.27%**	**0.988**	**3.02%**
	487.0 keV (^{140}La)	0.994	1.64%	0.994	1.76%
	1596.2 keV (^{140}La)	1.002	1.29%	1.000	1.52%
	293.3 keV (^{143}Ce)	1.000	1.59%	1.006	1.69%

Tab. 59 : dispersion des résultats de mesure de taux de fission pour les échantillons H1 et H8

Les résultats obtenus à partir de JEFF3.1 présentent une cohérence inférieure à $k = 1$ entre les quatre raies γ. Par ailleurs, la dispersion des F_i autour de la moyenne $\overline{F}$ est similaire entre l'échantillon H1 et l'échantillon H8. Ces observations tendent à prouver que les évaluations JEFF3.1 des probabilités d'émission γ et des rendements de fission associés à l'uranium 235 et 238 sont cohérentes avec les incertitudes annoncées.

En revanche, pour les deux autres bibliothèques, plusieurs tendances peuvent être identifiées. On remarque par exemple que le taux de fission déduit de l'iode 132 est systématiquement inférieur à celui déduit du lanthane 140, de 4 à 5% pour JEF2.2 et de 7 à 8% pour ENDF/B-VI.8. Compte tenu de l'incertitude expérimentale (de l'ordre de 1% pour les différents produits de fission), cet écart ne peut être imputé qu'aux données nucléaires de base utilisées. On constate que des écarts importants existent sur les données relatives à l'iode 132 entre les différentes bibliothèques, d'après le tableau suivant :

Donnée	JEF2.2	ENDF/B-VI.8	JEFF3.1
I_γ(954.5 keV)	(18.06 ± 0.63)%	(18.06 ± 0.59)%	(17.57 ± 0.49)%
$Y_{^{235}U,th}$	(4.248 ± 0.43)%	(4.295 ± 0.060)%	(4.276 ± 0.043)%
$Y_{^{238}U,f}$	(5.067 ± 0.10)%	(5.128 ± 0.072)%	(4.756 ± 0.18)%
$T_{1/2}$ (^{132}Te)	78.2 ± 0.8 h	78.2 ± 0.8 h	76.9 ± 0.31 h
$T_{1/2}$ (^{132}I)	2.3 ± 0.03 h	2.284 ± 0.001 h	2.295 ± 0.00 h

Tab. 60 : données relatives à l'iode 132

[30] Chaque moyenne pondérée correspond à une bibliothèque de données nucléaires de base.

Si les résultats obtenus à partir de JEFF3.1 montrent une meilleure cohérence avec les autres produits de fission, il n' est pas évident de discriminer l' influence de chacune des quatre données nucléaires reportées dans ce tableau, car il peut exister des phénomènes de compensation. Les mesures sur dosimètres uranium 235, qui seront présentées dans la partie V, permettront d' apporter des précisions sur la pertinence des évaluations. Néanmoins, comme les écarts observés sont toujours cohérents à k = 2, on ne peut pas considérer que les données de l' iode 132 sont incohérentes dans JEF2.2 et ENDF/B-VI.8.

On peut également noter que les résultats déduits du cérium 143 dans JEF2.2 sont pénalisés par une incertitude de 7.3% sur le rendement de fission thermique de l' uranium 235. Cette incertitude n' est pas en rapport avec la justesse de l' évaluation puisqu' une modification de 0.2% a été apportée dans JEFF3.1 avec une incertitude réduite d' un facteur 5.

Concernant le lanthane 140, on trouve trois évaluations différentes pour la probabilité d' émission de la raie γ à 487.0 keV entre JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1. En comparant, l'activité déduite de la raie γ à 1596.2 keV, dont l' évaluation est maîtrisée à moins de 0.1%, le meilleur accord est obtenu à partir de JEFF3.1, même si les incertitudes associées aux autres évaluations sont cohérentes avec les écarts observés.

Au final, on pourra considérer que les trois produits de fission qui viennent d' être étudiés sont des estimateurs pertinents du taux de fission pour le calcul de la moyenne, puisque aucune incohérence ne peut clairement être mise en évidence.

4.5.1.2 Tendances sur le strontium 92

Pour les échantillons dont le produit de capture étudié présente une période radioactive de quelques heures, notamment le Dy164 et le Pu242, on doit avoir recours à un produit de fission de courte durée de vie afin de permettre la simultanéité des deux mesures de taux de réaction. Parmi les différents candidats possibles, le strontium 92 est bien adapté car il présente une raie γ à haute énergie (E = 1383.9 keV), de probabilité d' émission élevée (I_γ = 0.93 ± 0.003 **[19]**) et non perturbée par d' autres raies γ sur une largeur de plusieurs keV.

Néanmoins, les six mesures réalisées à partir de ce produit de fission (notés M1 à M6) révèlent des problèmes de reproductibilité du taux de comptage à saturation $n_{sat}(E)$:

	Echantillon Dy164		Echantillon Pu242	
Indice de la mesure	$n_{sat}(E)$	$\frac{u(n_{sat}(E))}{n_{sat}(E)}$	$n_{sat}(E)$	$\frac{u(n_{sat}(E))}{n_{sat}(E)}$
M1	**361.6**	**0.36%**	**114.0**	**0.31%**
M2	358.2	0.36%	107.8	0.67%
M3	356.1	0.35%	104.4	1.15%
M4	355.7	0.36%	99.56	1.82%
M5	352.8	0.38%	94.22	2.87%
M6	**350.8**	**0.41%**	**81.34**	**5.21%**
χ^2/ν	3.33		29.7	

Tab. 61 : mesures successives du taux de comptage à saturation de la raie γ du strontium 92

On observe une décroissance en fonction du temps, du taux de comptage à saturation. Le test de χ^2 à $\nu = 5$ degrés de liberté apporte une justification statistique à cette tendance. Il permet en effet de conclure que si le rapport χ^2 / ν est extérieur à [0.166 ; 2.566], alors il existe une différence entre la variance estimée et la variance théorique, pour un risque de première espèce $\alpha = 5\%$. Autrement dit, les résultats présentés dans ce tableau traduisent une sous-estimation de l'incertitude associée à chaque mesure.

Après vérification de l'absence de raies γ perturbatrices à la même énergie et contrôle de la justesse de la correction de temps mort, la seule explication envisageable provient de la période radioactive du strontium 92, reportée à 2.71 ± 0.01 h dans toutes les bibliothèques de données nucléaires. Cette hypothèse est confortée par la quasi-proportionnalité de l'écart entre le premier et le dernier résultat de mesure, et la durée cumulée de la série de mesure :

- 3% d'écart pour la série de mesure du Dy164, de durée cumulée égale à 3 heures,
- 29% d'écart pour la série de mesure du Pu242, de durée cumulée égale à 25 heures.

Ce biais de reproductibilité traduit une sur-estimation de la période radioactive estimée d'après la relation **(68)** à (5 ± 1)%. Il conduit logiquement à exclure ce produit de fission du calcul de la moyenne des taux de fission mesurés. Le premier chapitre de la partie V sera donc consacré à une étude de la décroissance du strontium 92 et à une réévaluation cette donnée nucléaire qui présente un fort intérêt pour les mesures de taux de fission.

4.5.1.3 Tendances sur l'iode 135

Au même titre que le strontium 92, l'iode 135 est utilisé pour estimer le taux de fission lorsque le produit de capture est de courte durée de vie. Dans le cas de l'échantillon Er170, deux séries de mesure sont réalisées dans les mêmes conditions expérimentales (i.e. mêmes durées d'irradiation, de refroidissement et de mesure) mais pour deux configurations d'irradiation distinctes (avec ou sans utilisation de l'enveloppe en cadmium). La dispersion des résultats de taux de fission obtenus à partir du strontium 91, de l'iode 135, du cérium 143 est donnée ci-dessous :

		Er170		Er170+Cd	
Bibliothèque de données	Raie γ de fission	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$
JEF2.2	749.8 keV (^{91}Sr)	1.018	7.04%	0.989	6.99%
	1260.4 keV (^{135}I)	**0.989**	**4.36%**	**1.017**	**5.81%**
	293.3 keV (^{143}Ce)	1.012	7.53%	0.987	7.08%
ENDF/B-VI.8	749.8 keV (^{91}Sr)	1.033	7.01%	1.012	7.05%
	1260.4 keV (^{135}I)	**0.996**	**1.51%**	**1.000**	**1.52%**
	293.3 keV (^{143}Ce)	1.003	1.64%	1.000	1.58%
JEFF3.1	749.8 keV (^{91}Sr)	1.012	3.53%	0.988	3.85%
	1260.4 keV (^{135}I)	**0.999**	**4.37%**	**1.049**	**4.37%**
	293.3 keV (^{143}Ce)	0.998	1.63%	0.994	1.85%

Tab. 62 : dispersion des résultats de mesure de taux de fission pour l'échantillon Er170

Si l'on considère individuellement chaque mesure de l'échantillon Er170, avec et sans cadmium, les résultats obtenus à partir des trois produits de fission sont cohérents à $k = 1$, quelle que soit la bibliothèque considérée. En revanche, si l'on compare la dispersion des résultats entre les deux séries de mesure, obtenues avec les données JEFF3.1, on constate que le taux de fission déduit de l'iode 135 est environ 5 % plus élevé que celui déduit des deux autres produits de fission, pour le cas Er170+Cd. En dehors de la reproductibilité de la mesure qui est d'environ 0.5% et qui ne suffit pas à justifier les écarts observés, la seule différence avec la mesure Er170 concerne la proportion relative des fissions dues aux deux principaux isotopes fissionnables (**Tab. 54**). Comme le calcul des probabilités associées a été qualifié par rapport à un calcul Monte-Carlo de référence, une hypothèse vraisemblable pourrait provenir d'erreurs sur les rendements de fission associés à l'uranium 238 :

Donnée	JEF2.2	ENDF/B-VI.8	JEFF3.1
$Y_{^{235}U,th}$	(6.316 ± 0.18)%	(6.282 ± 0.060)%	(6.385 ± 0.22)%
$Y_{^{238}U,f}$	(6.552 ± 0.49)%	(6.941 ± 0.092)%	(6.421 ± 0.27)%

Tab. 63 : rendements de fission de l'iode 135 associé à l'uranium 235 et 238

Comme la cohérence des trois produits de fission est meilleure pour la mesure sans cadmium, où la fission de l'uranium 235 est majoritaire, il est probable que les écarts observés soient dus aux rendements de fission associés à l'uranium 238 qui présentent desdifférences plus importantes entre les différentes bibliothèques de données et pour lequel on dispose de peu de données expérimentales **[70]**. La partie V apportera certains éléments de réponse quant à la provenance des écarts constatés.

A noter que ce type de donnée nucléaire est particulièrement important pour les concepts de réacteurs tels que les RSM (Réacteurs Sous-Modérés) dont le spectre comporte une forte composante épithermique. Une meilleure connaissance des rendements de fission associés à l'uranium 238 est alors nécessaire pour prédire l'évolution du combustible au cours du temps, d'autant plus que l'iode 135 conduit par décroissance β^- au xénon 135 qui est l'un des principaux poisons neutroniques.

Finalement, afin de ne pas biaiser l'interprétation des mesures d'indice de capture sous enveloppe cadmium par des effets liés au terme de fission, l'iode 135 a été exclu du calcul de la moyenne des taux de fission mesurés.

4.5.1.4 Tendances sur l'yttrium 91 métastable

L'yttrium 91 présente un état métastable de 49.7 minutes, conduisant à l'émission d'une raie γ à 555.6 keV avec une probabilité d'émission de 95%**[19]**. Son rendement de fission tient compte du rendement de fission cumulé du radionucléide père, à savoir le strontium 91, ainsi que de la probabilité de décroissance vers l'état métastable, appelée « rapport d'embranchement » et notée υ. Cette donnée nucléaire présente des différences importantes entre les bibliothèques de données nucléaires :

Donnée	JEF2.2	ENDF/B-VI.8	JEFF3.1
υ ($^{91m}Y \rightarrow {}^{91}Sr$)	0.5 ± ?	0.58 ± 0.04	0.588 ± 0.029

Tab. 64 : rapport d'embranchement de la décroissance $^{91}Sr \rightarrow {}^{91m}Y$

L' absence d' incertitude associée à la donnée JEF2.2 conduit à imposer une valeur arbitraire de 100%. Ensuite, pour discriminer ces différentes estimations, la comparaison aux résultats déduits de la raie γ à 749.8 keV émise par le strontium 91 permet d' isoler la contribution du rendement de fission cumulé, commun aux deux radionucléides :

Bibliothèque de données	Raie γ de fission	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$
JEF2.2	749.8 keV (^{91}Sr)	0.999	7.04%
	555.6 keV (^{91m}Y)	**1.150**	**100%**
ENDF/B-VI.8	749.8 keV (^{91}Sr)	1.004	6.95%
	555.6 keV (^{91m}Y)	**0.996**	**6.95%**
JEFF3.1	749.8 keV (^{91}Sr)	1.006	3.40%
	555.6 keV (^{91m}Y)	**0.987**	**5.13%**

Tab. 65 : dispersion des résultats de mesure de taux de fission pour l'échantillon H3

Si toutes les évaluations sont cohérentes entre elles, le meilleur accord est observé en utilisant les données issues de ENDF/B-VI.8. Plus généralement, les résultats obtenus à partir de ces deux produits de fission montrent une cohérence à k = 1 avec d' autres produits de fission de nombre de masse différent (notamment le cérium 143 et le lanthane 140). En outre, aucune tendance n' est clairement identifiée sur la dispersion des résultats d' après les mesures réalisées sur des combustibles de différents enrichissements. Ceci tend à prouver que les rendements de fission du strontium 91 associés à l' uranium 235 et 238 sont correctement estimés dans les trois bibliothèques. Ces deux produits de fission sont donc pris en compte dans le calcul de la moyenne des taux de fission.

4.5.1.5 Tendances sur l' hafnium 181

La comparaison des activités du produit de capture de l' hafnium 180, déduites des raies γ à 345.9 keV et 482.2 keV, est présentée ci-dessous :

Bibliothèque de données	Raie γ de capture	$C_i / \overline{C}$	$\frac{u(C_i)}{C_i}$
JEF2.2	**345.9 keV (^{181}Hf)**	**1.317**	**8.35%**
	482.2 keV (^{181}Hf)	0.993	1.30%
JEFF3.1	**345.9 keV (^{181}Hf)**	**1.014**	**0.77%**
	482.2 keV (^{181}Hf)	0.996	0.42%

Tab. 66 : dispersion des résultats de mesure de taux de capture pour l'échantillon Hf180

On observe que les deux résultats obtenus sont incohérents en utilisant les données de JEF2.2 et sont cohérents à k = 2 avec JEFF3.1. Cette différence provient d' une révision de la probabilité d' émission de 26% pour la raie à 345.9 keV et de 2.9% pour la raie à 482.2 keV.

Afin de ne pas biaiser l' interprétation des rapports calcul / expérience entre ces deux bibliothèques de données, seuls les résultats déduits à partir de la raie γ à 482.2 keV, dont l' incertitude est la mieux maîtrisée, seront envisagés lors de la combinaison des différents résultats de mesure.

4.5.1.6 Combinaison des résultats

Pour tous les cas non évoqués ci-dessus, une cohérence à $k = 2$ est observée entre les différentes raies γ et produits de fission étudiés. En appliquant les règles de combinaison des résultats énoncées au chapitre 3 de la partie II, on aboutit aux moyennes présentées dans les tableaux suivants (**Tab. 67**, **Tab. 68** et **Tab. 69**). La dernière colonne représente l'incertitude de reproductibilité expérimentale, incluant la mesure du taux de comptage et l'étalonnage en rendement du détecteur.

		Données JEF2.2		Données ENDF/B-VI.8		Données JEFF3.1		$\left.\frac{u(r_C)}{r_C}\right\|_{exp}$
Réaction	Echantillon	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	
^{238}U(n,2n)	H1	0.01559	8.55%	0.01569	5.15%	0.1582	5.15%	3.97%
^{238}U(n,γ)	H1	3.609	3.68%	3.543	1.66%	3.593	3.15%	0.42%
	H2	2.185	3.45%	2.155	1.69%	2.187	3.17%	0.40%
	H3	1.667	3.37%	1.647	1.68%	1.670	3.17%	0.30%
	H3+Cd	4.344	4.05%	4.224	1.66%	4.287	3.17%	0.55%
	H5	0.6939	3.19%	0.6854	1.73%	0.6944	3.19%	0.39%
	H6	0.4929	3.30%	0.4876	1.77%	0.4945	3.22%	0.55%
	URE	0.3841	3.27%	0.3801	1.75%	0.3896	3.20%	0.41%
	H8	0.3294	3.26%	0.3257	1.73%	0.3292	3.19%	0.36%
	UappAl	3.565	3.55%	3.554	1.81%	3.586	3.21%	0.69%
	U20%	0.1074	3.29%	0.1061	1.83%	0.1073	3.25%	0.61%
	UMoAl2.2	0.1148	3.30%	0.1135	1.84%	0.1148	3.25%	0.64%
	UMoAl8	0.1035	3.32%	0.1021	1.89%	0.1035	3.27%	0.73%
	U1	0.5008	3.31%	0.4954	1.79%	0.5026	3.23%	0.60%
	U2	0.5032	3.31%	0.4975	1.79%	0.5044	3.23%	0.62%
	U3	0.5015	3.31%	0.4965	1.79%	0.5036	3.23%	0.62%
	U4	0.5047	3.31%	0.4979	1.79%	0.5039	3.23%	0.62%
	U5	0.5054	3.31%	0.4985	1.79%	0.5058	3.23%	0.61%
	U6	0.5004	3.31%	0.4958	1.79%	0.5024	3.23%	0.61%
	U7	0.5028	3.31%	0.4985	1.80%	0.5045	3.23%	0.63%
	V	0.1058	3.33%	0.1055	1.81%	0.1066	3.25%	0.70%

Tab. 67 : synthèse des mesures de taux de conversion de l'uranium 238

		Données JEF2.2		Données ENDF/B-VI.8		Données JEFF3.1		$\left.\frac{u(r_C)}{r_C}\right\|_{exp}$
Réaction	Echantillon	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	
^{151}Eu(n,γ)	Eu151	1.440	1.82%	1.444	1.05%	1.483	1.34%	0.59%
^{153}Eu(n,γ)	Eu153	2.007	2.62%	1.987	1.60%	2.023	1.28%	0.56%
^{164}Dy(n,γ)	Dy164	2.267	7.42%	2.381	11.3%	2.382	10.9%	0.74%
	Dy164+Cd	0.3789	6.95%	0.4017	11.4%	0.4066	11.0%	1.63%
^{170}Er(n,γ)	Er170	0.2235	4.02%	-		0.2234	4.20%	0.52%
	Er170+Cd	0.3357	4.07%	-		0.3313	4.25%	0.66%
^{180}Hf(n,γ)	Hf180	0.2961	1.95%	-		0.3043	1.08%	0.41%
	Hf180+Cd	0.2990	2.91%	-		0.3038	1.03%	0.47%

Tab. 68 : synthèse des mesures indice de capture d'absorbants

		Données JEF2.2		Données ENDF/B-VI.8		Données JEFF3.1		$\left.\frac{u(r_C)}{r_C}\right\|_{exp}$
Réaction	Echantillon	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	
^{232}Th(n,γ)	Th232	56.46	4.25%	58.00	2.00%	56.82	2.63%	0.33%
^{232}Th(n,γ)	U-Th232	0.2249	2.13%	0.2213	1.35%	0.2243	1.47%	0.59%
^{236}U(n,γ)	U236	0.03083	2.77%	0.03055	2.62%	0.03127	2.69%	0.98%
^{237}Np(n,γ)	Np237	0.8902	3.71%	0.8763	3.61%	0.8912	3.58%	0.37%
^{242}Pu(n,γ)	Pu242	0.2178	10.1%	0.2208	10.0%	0.2230	10.1%	1.61%

Tab. 69 : synthèse des mesures d'indice de capture d'actinides

A l'exception des réactions ^{238}U(n,2n), ^{164}Dy(n,γ) et ^{242}Pu(n,γ) qui constituent les cas les plus sensibles, on constate que l'incertitude de reproductibilité de lamesure est meilleure que 1% pour la plupart des expériences réalisées. La sensibilité aux choix de la bibliothèque de données nucléaires est de l'ordre de 1% pour les mesures de capture sur l'uranium 238, de 1 à 5% pour les absorbants et de 1 à 3% pour les actinides et reste cohérente à $k = 1$ avec les incertitudes annoncées.

5 CONCLUSION

Ce chapitre avait pour objet de présenter la mise en œuvre de mesures innovantes d'indices de capture et de rapports cadmium dans le réacteur MINERVE. Ces expériences, complémentaires des mesures de réactivité réalisées par la technique d'oscillation, visent à qualifier les sections de capture d'isotopes pour lesquels des besoins d'amélioration des données nucléaires ont été identifiés.

La comparaison des activités déduites à partir de plusieurs raies γ et produits de fission a permis de mettre en évidence des erreurs potentielles sur les données nucléaires de base de certains, en particulier :

- une sous-estimation d'environ **15%** dans JEF2.2 du **rapport d'embranchement de la décroissance ^{91}Sr → ^{91m}Y**,
- une sur-estimation d'environ **5%** dans toutes les bibliothèques de données nucléaires de la **période radioactive du strontium 92**,
- une sous-estimation d'environ **7%** du **rendement de fission de l'iode 135**, associé à l'uranium 238.

Les méthodologies de traitement des données et de propagation des variances, proposées dans les chapitres 2 et 3 de la partie II, ont permis d'obtenir des résultats de mesure plus fiables (**corrections d'erreurs potentielles de 8% sur le calcul des transferts de rendement**) et reproductibles que par le passé. En particulier, une meilleure prise en compte des corrélations sur la courbe de rendement d'absorption totale du détecteur a conduit à une **réduction au moins d'un facteur 5 de la composante de l'incertitude liée à la mesure**. Les progrès vont directement bénéficiés à l'interprétation des écarts calcul / expérience, qui fait l'objet du chapitre suivant.

CHAPITRE 2 :
INTERPRETATION DES MESURES DE TAUX DE CAPTURE

1 INTRODUCTION

Ce chapitre vise à vérifier la pertinence des évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 des sections efficaces des isotopes étudiés dans le chapitre précédent, à savoir :

- les absorbants neutroniques suivants : ^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf.
- les actinides suivants : ^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{238}U, ^{242}Pu **[106]**.

Pour cela, les résultats des mesures d'indice de capture et de rapport cadmium vont être comparés à des calculs neutroniques réalisés à partir du code déterministe APOLLO2.5 et à partir de du code probabiliste MCNP4C2. In fine, **l'étude vise à quantifier des tendances sur les sections efficaces intégrales de capture** des isotopes sus-cités, dans un spectre représentatif d'un REP-UO$_2$.

Après un rappel sur la connaissance actuelle des données nucléaires, on présentera les schémas de calcul mis en œuvre pour l'interprétation des mesures et les résultats des calculs d'indice de capture et de rapport cadmium. Les tendances observées seront confrontées aux interprétations préliminaires des mesures de réactivité, réalisées par oscillation dans MINERVE en marge de ce travail pour certains échantillons des programmes OCEAN et OSMOSE.

2 SYNTHESE DES EVALUATIONS EXISTANTES

2.1 Uranium 238

La section de capture (n,γ) de l'uranium 238 est l'une des données nucléaires ayant fait l'objet du plus d'études par le passé car elle est à la base de la formation de tous les éléments transuraniens. La maîtrise de la conversion de matière fertile (uranium 238) en matière fissile (plutonium 239), dont l'enjeu est capital dans une optique d'allongement des cycles d'irradiation, passe par une meilleure connaissance de cette donnée.

Si un niveau de précision suffisant est aujourd'hui atteint pour la plupart des besoins (incertitude sur la capture intégrale dans un spectre REP-UO$_2$ meilleure que 2% **[107]**), des progrès restent encore à accomplir. Par exemple, la capture de l'uranium 235 dans le domaine épithermique, a été augmentée de 6% depuis la version 2 de la bibliothèque ENDF/B-VI. Elle est destinée à améliorer la prédiction du coefficient de multiplicatif effectif K_{eff} pour des réseaux à fort enrichissement en uranium 235 ainsi que la production d'uranium 236 dans les REP **[108]**. Cependant, cette modification conduit désormais à un problème de sous-estimation de la réactivité, de l'ordre de 400 pcm dans des réseaux de type REP-UO$_2$ à faible enrichissement.

En mai 2001 a été créé le *subgroup-22* dans le cadre du WPEC Meeting (*Working Party in International Nuclear Data Evaluation and Cooperation*), afin de coordonner les efforts pour résoudre ce problème **[109]**. Après trois années de travail, les principales conclusions sont les suivantes :

- la sous-estimation du K_{eff} de 400 pcm est confirmée avec ENDF/B-VI.8, JEFF3.0 et JENDL3.3 et n'est ni le fait d'approximations numériques, ni le fait d'erreurs expérimentales, compte tenu du nombre de mesures indépendantes réalisées.
- les paramètres de résonance recommandés par Moxon et adoptés dans ENDF/B-VI.8 et JEFF3, ne montrent pas de biais significatifs. Les mesures intégrales (indices de spectre et production de ^{239}Pu dans les REP) sont prédites avec un accord compatible avec l'incertitude sur le rapport C / E. Néanmoins, une diminution d'environ 0.5% de l'intégrale de résonance est suggérée par différentes équipes et reste compatible avec les mesures intégrales.
- une nouvelle évaluation de la section thermique à 2200 m.s^{-1} est proposée **[111]**, basée sur un réexamen des travaux passés et sur de nouvelles mesures **[112]** : $\sigma_{2200} = 2.683 \pm 0.012$ b

Les premiers essais réalisés en utilisant cette nouvelle évaluation et en réduisant l'intégrale de résonance de 0.7% permet d'améliorer en partie la sous-estimation du K_{eff} des réseaux à faible enrichissement (augmentation de 100 à 200 pcm selon le coefficient de modération). D'autres pistes restent à l'étude, notamment les réactions de type (n,α) sur l'oxygène 16 entre 3 et 6 MeV ainsi que le spectre des neutrons prompts émis par fission thermique de l'uranium 235.

Dans ce contexte, les mesures réalisées au cours de cette thèse permettent d'enrichir la base de données expérimentales en testant notamment l'influence de la teneur en uranium 235 sur le taux de conversion de l'uranium 238.

2.2 Absorbants neutroniques

Aujourd'hui, deux objectifs industriels majeurs sont l'allongement de la durée de séjour du combustible dans le cœur et l'utilisation accrue de combustible MOX, avec un objectif de rechargement de 50% à 100% dans les futurs réacteurs avancés (notamment l'EPR) **[113]**.

Le premier cas implique d'augmenter l'enrichissement initial en uranium 235. Il devient alors nécessaire d'accroître les moyens de contrôle pour compenser l'excédent de réactivité initiale du cœur. L'accroissement de la concentration en bore soluble n'étant pas souhaitable (aspects de sûreté et contraintes technologiques), l'utilisation de nouveaux types de poisons consommables est envisagée.

Dans le second cas, de nouveaux problèmes neutroniques apparaissent, comme la diminution de l'efficacité des barres de sûreté ou la dégradation du coefficient de température modérateur. Il faut donc trouver des moyens de contrôle plus sûrs afin de modifier certains comportements des réseaux MOX, d'où un regain de recherche sur de nouveaux absorbants.

2.2.1 Europium 151 et 153

L'europium a suscité l'intérêt des neutroniciens comme absorbant apte à représenter une solution alternative au B_4C pour les grappes d'arrêt des réacteurs à neutrons rapides. Son rôle potentiel dans le contrôle de la réactivité dans des réacteurs sous-modérés à combustible MOX, a été étudié au CEA et des études sont en cours pour cerner les différentes propriétés de l'oxyde Eu_2O_3.

L' europium naturel est constitué de deux isotopes stables, à savoir ^{151}Eu et ^{153}Eu, d' abondance respective 47.8% et 52.2%. En évolution, plusieurs isotopes de l' europiumformés par capture (n,γ) débouchent par décroissance β^- sur le gadolinium. La pénalité résiduelle est donc importante et sa cinétique d' usure lente. La section thermique à 2220 m.s^{-1}, notée σ_{2200}, et l' intégrale de résonance, notée I_o, des deux isotopes stables étudiés sont présentées ci-dessous (données EXFOR) :

Source	Année	σ_{2200} (b)
RJ. HAYDEN	1949	5200 ± ?
RB. TATTERSALL	1960	8790 ± 90
F. POORTMANS	1971	9184 ± 140
JI. KIM	1975	8965 ± 142
JEF2.2	**1993**	**9166**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**9168**
JEFF3.1	**2004**	**9164**

Source	Année	I_o (b)
SP. HARRIS	1950	842 ± ?
V. HAYODOM	1969	3420 ± ?
R. VAN DER LINDEN	1974	5564 ± 278
JEF2.2	**1993**	**3358**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**3361**
JEFF3.1	**2004**	**3351**

Tab. 70 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l' europium 151

Source	Année	σ_{2200} (b)
RJ. HAYDEN	1949	240 ± ?
NJ. PATTENDEN	1958	448 ± 16
RB. TATTERSALL	1960	317 ± 5
GHE. SIMS	1967	639 ± 7
JI. KIM	1975	603 ± 23
M. LUCAS	1977	325 ± ?
RE. HEFT	1978	295 ± 5
JEF2.2	**1993**	**300**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**312**
JEFF3.1	**2004**	**313**

Source	Année	I_o (b)
GHE. SIMS	1967	3287 ± 620
R. VAN DER LINDEN	1974	1829 ± 91
RE. HEFT	1978	1120 ± 60
JEF2.2	**1993**	**1449**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**1409**
JEFF3.1	**2004**	**1411**

Tab. 71 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l' europium 153

Ces deux tableaux montrent que les différentes mesures réalisées par le passé conduisent à des résultats incohérents, en particulier sur l' intégrale de résonance de l' europium 151 et la section σ_{2200} de l' europium 153. L' interprétation des rapports C / E obtenus pour les mesures réalisées sur les échantillons OCEAN va permettre d' apporter des informations sur les sections moyennes de capture.

2.2.2 Dysprosium 164

Le dysprosium a fait l' objet de nombreuses études à caractère technologique en Belgique et a donné lieu à des irradiations dans les réacteurs BR2 et BR3 **[114]**. Le but était de démontrer la faisabilité d' une barre de contrôle formée à partir de cet élément. Les militaires se sont également intéressés à cette terre rare pour les réacteurs de propulsion navale pour contrôler l' excédent de réactivité et remplir le rôle de contrôle joué par le bore soluble dans les REP. Enfin, des études ont également été entreprises au Canada pour étudier la possibilité de brûler le plutonium militaire dans les réacteurs CANDU. Dans ce cas, l' excédent de réactivité apporté par les isotopes fissiles 239 et 241 du plutonium est résorbé par du dysprosium contenu dans des couronnes de la grappe CANDU **[115]**.

Le dysprosium naturel est constitué de 7 isotopes stables dont les sections de capture sont telles que la cinétique d' usure est lente et donc pénalisante devant celle du combustible. Cette propriété confère une importante efficacité résiduelle, même pour des cycles longs (75% de l' efficacité initiale après 24 mois).

Le dysprosium 164 est le plus abondant des 7 isotopes stables, le plus capturant dans le domaine thermique et constitue le dernier maillon de la chaîne d' évolution[31]. Ses paramètres neutroniques sont donnés ci-dessous :

Source	Année	σ_{2200} (b)
M. GOLDHABER	1947	2770 ± ?
L. HOUSE	1958	2750 ± 150
JJ. SCOVILLE	1966	2600 ± 410
VP. VERTEBNYJ	1970	2740 ± 70
J. ALSTAD	1972	2800 ± 110
VP. VERTEBNYJ	1974	2700 ± 200
DS. KIM	1999	2656 ± 66
HJ. CHO	2001	2656 ± 98
M. KARADAG	2005	2672 ± 104
JEF2.2	**1993**	**2520**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**2650**
JEFF3.1	**2004**	**2650**

Source	Année	I_o (b)
JJ. SCOVILLE	1966	375 ± 34
J. ALSTAD	1972	820 ± 60
R. VAN DER LINDEN	1974	780 ± 52
E. STEINNES	1975	335 ± 27
RE. HEFT	1978	575 ± 100
HJ. CHO	2001	649 ± 24
M. KARADAG	2005	527 ± 89
JEF2.2	**1993**	**328**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**342**
JEFF3.1	**2004**	**342**

Tab. 72 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du dysprosium 164

Si la section σ_{2200} du dysprosium 164 est cohérente à k = 2 entre les différentes études réalisées par le passé, on observe en revanche de fortes disparités sur l' intégrale de résonance. Les mesures de taux de réaction réalisées avec et sans enveloppe en cadmium, confrontées aux mesures par oscillation, vont permettre de qualifier la section moyenne de capture et de déconvoluer la contribution des composantes thermiques et épithermiques pour l' interprétation des rapports C / E obtenus.

2.2.3 Erbium 170

L' erbium possède des qualités neutroniques intéressantes qui fontde lui un bon candidat en tant que poison consommable **[116]**. Il est peu abondant à l' état naturel (2.47 g pour 1 tonne de roches) mais des études montrent que son approvisionnement, dans le cadre d' unusage intensif de l' oxyde Er_2O_3 en réacteur, ne poserait aucun problème.

Le comportement neutronique est dominé par l' erbium 167, le plus capturantdes 6 isotopes stables. Il présente deux résonances thermiques aux énergies de 0.46 eV et de 0.584 eV qui recouvrent en partie la résonance de fission à 0.3 eV du plutonium 239. De ce fait, l' erbium constitue un excellent poison pour les réseaux de type REP-MOX **[117]**. Il permet alors d' éviter les coefficients de température modérateur positifs dans les combustibles MOX peu dégradés (notamment lors de l' utilisation de plutonium d' origine militaire à haute pureté isotopique).

[31] le dysprosium 165 présente une section de capture thermique de 3900 barns mais du fait de sa très courte période radioactive ($T_{1/2}$ = 2.3 h), sa quantité est négligeable dans le bilan de masse.

Présent en proportion isotopique similaire, l'erbium 170 est en revanche 100 fois moins absorbant. Son évolution n'est pratiquement gouvernée que par la disparition par capture neutronique puisque l'isotope 169 présente une durée de vie de quelques jours. Ces différentes caractéristiques expliquent le peu d'intérêt porté à son étude par le passé et l'absence d'évaluation dans JEF2.2 et ENDF/B-VI.8. Le tableau suivant résume les principales informations disponibles :

Source	Année	σ_{2200} (b)
RF. BARNES	1954	8.7 ± 1.8
SK. MANGAL	1963	4.3 ± 0.6
VP. VERTEBNYJ	1965	12 ± 5
JH. GILLETTE	1967	5.7 ± 1.5
O. GLEMSET	1970	5.8 ± 0.3
RE. HEFT	1978	6 ± 1
K. KNOPF	1997	15 ± 1
JEFF3.1	**2004**	**5.8**

Source	Année	I_o (b)
JH. GILLETTE	1967	43 ± 5
V. HAYODOM	1969	32.2
O. GLEMSET	1970	18 ± 5
R. VAN DER LINDEN	1974	24 ± 2.8
E. STEINNES	1975	24 ± 4
R.E.HEFT	1978	38 ± 7
JEFF3.1	**2004**	**45.1**

Tab. 73 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'erbium 170

De même que pour le dysprosium 164, les mesures d'indice de capture réalisées avec et sans cadmium, confrontées aux mesures de réactivité, permettront d'améliorer la connaissance de la section de capture de cet isotope, en particulier dans le domaine thermique.

2.2.4 Hafnium 180

Depuis les années 1950, l'hafnium est utilisé à petite échelle, essentiellement dans les dispositifs de contrôle des réacteurs de propulsion navale. Son extension aux réacteurs de puissance fut initialement freinée pour des raisons stratégiques et du fait de sa rareté (et donc de son coût élevé), au profil de l'AIC. Au cours des dernières années, un regain d'intérêt s'est manifesté pour son emploi dans les barres de régulation des grappes de contrôle **[118]**, notamment par AREVA. En effet, l'AIC présente quelques inconvénients (fluage et tassement sous irradiation, difficultés de stockage lié à une forte activation) qui n'existent pas avec l'hafnium. Celui-ci est à ce jour l'un des meilleurs candidats pour répondre aux exigences en matière d'accroissement d'efficacité et de longévité des dispositifs de contrôle futurs des réacteurs. Son utilisation est d'ailleurs envisagée pour le cœur du futur RJH (Réacteur Jules Horowitz).

Le comportement neutronique de l'hafnium naturel est dominé par 3 des 6 isotopes stables, à savoir l'hafnium 177, 178 et 179 **[119]**. Ces derniers présentent des résonances de capture à des énergies proches des résonances de fission du plutonium 239 et 240, offrant ainsi à l'hafnium une possibilité de contrôle plus efficace dans les spectres plus durs, tels que les réseaux MOX **[120]**. En contrepartie, l'absorption pratiquement constante tout au long du cycle lui confère de très bonnes qualités en tant qu'absorbant mais empêche son utilisation en tant que poison consommable.

De façon comparable à l'erbium 170, l'isotope 180 de l'hafnium étudié au cours de la thèse n'a qu'une contribution mineure au bilan neutronique. La maîtrise de sa section efficace présente néanmoins un intérêt car l'évolution de l'hafnium sous irradiation conduit à l'accroissement de sa proportion isotopique. Les principales études passées sont reportées ci-après :

Source	Année	σ_{2200} (b)
C. SEREN	1947	10 ± 2
G. SCHARFF	1967	12.6 ± 0.7
D-S. KIM	1974	12 ± 5
W. MANNHART	1975	13.04 ± 0.07
RE. Heft	1978	13.1 ± 0.1
DS. KIM	1999	13.0 ± 0.3
HJ. CHO	2001	13.04 ± 0.47
JEF2.2	**1993**	**13.1**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**13.0**
JEFF3.1	**2004**	**13.1**

Source	Année	I_o (b)
SP. HARIS	1950	19.7 ± ?
MD. RICABARRA	1967	24.3 ± 1.6
E. STEINNES	1972	32 ± 3
A. ALIAN	1973	30.8 ± ?
R. VAN DER LINDEN	1974	31.5 ± 1.6
RE. HEFT	1978	33.7 ± 2.1
HJ. CHO	2001	32.4 ± 1.2
JEF2.2	**1993**	**35.44**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**34.25**
JEFF3.1	**2004**	**29.59**

Tab. 74 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'hafnium 180

2.3 Actinides

L'irradiation de combustibles UO_2 ou MOX dans les REP conduit à la formation de noyaux lourds par des réactions de type (n,γ) et (n,2n) : les actinides majeurs (uranium et plutonium) et les actinides mineurs (neptunium, américium et curium). Faiblement fissiles aux neutrons thermiques pour la plupart, ils sont alors responsables d'un empoisonnement du combustible du fait de leur antiréactivité. La prise en compte de cet effet, faisant partir du Credit Burn-Up (CBU)[32] **[121]**, permet d'optimiser le dimensionnement des installations tout en gardant les marges de sûreté nécessaires.

2.3.1 Thorium 232

Le thorium 232 n'est pas à proprement parlé un actinide mineur. Il est présent à l'état naturel et quasiment absent des combustibles irradiés (une faible quantité est produite par décroissance α de l'uranium 236). Par le passé de nombreuses études **[122]** ont été consacrées au « cycle thorium », basé sur sa conversion par capture (n,γ) en uranium 233, très fissile aux neutrons thermiques (531 b) et qui limite la production d'actinides mineurs. Actuellement, il bénéficie d'un certain regain d'intérêt, en particulier par AREVA **[123]**, qui étudie la possibilité de son utilisation dans des réacteurs à haute température HTR (*High Temperature Reactor*), à partir d'un combustible mixte d'uranium (ou de plutonium) et de thorium 232. Des concepts de réacteurs à sel fondu et au thorium **[124]** sont également envisagés dans le cadre de Génération IV.

La section de capture (n,γ) du thorium 232 a donc été l'objet de nombreux travaux par le passé, contrairement à sa section de fission dont l'intérêt est moins primordial. Les principales évaluations intégrales pour un spectre de fission, notées σ_{fiss}, sont données ci-dessous :

Source	Année	σ_{fiss} (mb)
JEF2.2	**1993**	**70.8**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**74.3**
JEFF3.1	**2004**	**77.9**

Tab. 75 : principales évaluations de la section intégrale de fission du thorium 232

[32] Le Credit Burn-Up » prend également en compte les produits de fission à vie longue.

Source	Année	σ_{2200} (b)
WE. GRUMITT	1944	7.75 ± 0.30
H. POMERANCE	1950	7.00 ± 0.40
GG. MYASISHCHEVA	1957	7.29 ± 0.10
JW. WADE	1957	7.55 ± 0.25
K. KOBAYASHI	1973	7.35 ± 0.21
RE.CHRIEN	1979	7.41 ± 0.08
RT. JONES	1986	7.33 ± 0.06
JEF2.2	**1993**	**7.40**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**7.40**
JEFF3.1	**2004**	**7.40**

Source	Année	I_o (b)
M. BROSE	1964	82.7 ± 1.8
J. HARDY	1965	82.5 ± 3
M. ASGHAR	1966	79 ± 4
WK. FOELL	1968	81.2 ± 3.4
M. ASGHAR	1966	79 ± 4
R. VAN DER LINDEN	1974	72.4 ± 4.5
RE. HEFT	1978	87.6 ± 3.8
JEF2.2	**1993**	**85.0**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**85.5**
JEFF3.1	**2004**	**85.7**

Tab. 76 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du thorium 232

Si les mesures de sections de capture (n,γ) montrent une cohérence à $k = 2$ entre les différentes expériences réalisées, la section de fission (n,f) présente un écart de plus de 10% entre JEF2.2 et JEFF3.1. La confrontation des mesures réalisées à partir des deux échantillons U-Th232 et Th232 va permettre de qualifier à la fois la réaction de capture et de fission.

2.3.2 Uranium 236

L' uranium 236 est produit par capture (nγ) sur l' uranium 235. Il s' avère être un poison neutronique et n' est fissionnable qu' en spectre rapide. Pour un combustible UO_2 irradié à 40 GW.j.t^{-1} et refroidi pendant 5 ans, sa contribution au bilan neutronique est d' environ -900 pcm, soit près de 4% de l' antiréactivité totale **[125]**. Les principaux travaux consacrés à la mesure de sa section de capture sont présentés ci-dessous :

Source	Année	σ_{2200} (b)
MJ. CABELL	1958	5.5 ± 0.30
J. HALPERIN	1958	6 ± 1
JR. BERRETH	1962	5.4 ± ?
NP. BAUMANN	1968	6 ± 0.5
RP. SCHUMAN	1969	5.4 ± 1.5
MJ. CABELL	1971	8.47 ± 4
JEF2.2	**1993**	**5.16**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**5.13**
JEFF3.1	**2004**	**5.30**

Source	Année	I_o (b)
MJ. CABELL	1958	257 ± 22
J. HALPERIN	1958	450 ± 30
JR. BERRETH	1962	381 ± ?
NP. BAUMANN	1968	417 ± 25
RP. SCHUMAN	1969	381 ± 20
LN. JUROVA	1984	340 ± 15
JEF2.2	**1993**	**346**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**341**
JEFF3.1	**2004**	**345**

Tab. 77 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l' uranium 236

Comme le montre le tableau ci-dessus, les différentes évaluations de la section de capture épithermique sont souvent incohérentes. Les compilations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 sont essentiellement basées sur la mesure datant de 1984 et devront être qualifiées par les mesures réalisées sur l' échantillon U236.

2.3.3 Neptunium 237

Le neptunium 237 est produit par capture (n,γ) sur l' uranium 236 et (n,2n) sur l' uranium 238. Par décroissance α, il conduit au protactinium 233, émetteur γ responsable de la majeure partie de sa radiotoxicité. Tout comme l' uranium 236, le neptunium 237 n' est fissile qu' aux neutrons rapides mais sa section de capture est nettement plus élevée. Sa contribution au bilan neutronique atteint -600 pcm pour un combustible UO_2 irradié à 40 GW.j.t^{-1} et refroidi pendant 5 ans, soit 3.5% de l' antiréactivité totale. Les principales évaluations de sa section de capture (n,γ) sont reportées ci-dessous :

Source	Année	σ_{2200} (b)
RB. TATTERSALL	1960	169 ± 3
LN. JUROVA	1984	158 ± 4
K. KOBAYASHI	1994	158 ± 3
T. KATOH	2003	141.7 ± 5.4
O. SHCHERBAKOV	2005	184.7 ± 7.3
JEF2.2	**1993**	**181.0**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**181.0**
JEFF3.1	**2004**	**161.7**

Source	Année	I_o (b)
RP. SCHUMAN	1969	807 ± 10
E. HELLSTRAND	1970	640 ± 50
SH. EBERLE	1971	805 ± 10
K. KOBAYASHI	1994	652 ± 24
YE. TITARENKO	1999	549 ± 50
JEF2.2	**1993**	**658.4**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**658.2**
JEFF3.1	**2004**	**660.9**

Tab. 78 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du neptunium 237

La dernière compilation réalisée dans JEFF3.1 a conduit à diminuer la section de capture thermique d' environ 10% pour tenir compte des mesures japonaises de 2003 **[126]**. Néanmoins, on observe au travers des différentes études, de fortes incohérences qui s' expliquent par la présence d' une résonance de capture à 0.49 eV, rendant l' estimation de l' intégrale de résonance délicate. La comparaison des indices de capture mesurés par rapport à un calcul de référence MCNP4C2 permettra d' estimer la plus réaliste des différentes compilations.

2.3.4 Plutonium 242

Le plutonium 242 est le dernier maillon de la chaîne des isotopes à longue vie ($T_{1/2}$ > 10 a) formés en réacteur. Par capture (n,γ), il conduit à la formation de l' américium 243 puis aux curium 244 et 245 qui figurent parmi les plus radiotoxiques de tous les actinides. Sa contribution à l' antiréactivité est du même ordre de grandeur que celle du neptunium 237 et s' accroît au cours du temps compte tenu de l' évolution du vecteur plutonium vers les isotopes supérieurs. Parmi les différents actinides étudiés, il s' agit de l' isotope le moins étudié par le passé :

Source	Année	σ_{2200} (b)
J. BUTLER	1957	18.6 ± 0.8
RW. DURHAM	1970	18.7 ± 0.7
G. FIONI	2001	17 ± 1.7
JEF2.2	**1993**	**18.5**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**19.2**
JEFF3.1	**2004**	**18.8**

Source	Année	I_o (b)
J. BUTLER	1957	1275 ± 30
JEF2.2	**1993**	**1116**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**1273**
JEFF3.1	**2004**	**1130**

Tab. 79 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du plutonium 242

3 CALCUL DES TAUX DE REACTION

3.1 Présentation des formulaires de calcul

L' interprétation des mesures d' indice de capture et de rapport cadmium est réalisée à partir du code déterministe APOLLO2.5 utilisant les bibliothèques JEF2.2 ou JEFF3.1 (géométrie de 7×7 cellules à 2 dimensions **[127]**) ainsi que le code probabiliste MCNP4C2 utilisant les bibliothèques JEF2.2, ENDF/B-VI.8 ou JEFF3.1 (géométrie réelle à 3 dimensions **[93]**). Les expériences réalisées avec et sans enveloppe de cadmium correspondent à trois configurations d' irradiation (**Fig. 87**) :

- *configuration A* : l' échantillon est irradié au centre axial et radial du réseau R1-UO2,
- *configuration B* : l' échantillon est irradié au centre axial et radial du réseau R1-UO2, enveloppé dans une surgaine étanche en Zr4,
- *configuration C* : l' échantillon est irradié au centre axial et radial du réseau R1-UO2, enveloppé dans une surgaine étanche en Zr4 et en cadmium.

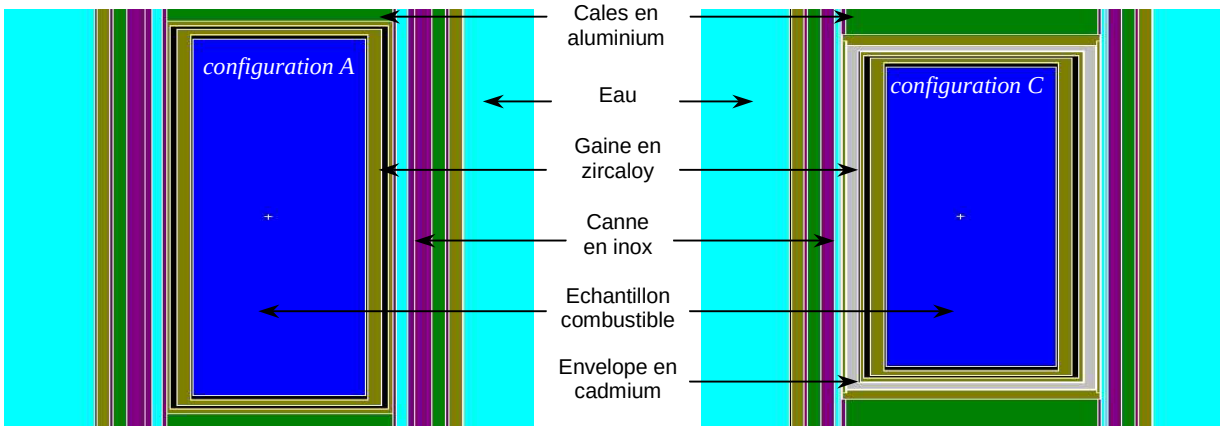

Fig. 87 : coupe radiale de la canne d' oscillation (schéma de calcul MCNP4C2)

L' incertitude sur le calcul des indices de capture dépend essentiellement de l' incertitude sur le rapport massique entre l' isotope capturant et les isotopes fissionnables. Pour les échantillons OCEAN d' europium et les échantillons OSMOSE, elle est de 1% et provient de l' incertitude sur la pesée des matières mises en œuvre à la fabrication. Pour tous les autres combustibles, l' incertitude provient de l' analyse chimique réalisée après fabrication et varie de 0.4 à 1%. L' incertitude sur le calcul tient également compte de la convergence statistique de l' approche probabiliste. Le nombre de particules simulées est adapté selon le taux de réaction obtenu, de 3000 à 12000 cycles de 10^5 particules (soit 24 à 96 heures de calcul sur 31 processeurs), et permet de minimiser cette contribution à moins de 1%.

Pour le calcul des rapports cadmium, le masse de dopant n' intervient pas directement sur le rapport R_{cd} et son incertitude associée, susceptible d' influer légèrement sur le calcul du spectre neutronique, est de second ordre devant l' incertitude de convergence statistique. A noter que les différents schémas de calcul utilisés décrivent précisément la hauteur des barres de pilotage amenant le réacteur en configuration critique. En effet, si pour le calcul de l' indice de capture r_C, les flux qui interviennent dans le terme de capture et de fission sont issus d' une même expérience d' irradiation, en revanche les mesures réalisées avec et sans cadmium correspondent à deux configurations critiques distinctes où les spectres et les niveaux de flux sont différents.

A titre d'exemple, la comparaison des spectres neutroniques, calculés avec MCNP4C2 et APOLLO2.5 pour l'échantillon H3 au centre du réseau R1-UO2, à partir de la bibliothèque JEF2.2, est présentée ci-dessous (**Fig. 88**). Une cohérence à k = 2 est obtenue pour la plupart des groupes d'énergie, ce qui tend à valider le calcul déterministe par rapport au calcul de référence Monte Carlo.

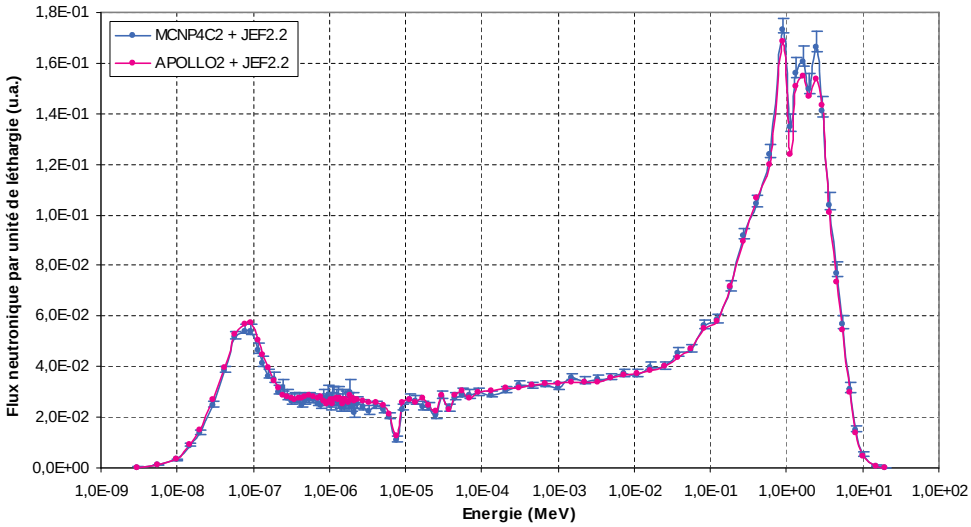

Fig. 88 : spectre neutronique à 172 groupes de l'échantillon H3 au centre du réseau R1-UO2

3.2 Synthèse des calculs de rapport cadmium de capture

Les rapports cadmium de capture, calculés pour les trois échantillons OCEAN ayant fait l'objet d'irradiation avec et sans enveloppe cadmium, sont présentés ci-dessous :

	MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Combustible	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$
Dy164	20.21	0.76%	19.96	0.76%	20.87	0.80%
Er170	-		-		1.886	1.16%
Hf180	3.495	1.67%	3.340	1.67%	3.668	1.50%

Tab. 80 : calculs des rapports cadmium de taux de capture

A noter qu'en raison de l'absence d'évaluation JEF2.2 et ENDF/B-VI.8 de la section de capture (n,γ) de l'erbium 170, le rapport cadmium associé n'a pu être estimé qu'avec JEFF3.1.

3.3 Synthèse des calculs d'indice de capture

La synthèse des calculs d'indice de capture, dont on rappelle qu'ils sont notés r_c, calculés pour l'uranium 238 ainsi que pour les différents absorbants neutroniques et actinides, sont reportés dans les trois tableaux suivants (**Tab. 81**, **Tab. 82**, **Tab. 83**). A noter que le taux de capture JEFF3.1 du thorium 232 ainsi que le taux de capture JEF2.2 de l'hafnium 180 ne peuvent être estimés du fait de l'impossibilité du code d'autoprotéger, à l'heure actuelle, les sections de ces deux isotopes.

Les incertitudes sur chaque calcul sont estimées en tenant compte de la convergence du calcul pour l'approche de type Monte-Carlo et de la connaissance du bilan matière de chaque échantillon, en particulier le rapport de masse m_c / m_f entre l'isotope capturant et l'isotope fissile. On a alors :

$$\left(\frac{u(r_C)}{r_C}\right)^2 = \left(\frac{u(r_C)}{r_C}\right)^2_{statistique} + \left(\frac{u(m_c/m_f)}{m_c/m_f}\right)^2 \qquad \textbf{(88)}$$

		APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Réaction	Combustible	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$
^{238}U(n,2n)	H1	0.01324	0.1%	0.01547	0.1%	0.01317	1.40%	0.01504	1.44%	0.01507	1.71%
^{238}U(n,γ)	H1	3.694	0.1%	3.665	0.1%	3.702	0.41%	3.675	0.41%	3.725	0.47%
	H2	2.315	0.1%	2.308	0.1%	2.334	0.72%	2.326	0.51%	2.310	0.78%
	H3	1.744	0.1%	1.731	0.1%	1.764	0.95%	1.786	0.79%	1.744	1.05%
	H3+Cd	4.239	0.1%	4.319	0.1%	4.285	0.99%	4.347	0.99%	4.321	1.00%
	H5	0.7333	0.1%	0.7282	0.1%	0.7451	0.93%	0.7403	0.93%	0.7410	0.94%
	H6	0.5203	0.1%	0.5175	0.1%	0.5230	0.70%	0.5280	0.50%	0.5235	0.60%
	URE	0.4062	0.1%	0.4034	0.1%	0.4069	0.38%	0.4060	1.00%	0.4070	0.77%
	H8	0.3452	0.1%	0.3429	0.1%	0.3495	0.82%	0.3533	0.98%	0.3459	0.77%
	UappAl	3.340	0.1%	3.323	0.1%	3.371	0.95%	3.430	1.08%	3.426	1.02%
	U20%	0.1141	0.1%	0.1136	0.1%	0.1144	1.03%	0.1140	1.00%	0.1156	1.03%
	UMoAl2.2	0.1225	0.1%	0.1220	0.1%	0.1207	1.02%	0.1245	1.20%	0.1244	1.18%
	UMoAl8	0.1076	0.1%	0.1070	0.1%	0.1090	0.90%	0.1072	1.14%	0.1077	1.03%
	U1	0.5068	0.1%	0.5068	0.1%	0.5096	0.72%	0.5155	0.50%	0.5111	0.62%
	U2	0.5105	0.1%	0.5105	0.1%	0.5171	0.72%	0.5153	0.50%	0.5079	0.62%
	U3	0.5105	0.1%	0.5105	0.1%	0.5177	0.72%	0.5134	0.50%	0.5136	0.62%
	U4	0.5068	0.1%	0.5068	0.1%	0.5171	0.72%	0.5123	0.50%	0.5110	0.62%
	U5	0.5085	0.1%	0.5085	0.1%	0.5189	0.72%	0.5141	0.50%	0.5086	0.62%
	U6	0.5085	0.1%	0.5085	0.1%	0.5106	0.72%	0.5153	0.50%	0.5089	0.62%
	U7	0.5056	0.1%	0.5056	0.1%	0.5106	0.72%	0.5106	0.50%	0.5101	0.62%
	V	0.1052	0.63%	0.1053	0.96%	0.1068	0.63%	0.1072	1.04%	0.1087	0.96%

Tab. 81 : synthèse des calculs de taux de conversion de l'uranium 238

		APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Réaction	Echantillon	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$
^{151}Eu(n,γ)	Eu151	1.954	5.00%	1.953	5.00%	1.986	5.09%	1.996	5.10%	2.012	5.09%
^{153}Eu(n,γ)	Eu153	1.832	5.00%	1.915	5.00%	1.897	5.10%	1.964	5.10%	1.985	5.09%
^{164}Dy(n,γ)	Dy164	1.928	0.50%	2.043	0.50%	1.919	0.68%	2.013	0.69%	2.031	0.71%
^{164}Dy(n,γ)	Dy164+Cd	0.3016	0.50%	0.3182	0.50%	0.3087	0.87%	0.3225	0.86%	0.3189	0.89%
^{170}Er(n,γ)	Er170	-	-	0.1875	0.59%	-	-	-	-	0.1813	1.02%
^{170}Er(n,γ)	Er170+Cd	-	-	0.3665	0.59%	-	-	-	-	0.3486	1.06%
^{180}Hf(n,γ)	Hf180	-	-	0.2681	0.71%	0.2640	1.01%	0.2656	1.05%	0.2672	1.01%
^{180}Hf(n,γ)	Hf180+Cd	-	-	0.2731	0.71%	0.2760	1.70%	0.4261	0.55%	0.2701	1.55%

Tab. 82 : synthèse des calculs d'indice de capture d'absorbants

		APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Réaction	Echantillon	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$	r_C	$\frac{u(r_C)}{r_C}$
^{232}Th(n,γ)	Th232	48.33	0.1%	-	-	60.10	0.80%	58.15	0.53%	57.88	0.63%
^{232}Th(n,γ)	U-Th232	0.2266	1%	-	-	0.2299	1.45%	0.2317	1.49%	0.2270	1.42%
^{236}U(n,γ)+ ^{238}U(n,2n)	URE	0.02842	0.15%	0.02835	0.15%	0.02848	1.29%	-	-	0.02878	1.67%
^{237}Np(n,γ)	Np237	0.9579	0.28%	0.9007	0.28%	0.9550	0.58%	0.9578	0.58%	0.9122	0.63%
^{242}Pu(n,γ)	Pu242	0.2747	0.57%	0.2738	0.57%	0.2760	1.50%	0.2773	1.50%	0.2724	1.58%

Tab. 83 : synthèse des calculs d'indice de capture d'actinides

L'examen de ces quatre tableaux montre que dans la plupart des cas, une qualification à $k = 2$ est obtenue pour les calculs déterministes par rapport aux calculs probabilistes, sur la base de la même bibliothèque de données nucléaires, ce qui tend à valider le spectre neutronique calculé au centre du réseau et les procédures d'autoprotection des sections efficaces.

En revanche, des écarts de 4% et 20% sont respectivement observés pour le calcul de l'indice de capture des échantillons Er170 et Th232 et devront faire l'objet d'une investigation ultérieure.

4 COMPARAISON CALCUL / EXPERIENCE

4.1 Capture (n,2n) de l'uranium 238

Les rapports C / E, obtenus pour l'indice de capture (n,2n) de l'uranium 238 sur l'échantillon H1, sont présentés ci-dessous (**Tab. 84**). Les incertitudes sur ces rapports sont estimées par la somme quadratique de la contribution due à la mesure et de la contribution due au calcul.

APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
0.849	8.55%	0.978	5.15%	0.845	8.66%	0.959	5.35%	0.953	5.43%

Tab. 84 : comparaison calcul / expérience de l'indice de capture (n,2n) de l'uranium 238

Le meilleur accord calcul / expérience est obtenu à partir des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 et s'explique par l'augmentation d'environ 20% de la section intégrale de capture (n,2n) de l'uranium 238, en spectre de fission par rapport à JEF2.2. Compte tenu de l'incertitude de mesure d'environ 4%, l'écart par rapport à l'unité du rapport C / E n'est pas significatif.

Néanmoins, il est possible qu'une légère sous-estimation du taux de production d'uranium 237 subsiste, liée à l'absence de prise en compte de la réaction photonucléaire (γ,n) sur l'uranium 238. En effet, si pour les autres taux de capture étudiés, la contribution de cette réaction est négligeable, ce n'est plus dans le cas de la capture (n,2n) où la section efficace est faible. L'interaction des photons avec l'uranium 238 est une réaction à seuil qui intervient à la même énergie que la réaction (n,2n) :

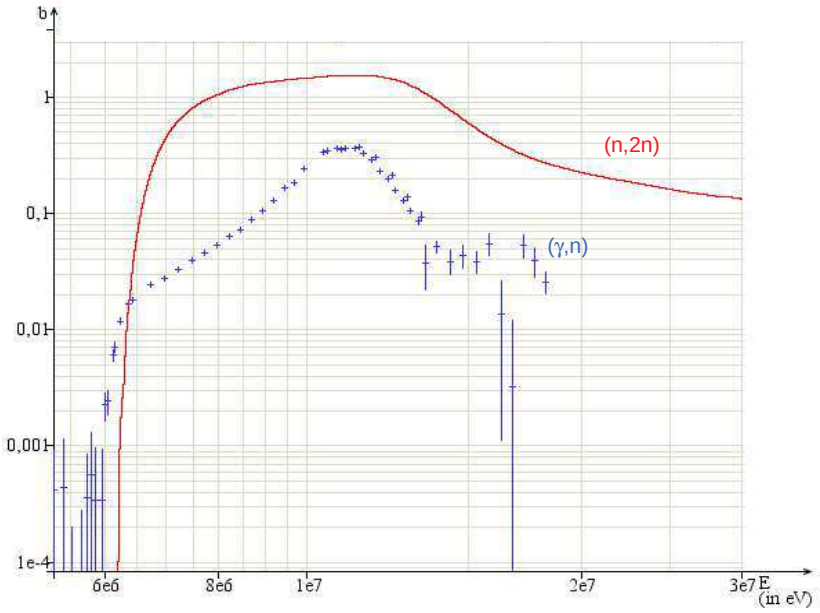

Fig. 89 : comparaison des sections efficaces de capture (n,2n) et (γ,n) de l' uranium 238

Sur la gamme des énergies supérieures à 6 MeV où débute la réaction (γ,n), on rencontre essentiellement des photons prompts de fission **[128]**. Les bibliothèques JEF2.2 , ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 possèdent des données d' émission photonique pour l' uranium 235 et 238 et permettent donc d' estimer le flux de rayonnements γ présent au centre du réseau R1-UO2, grâce à un calcul couplé neutrons / photons. La figure suivante montre la comparaison entre le spectre neutronique et photonique, calculé dans le maillage standard à 172 groupes, avec MCNP4C2 et JEFF3.1 :

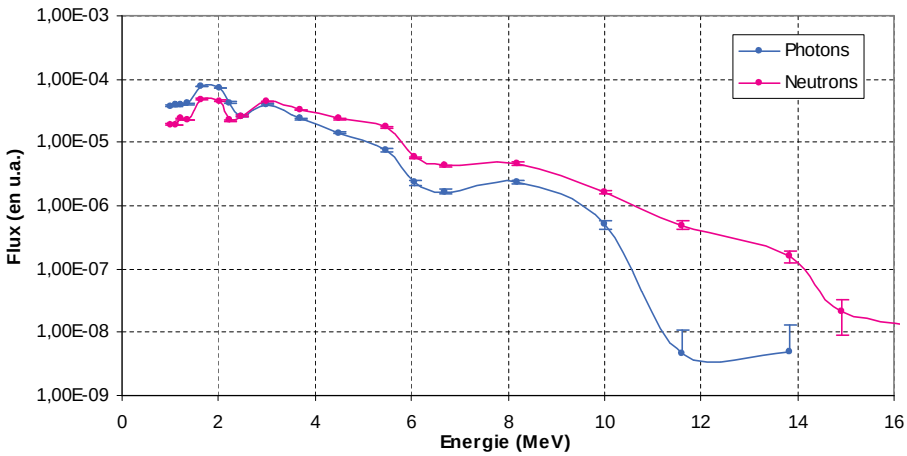

Fig. 90 : comparaison du spectre neutronique et photonique au centre du réseau R1-UO2

Pour estimer la contribution du taux de production d' uranium 237 par la réaction (γ,n), par rapport à la réaction (n,2n), on doit estimer le rapport des sections efficaces, convoluées aux spectres représentés ci-dessus. En réalisant une interpolation linéaire entre les différentes mesures discrètes de section efficace, on peut obtenir un ordre de grandeur du taux de réaction correspondant :

$$\frac{\overline{\sigma}(\gamma,n)}{\overline{\sigma}(n,2n)} = (3.2 \pm 0.3)\%$$

En tenant compte de la réaction (γ,n), on observe que l'indice de capture calculé est augmenté de 3.2% et qu'un accord à 1.5% près est obtenu entre le calcul et l'expérience. Les mesures réalisées permettent donc de qualifier à $k = 1$, les évaluations ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 de la section (n,2n) de l'uranium 238, dans un spectre de type REP-UO$_2$.

4.2 Taux de conversion de l'uranium 238

La comparaison calcul / expérience des mesures de taux de conversion de l'uranium 238, réalisées sur crayon combustible est présentée ci-dessous :

	APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Crayon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
U1	1.012	3.31%	1.008	3.23%	1.018	3.39%	1.041	1.86%	1.017	3.29%
U2	1.015	3.31%	1.012	3.23%	1.028	3.39%	1.036	1.86%	1.007	3.29%
U3	1.018	3.31%	1.014	3.23%	1.032	3.39%	1.034	1.86%	1.020	3.29%
U4	1.004	3.31%	1.006	3.23%	1.025	3.39%	1.029	1.86%	1.014	3.29%
U5	1.006	3.31%	1.005	3.23%	1.027	3.39%	1.031	1.86%	1.006	3.29%
U6	1.016	3.31%	1.012	3.23%	1.020	3.39%	1.039	1.86%	1.013	3.29%
U7	1.006	3.31%	1.002	3.23%	1.016	3.39%	1.024	1.87%	1.011	3.29%
V	0.994	3.39%	0.988	3.39%	1.009	3.39%	1.016	2.09%	1.020	3.39%

Tab. 85 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 238

Pour les 7 crayons UO_2 étudiés, on observe une qualification à $k = 1$ de l'indice de capture calculé à partir de JEF2.2 et JEFF3.1 **[110]**. Compte tenu de l'incertitude de 3% dans JEF2.2 et JEFF3.1 sur la probabilité d'émission γ de la raie à 277.6 keV du neptunium 239, il n'est pas possible de dégager davantage d'informations sur la qualification de la section de capture. Néanmoins, on peut remarquer qu'une nouvelle estimation de cette donnée nucléaire vient d'être proposée **[111]** :

Source	Année	I_γ (277.6 keV)
JEF2.2	1993	(14.38 ± 0.43)%
ENDF/B-VI.8	2001	(14.38 ± 0.21)%
JEFF3.1	2004	(14.38 ± 0.43)%
Réf. [111]	**2005**	**(14.505 ± 0.079)%**

Tab. 86 : évaluations de la probabilité d'émission de la raie γ mesurée du neptunium 239

La valeur proposée en 2005, basée sur une ré-interprétation des mesures passées de section de capture de l'uranium 238, est cohérente avec JEFF3.1 avec une incertitude diminuée d'un facteur 5. En utilisant cette estimation, les incertitudes sur les rapports C / E se trouvent alors réduites de 3.3% à environ 1.5%, ce qui permet d'en affiner l'interprétation. En se basant sur les calculs APOLLO2 qui permettent de s'affranchir de l'incertitude de convergence statistique et en remarquant que les crayons U1 et U4, U2 et U3, U5 et U6, sont symétriques par rapport au centre du réseau, on peut identifier l'existence d'une légère dépendance du rapport C / E en fonction de la distance au centre du réseau :

		APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		
Crayon	Distance au centre du réseau (mm)	$\overline{C/E}$	$\frac{u(\overline{C/E})}{\overline{C/E}}$	$\overline{C/E}$	$\frac{u(\overline{C/E})}{\overline{C/E}}$	$\left.\frac{u(\overline{C/E})}{\overline{C/E}}\right\|_{exp}$
U1 et U4	12.6	1.016	1.45%	1.013	1.27%	0.42%
U5 et U6	17.8	1.010	1.45%	1.007	1.27%	0.42%
U2 et U3	25.2	1.007	1.45%	1.006	1.27%	0.42%
U7	71.3	1.005	1.50%	1.001	1.30%	0.60%

Tab. 87 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 238 obtenus en utilisant les probabilités d'émission γ du neptunium 239 recommandées dans la Réf. [111]

On peut considérer que le crayon U7 est irradié dans une zone représentative du mode fondamental, correspondant à un réseau infini radialement. L'accord calcul / expérience permet de donc qualifier la section intégrale de capture (n,γ) de l'uranium 238 à moins de 0.5% dans un spectre de type REP-UO2, pour une incertitude de 1.5%.

En revanche, on observe que plus les crayons sont irradiés à proximité du centre, plus le rapport C / E s'écarte de l'unité. Cette tendance, qui ne peut s'expliquer uniquement par l'incertitude de reproductibilité de la mesure, pourrait provenir d'un problème lié au calcul du spectre neutronique au centre du réseau, lié en particulier à la présence de la canne d'oscillation en inox qui écarte le comportement neutronique du mode fondamental de réseau infini.

Dans le cas de la mesure réalisée sur le crayon V, constitué d'UMoAl et irradié au centre du réseau R1-UO2 en l'absence de canne d'oscillation, on observe une qualification à $k = 1$ avec un accord calcul / expérience proche de celui obtenu pour le crayon U7 en mode fondamental.

Les mesures réalisées à partir d'échantillons combustibles iradiés au centre du réseau, apportent une justification supplémentaire à l'hypothèse d'une influence de la canne d'oscillation :

	APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Echantillon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
H1	1.024	3.68%	1.020	3.15%	1.026	3.70%	1.037	1.71%	1.037	3.18%
H2	1.059	3.45%	1.055	3.17%	1.068	3.52%	1.079	1.77%	1.056	3.26%
H3	1.046	3.37%	1.037	3.17%	1.058	3.50%	1.084	1.86%	1.044	3.34%
H3+Cd	0.976	4.05%	1.007	3.17%	0.986	4.17%	1.029	1.93%	1.008	3.32%
H5	1.057	3.19%	1.049	3.19%	1.074	3.32%	1.080	1.96%	1.067	3.33%
H6	1.056	3.30%	1.047	3.22%	1.061	3.37%	1.083	1.84%	1.059	3.28%
URE	1.058	3.27%	1.035	3.20%	1.059	3.29%	1.068	2.02%	1.045	3.29%
H8	1.048	3.26%	1.042	3.19%	1.061	3.36%	1.085	1.99%	1.051	3.28%
UappAl	0.937	3.55%	0.927	3.21%	0.946	3.67%	0.965	2.11%	0.955	3.37%
U20%	1.062	3.29%	1.059	3.25%	1.065	3.45%	1.074	2.09%	1.077	3.41%
UMoAl2.2	1.067	3.30%	1.063	3.25%	1.051	3.45%	1.097	2.20%	1.084	3.46%
UMoAl8	1.040	3.32%	1.034	3.27%	1.053	3.44%	1.050	2.21%	1.041	3.43%

Tab. 88 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 238

En se basant sur les rapports C / E obtenus avec APOLLO2.5, les six échantillons H2, H3, H5, H6, URE et H8 montrent une sur-estimation moyenne des indices de capture de 4.5% avec JEF2.2 et de 5% avec JEFF3.1. En revanche, la mesure de l'échantillon H3 irradié sous enveloppe cadmium conduit à des rapports C / E plus proches de l'unité.

Cette comparaison permet d'avancer l'hypothèse d'un biais sur le spectre neutronique calculé au centre du réseau. En effet, pour les six échantillons évoqués ci-dessus, le rapport r_c renseigne de la proportion de neutrons épithermiques (la capture sur l'uranium 238 est à 90% résonante) par rapport aux neutrons thermiques (le taux de fission provient à 75% de l'uranium 235). En revanche pour l'échantillon H3 irradié sous cadmium, le rapport r_C caractérise la proportion de neutrons épithermiques par rapport aux neutrons rapides (60% des fissions sont dues à l'uranium 238). Par ailleurs, on constate que pour l'échantillon H1, où la proportion de fission due à l'uranium 235 est plus faible que les autres échantillons, le rapport C / E est plus proche de l'unité.

Sachant que les caractéristiques de la zone expérimentale du réacteur sont bien maîtrisées **[86]**, deux explications peuvent être avancées pour justifier l'hypothèse d'une influence de la canne :

- influence de la section efficace de l'aluminium (rondins en AG3 autour de l'échantillon),
- influence de la section efficace du fer (principal constituant de la canne d'oscillation).

La première explication est peu probable car l'absence de prise en compte des cales en AG3 dans le calcul APOLLO2.5 ne montre pas de différence significative sur le spectre neutronique par rapport au calcul MCNP4C2 décrivant la géométrie exacte du cœur (**Fig. 88**). La seconde explication pourra être validée ultérieurement par des mesures d'indice de spectre par chambres à fission.

Concernant les mesures réalisées sur les combustibles du programme VALMONT à base d'UAl et d'UMoAl, on observe des tendances intéressantes selon leurs caractéristiques physiques.

Tout d'abord, la comparaison des rapports C / E obtenus pour l'échantillon UMoAl8, irradié dans la canne d'oscillation, et le crayon V, constitué du même combustible mais irradié en l'absence de canne d'oscillation **[129]**, confirme les tendances observées pour les combustibles UO_2.

Pour les deux échantillons UappAl et U20%Al qui ne diffèrent que par leur vecteur isotopique uranium (respectivement 0.48% et 20% d'enrichissement en uranium 235), on observe des comportements opposés, d'une sous-estimation de 3.5 à 5.5% de l'indice de capture r_c pour le premier et d'une sur-estimation de 6 à 8% pour le second. Ces tendancessont cohérentes avec les mesures de réactivité réalisées sur ces échantillons qui révèlent des tendances similaires **[130]**. Si le biais sur le calcul du spectre neutronique peut effectivement jouer un rôle sur l'interprétation de ces écarts, elle ne peut expliquer complètement la différence de comportement observée entre les deux échantillons. D'autres paramètres doivent être considérés, notamment lafaible densité du combustible ($\mu \approx 4.1$) ou l'influence croisée de l'aluminium avec l'enrichissement en uranium 235. Ils devront faire l'objet d'études plus approfondies à l'avenir afin de vérifier leur contribution aux rapports C / E.

Enfin, la comparaison des échantillons U20%Al et UMoAl2.2, qui ne diffèrent que par la matrice de support de l'uranium (de type Al ou MoAl), ne montre pas de différence significative sur le rapport C / E, ce qui tend à prouver la pertinence de la section efficace (n,γ) du molybdène.

En conclusion, les mesures réalisées en mode fondamental dans le réseau R1-UO2 montrent que la capture (n,γ) de l'uranium 238 est qualifiée à $k = 1$ pour les trois bibliothèques utilisées, avec un meilleur accord obtenu pour JEFF3.1. L'étude montre également la nécessité de poursuivre les investigations sur la sur-estimation observée pour les échantillons irradiés dans la canne d'oscillation.

4.3 Capture (n,γ) de l' europium 151 et 153

La comparaison calcul / expérience des mesures d' indice de capture de l' europium 151 et 153, est présentée ci-dessous :

	APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Echantillon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
Eu151	1.357	5.32%	1.317	5.18%	1.379	5.41%	1.382	5.20%	1.356	5.26%
Eu153	0.913	5.64%	0.947	5.16%	0.945	5.73%	0.988	5.35%	0.981	5.25%

Tab. 89 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l' europium 151 et 153

L' interprétation préliminaire des mesures réalisées met en évidence une sur-estimation de l' ordre de 35 à 38% de l' indice de capture de l' europium 151, et une qualification à k = 1 pour l' europium 153 avec un accord calcul / expérience inférieur à 5%.

Toutefois, ces résultats doivent être pris avec précaution car les calculs sont réalisés sur la base de bilans matière préliminaires, estimés par pesée du dopant avant frittage avec la poudre d' uranium. La teneur finale étant susceptible de varier de ±5%, les calculs devront être repris dès que les analyses chimiques des pastilles seront réalisées (prévues pour fin 2006). Si les tendances observées dans ce tableau se confirment, elles seraient alors directement imputables aux sections efficaces de capture puisque les probabilités d' émission γ utilisées dans la mesure sont a priori maîtrisées à mieux que 1%.

4.4 Capture (n,γ) du dysprosium 164

Les comparaisons calcul / expérience des mesures d' indice de capture du dysprosium 164 sont présentées ci-dessous :

	APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Echantillon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
Dy164	0.851	7.44%	0.858	10.9%	0.847	7.45%	0.845	11.3%	0.853	10.9%
Dy164+Cd	0.796	6.97%	0.783	11.0%	0.815	7.00%	0.803	11.4%	0.784	11.0%

Tab. 90 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du dysprosium 164

Ce tableau montre que le calcul sous-estime d' environ 15% l' indice de capture pour la mesure réalisée sans cadmium, et d' environ 20% pour la mesure avec cadmium. Compte tenu de l' incertitude de reproductibilité expérimentale (inférieure à 2%), ces rapports C / E traduisent l' existence d' erreurs sur une ou plusieurs données nucléaires de base. Une explication possible pourrait provenir d' un biais sur les probabilités d' émission des raies γ du dysprosium 165, qui n' ont fait l' objet que de deux études par le passé, comme le montre le tableau suivant :

Source	Année	I_γ (279.8 keV)	I_γ (361.7 keV)
G. MAURON	1972	(0.498 ± 0.025)%	(0.840 ± 0.042)%
JEF2.2	**1993**	**(0.498 ± 0.025)%**	**(0.840 ± 0.042)%**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**(0.498 ± 0.054)%**	**(0.840 ± 0.094)%**
JEFF3.1	**2004**	**(0.498 ± 0.056)%**	**(0.840 ± 0.090)%**
H. MIYAHARA	2004	(0.534 ± 0.008)%	(0.904 ± 0.013)%
ENSDF	**2006**	**(0.534 ± 0.008)%**	**(0.904 ± 0.013)%**
ENDF/B-VII (beta 2)	**2006**	**(0.534 ± 0.008)%**	**(0.904 ± 0.013)%**

Tab. 91 : évaluations des probabilités d'émission des deux raies γ mesurées du dysprosium 165

Les évaluations adoptées dans JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 sont basées sur la seule mesure de 1972, et sont reportées avec une incertitude de 5 à 10%, liée au facteur de normalisation[33]. En 2004, une nouvelle évaluation a été proposée à partir d'une technique demesure optimisée[34]. Elle aboutit à une augmentation respective de 7.3 et 7.7% des probabilités d'émission des raies γ à 279.8 et 361.7 keV, soit un accroissement d'environ 7.5% des C/E donnés précédemment :

	APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Echantillon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
Dy164	0.915	5.64%	0.922	2.16%	0.911	5.65%	0.908	2.06%	0.917	2.16%
Dy164+Cd	0.856	5.06%	0.842	2.73%	0.876	5.10%	0.863	2.67%	0.843	2.73%

Tab. 92 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du dysprosium 164 - probabilités d'émission γ du dysprosium 165 issues de la bibliothèque ENDF/B-VII (beta 2)

L'interprétation par calcul APOLLO2.5 et JEFF3.1, des mesuresde réactivité confirment les tendances observées par les mesures de spectrométrie γ. En effet, un rapport C/E égal à 0.877 ± 0.018 est obtenu à partir du même échantillon, irradié sans enveloppe cadmium **[113]**. Sachant que la section de fission est nulle dans le cas des terres rares, ce résultat peut directement être imputé à la section de capture (n,γ). Une cohérence à $k = 2$ est donc obtenue entre les résultats déduits des deux techniques de mesure. Elle tend à valider les données d'émission γ proposées dans l'étude de 2004 et permet de conclure à une sous-estimation probable de la section intégrale de capture de l'ordre de (10.3± 1.6)%.

Une information intéressante est également dégagée de la mesure du rapport cadmium de capture où une qualification à $k = 1$ est obtenue pour les trois bibliothèques de données nucléaires :

MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
0.996	2.18%	0.983	2.18%	1.028	2.18%

Tab. 93 : comparaison calcul / expérience du rapport cadmium de capture du dysprosium 164

[33] Fonction de l'étalonnage en rendement du détecteur et de l'activité totale de la source dont on cherche à caractériser les probabilités d'émission γ.

[34] L'activité de la source de dysprosium 165, utilisée pour la normalisation des probabilités d'émission γ mesurées, est déterminée par un système de coïncidences β-γ, sans utiliser la section de capture (n,γ) du dysprosium 164.

Sachant que pour la mesure sans cadmium, 95% du taux de capture est dû à des neutrons thermiques (E < 0.55 eV) et que pour la mesure avec cadmium, 92% du taux de capture est dû à des neutrons épithermiques (0.55 eV < E < 100 keV), la comparaison calcul / expérience du rapport R_{cd} est un indicateur direct de la justesse du rapport σ_{2200} / I_o. De ce fait, l'existence d'une sous-estimation de la section de capture thermique du dysprosium 164, de l'ordre de (10 ± 2)%, est directement corrélée à une sous-estimation équivalente dans le domaine épithermique.

Ces conclusions devront être confirmées par les mesures futures qui seront réalisées dans d'autres spectres ainsi que par une contre-analyse de la teneur en dopant de l'échantillon Dy164.

4.5 Capture (n, γ) de l'erbium 170

Les comparaisons calcul / expérience des mesures d'indice de capture de l'erbium 170, obtenues avec la seule bibliothèque disponible (JEFF3.1), sont présentées dans les tableaux suivants :

	APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEFF3.1	
Mesure	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
Er170	0.839	4.06%	0.812	4.32%
Er170+Cd	1.092	4.11%	1.052	4.38%

Tab. 94 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'erbium 170

Les mesures par spectrométrie γ mettent en évidence une sous-estimation d'environ 19% de l'indice de capture de l'erbium 170, pour l'irradiation sans cadmium. Cette tendance est incohérente avec les mesures de réactivité, réalisées à partir du même échantillon, irradié dans les mêmes conditions expérimentales, où un rapport C/E égal à 0.992 ± 0.075 est obtenu. Autrement dit, on peut émettre l'hypothèse d'une erreur liée aux probabilités d'émission γ de l'erbium 171, qui n'ont été mesurées qu'une seule fois par le passé, tel que le montre le tableau suivant :

Source	Année	I_γ (295.9 keV)	I_γ (308.3 keV)
A. ARTNA	1961	(0.289 ± 0.012)%	(0.644 ± 0.025)%
JEF2.2	**1993**	**(0.289 ± 0.008)%**	**(0.644 ± 0.016)%**
JEFF3.1	**2004**	**(0.289 ± 0.012)%**	**(0.644 ± 0.025)%**

Tab. 95 : évaluations des probabilités d'émission des deux raies γ mesurées de l'erbium 171

D'après l'écart entre les rapports C/E déduits des mesures par oscillation et des mesures par spectrométrie γ, on peut conclure à une sous-estimation probable de (18 ± 8)% des probabilités d'émission γ de l'erbium 171. Pour progresser sur la section de capture (n,γ) de l'erbium 170, il sera donc nécessaire d'entreprendre des études complémentaires afin d'affiner les tendances observées.

Si l'interprétation des mesures d'indice de capture est pénalisée par l'incertitude associée à ces données nucléaires, en revanche les mesures de rapport cadmium de capture apportent la preuve d'une incohérence sur le rapport entre les sections intégrales thermiques et épithermiques de JEFF3.1 :

MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
0.745	1.70%

Tab. 96 : comparaison calcul / expérience du rapport cadmium de capture de l' erbium 170

Sachant que pour la mesure sans enveloppe cadmium, la contribution des neutrons thermiques (E < 0.55 eV) au taux de capture total est de 45%, contre 1.5% pour la mesure avec cadmium, les hypothèses suivantes peuvent être avancées sur la section intégrale de capture (n,γ) de l' erbium 170 :

- sous-estimation de (44 ± 10)% de la composante thermique,
- sur-estimation de (35 ± 3)% la composante épithermique.

De telles variations sont tout à fait justifiées, compte tenu du peu de données expérimentales disponibles et de l' incohérence observée entre les différentes études (**Tab. 73**).

Néanmoins, ces tendances doivent être nuancées par les remarques émises précédemment quant à la capacité des formulaires de calcul utilisés, à correctement prendre en compte l' effet de la canne d' oscillation sur le calcul du spectre neutronique. Les mesures futures réalisées dans le réseau R2-UO_2 (spectre de réacteur sur-modéré) où la proportion de capture thermique sera plus élevée, permettront d' apporter davantage de justifications aux hypothèsesémises sur la section intégrale de capture de l' erbium 170.

4.6 Capture (n, γ) de l' hafnium 180

Les comparaisons calcul / expérience des mesures d' indice decapture de l' hafnium 180 sont présentées ci-dessous:

	APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 JEFF3.1	
Echantillon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
Hf180	0.881	1.29%	0.892	2.20%	0.878	1.48%
Hf180+Cd	0.899	1.25%	0.923	3.37%	0.889	1.86%

Tab. 97 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l' hafnium 180

Les mesures par spectrométrie γ mettent en évidence une sous-estimation d' environ 11 à 12% de l' indice de capture de l' hafnium 180, pour l' irradiation sans cadmium. Cette tendance est incohérente avec les mesures de réactivité, réalisées à partir du même échantillon, irradié dans les mêmes conditions expérimentales, où un rapport C/E égal à 0.997 ± 0.052 est obtenu. De la même façon que pour l' erbium 170, cet écart entre les rapports C/E déduitsdes deux techniques de mesure, traduit probablement l' existence d' une erreur de (12.0 ± 5.5)% sur les probabilités d' émission γ de l' hafnium 181**[131]**, dont l' évaluation proposée dans JEFF3.1 n' est basée que sur une seule étude :

Source	Année	I_γ (482.2 keV)
AG. HELMER	1990	$(0.8052 \pm 0.0011)\%$
JEF2.2	**1993**	**$(0.83 \pm 0.016)\%$**
JEFF3.1	**2004**	**$(0.806 \pm 0.002)\%$**
ENSDF	**2005**	**$(0.805 \pm 0.004)\%$**

Tab. 98 : évaluations des probabilités d'émission de la raie γ mesurée de l'hafnium 181

Ensuite, l'interprétation des mesures de rapport cadmium de capture montre que des effets de compensation existent probablement entre la composante thermique et épithermique de la section de capture puisque le rapport C/E est incohérent avec l'unité pour les trois bibliothèques utilisées :

MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
0.903	1.84%	0.859	1.84%	0.943	1.69%

Tab. 99 : comparaison calcul / expérience du rapport cadmium de capture de l'hafnium 180

Sachant que la contribution des neutrons thermiques (E < 0.5 eV) au taux de capture total est de 75% pour la mesure sans cadmium, et de 5% pour la mesure réalisée avec cadmium, on peut émettre les hypothèses suivantes sur la section de capture de l'hafnium 180 proposée dans JEFF3.1 :

- sous-estimation de $(2.5 \pm 0.7)\%$ de la composante thermique,
- sur-estimation de $(6 \pm 1.8)\%$ de la composante épithermique.

Ces conclusions ne sont pas tout à fait cohérentes avec les mesures d'indice de capture réalisées avec et sans cadmium. Elles doivent être nuancées par les problèmes évoqués précédemment sur le calcul de spectre dans la canne d'oscillation. Des phénomènes de compensation, liés au terme de taux de fission dans l'expression de l'indice de capture, peuvent intervenir et devront faire l'objet d'une étude plus approfondie.

4.7 Capture (n,γ) du thorium 232

La comparaison calcul / expérience des mesures d'indice de capture du thorium 232 est présentée dans le tableau suivant :

	APOLLO2.5 JEF2.2		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
Echantillon	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
Th232	-	-	1.064	4.32%	1.003	2.07%	1.019	2.70%
U-Th232	1.008	2.34%	1.022	2.59%	1.047	2.00%	1.012	2.05%

Tab. 100 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du thorium 232

L'interprétation préliminaire des rapports C / E obtenus pour l'échantillon U-Th232, pour lequel on ne dispose que de la teneur estimée en dopant avant frittage des pastilles, tend à qualifier pour les trois bibliothèques de données nucléaires, la section de capture (n,γ) du thorium 232 pour ce type de spectre. Ces conclusions sont cohérentes avec les mesures de réactivité qui conduisent à un rapport C/E égal à (1.019 ± 0.026)% pour la bibliothèque JEFF3.1 et tendent à prouver la pertinence des données d'émission γ du protactinium 233. Ces résultats devront toutefois être réajustés dès que des bilans matière finalisés seront disponibles.

L'échantillon Th232, dont la composition est parfaitement maîtrisée (constitué exclusivement de thorium 232 et d'oxygène 16), montre également un excellent accord calcul / expérience à partir des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1, et une sur-estimation de l'indice de capture d'environ 6% avec JEF2.2. Ce dernier résultat, qui reste toutefois cohérent à $k = 2$ avec l'unité, provient essentiellement d'une section de fission plus élevée du thorium 232 (cf. **Tab. 75**).

La comparaison des résultats obtenus pour ces deux échantillons permet de dégager des résultats intéressants sur la section de fission du thorium 232. En effet, si l'on fait l'hypothèse que le bilan matière de l'échantillon U-Th232 est cohérent avec celui qui sera analysé prochainement, les rapports C / E obtenus tendent à montrer que la section moyenne de fission du thorium 232 est qualifiée par rapport à la section de fission de l'uranium 235 et 238, avec un meilleur accord obtenu à partir de l'évaluation JEFF3.1. Implicitement, ces conclusions supposent que le calcul estime correctement la proportion de neutrons d'énergie supérieure à 1.5 MeV (fission à seuil du thorium 232) par rapport aux neutrons d'énergie inférieure à 0.55 eV (fission thermique de l'uranium 235).

Ces conclusions pourront être validées par des irradiations en spectre sous-modérés (réseau MORGANE) et sur-modérés (réseau R2-UO2), lors des futures phases du programme OSMOSE **[98]**, afin de vérifier la cohérence des indices de capture calculés selon le rapport de modération.

4.8 Capture (n,γ) de l'uranium 236

La comparaison calcul / expérience des mesures d'indice de capture de l'uranium 236 est présentée dans le tableau suivant :

APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
0.922	2.77%	0.907	2.69%	0.924	3.06%	0.920	3.17%

Tab. 101 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 236

Une sous-estimation de 8% de l'indice de capture est observée pour les trois bibliothèques de données considérées. Dans ce cas particulier, cette tendance doit également tenir compte de la capture (n,2n) de l'uranium 238, qui contribue à 8% environ de la production d'uranium 237. Or, le paragraphe §4.1 ayant permis de qualifier les évaluations JEFF3.1 de cette section, les rapports C / E obtenus peuvent directement être corrélés à la capture de l'uranium 236. Etant donné qu'elle intervient à 85% en épithermique, une sous-estimation de l'ordre de 9% de l'intégrale de résonance est probable.

D' autre part, comme le rapport σ_{2200} / I_o est proche de celui de l' uranium 238, l' indice de capture de l' uranium 236 est également représentatif de la proportion de neutrons épithermiques par rapport aux neutrons thermiques. Aussi est-il possible que les tendances obtenues sur l' indice de capture soient réduites par un effet de compensation lié à l' effet de la canne d' oscillation. Autrement dit, si la capture (n,γ) de l' uranium 236 est normalisée à celle de l' uranium 238, on observe une sous-estimation de l' indice de capture d' environ 13%. Ce résultat est moins sensible aux erreurs potentielles de calcul du spectre neutronique, puisque les deux réactions sont essentiellement épithermiques.

A l'avenir, il conviendra d' étudier l' influence du rapport C / E en fonction du rapport de modération, pour une normalisation effectuée par rapport au taux de fission total et éventuellement par rapport au taux de capture (n,γ) de l' uranium 238.

4.9 Capture (n,γ) du neptunium 237

La comparaison calcul / expérience des mesures d' indice de capture du neptunium 237 est présentée dans le tableau suivant :

APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
1.076	3.72%	1.011	3.59%	1.073	3.76%	1.093	3.66%	1.024	3.64%

Tab. 102 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du neptunium 237

D' après les rapports C / E obtenus, il semble que la réduction de 10% de la capture thermique du neptunium 237 entre JEF2.2 et JEFF3.1 conduise à un meilleur accord entre l' indice de capture calculé et mesuré. Ce résultat est toutefois incohérent avec les mesures par oscillation qui révèlent une sous-estimation de la réactivité de l' ordre de (10.9± 1.8)% pour ce même échantillon **[132]**. Sachant que la probabilité de fission du neptunium 237 est faible ($\nu\sigma_f$ / $\sigma_a \approx 5\%$), cette tendance peut être directement imputée à sa section de capture (n,γ).

Cette incohérence entre les mesures par oscillation et par spectrométrie γ révèle très probablement une erreur sur les probabilités d' émission γ du neptunium 238 proposées dans JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1. Le tableau suivant montre les informations disponibles à ce jour :

Source	Année	I_γ (984 keV)	I_γ (1028.5 keV)
C. MICHAEL LEDERER	1981	(27.8 ± 0.8)%	(20.3 ± 1.0)%
Y. CHANG	1990	(24.97 ± 0.24)%	(18.13 ± 0.29)%
JEF2.2	**1993**	**(27.8 ± 0.8)%**	**(20.3 ± 1.0)%**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**(27.8 ± 0.8)%**	**(20.3 ± 1.0)%**
JEFF3.1	**2004**	**(27.8 ± 0.8)%**	**(20.3 ± 1.0)%**
ENSDF	**2006**	**(25.19 ± 0.21)%**	**(18.13 ± 0.26)%**
ENDF/B-VII (beta2)	**2006**	**(25.19 ± 0.21)%**	**(18.13 ± 0.26)%**

Tab. 103 : évaluations de la probabilité d' émission des raies γ mesurées du neptunium 238

L' évaluation actuellement reportée dans JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 est basée sur la seule mesure de 1981, alors que l' évaluation proposée dans ENSDF et ENDF/B-VII est la moyenne pondérée des mesures de 1981 et 1990. Si l' on considère les rapports C/ E obtenus en utilisant les données ENSDF, on constate qu' une meilleure cohérence est obtenue avec les mesures de réactivité :

APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
0.975	2.20%	0.916	1.97%	0.972	2.26%	0.990	2.09%	0.927	2.05%

Tab. 104 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du neptunium 237 obtenus en utilisant les probabilités d' émission γ du neptunium 238 recommandées dans ENSDF

Ces résultats tendent à prouver la pertinence de l' évaluation des probabilités d' émission γ proposée dans ENSDF et ENDF/B-VII, 10% plus faible que celle reportée dans JEFF3.1.

La sous-estimation de (7.3 ± 1.9)% de la capture (n,γ) intégrale du neptunium 237, obtenue à partir de cette évaluation, est également confortée par des expériences d' analyse de combustibles industriels irradiés dans des REP. Celles-ci montrent que la quantité de plutonium 238 calculé est sous-estimée de (8 ± 4)% par rapport à la quantité mesurée **[133]**. En combinant les mesures de réactivité, de spectrométrie γ et d' analyse chimique, on conclut à une sous-estimation de la section intégrale de capture (n,γ) du neptunium 237 de (9.2 ± 1.3)%.

4.10 Capture (n,γ) du plutonium 242

La comparaison calcul / expérience des mesures d' indice de capture du plutonium 242 est présentée dans le tableau suivant :

APOLLO2.5 JEF2.2		APOLLO2.5 JEFF3.1		MCNP4C2 JEF2.2		MCNP4C2 ENDF/B-VI.8		MCNP4C2 JEFF3.1	
C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$	C/E	$\frac{u(C/E)}{C/E}$
1.261	10.1%	1.228	10.1%	1.238	10.2%	1.256	10.1%	1.222	10.2%

Tab. 105 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du plutonium 242

De la même façon que pour les autres échantillons, l' incertitude de reproductibilité sur les mesures d' indice de capture du plutonium 242 est suffisamment faible (1.6%) pour les rapports C / E obtenus traduisent l' existence d' un biais sur une ou plusieurs données nucléaires de base. En s' appuyant sur les mesures par oscillation réalisées à partir du même échantillon, une sur-estimation de (0.9 ± 2.1)% de la réactivité a été identifiée avec JEFF3.1 **[132]**. Puisque le terme de fission est faible ($\nu\sigma_f / \sigma_a \approx 8\%$), cette tendance peut être attribuée essentiellement à la section de capture (n,γ). Les rapports C / E traduisent donc une surestimation probable de (21 ± 6)% sur les probabilités d' émission γ du plutonium 243. L' existence d' un biais sur ces données de décroissance est par ailleurs justifiée par le fait que l' évaluation actuelle ne s' appuie que sur la seule mesure de 1969 :

Source	Année	I_γ (84.0 keV)	I_γ (364.5 keV)
AM. FRIEDMAN	1969	(27.6 ± ?)%	(0.69 ± ?)%
PR. FIELDS	1971	(23 ± 2)%	(0.56 ± 0.07)%
JEF2.2	**1993**	**(23 ± 2)%**	**(0.56 ± 0.07)%**
ENDF/B-VI.8	**2001**	**(23 ± 2)%**	**(0.56 ± 0.07)%**
JEFF3.1	**2004**	**(23 ± 2)%**	**(0.56 ± 0.07)%**
ENSDF	**2004**	**(23 ± 2)%**	**(0.56 ± 0.07)%**

Tab. 106 : évaluations de la probabilité d'émission des raies γ mesurées du plutonium 243

Il existe donc un réel besoin de progresser sur les données nucléaires de décroissance dont l'incertitude est directement corrélée à la section efficace. Des mesures du schéma de décroissance et de l'activité absolue du plutonium 243, s'appuyant sur des techniques de scintillation liquide, de spectrométrie γ ou de coïncidences β-γ, permettraient de réduire l'incertitude sur le facteur de normalisation des probabilités d'émission γ, au minium d'un facteur 2 par rapport à l'évaluation actuelle. Différentes méthodes devront être étudiées, soit l'irradiation d'un échantillon d'oxyde de plutonium 242 dans de hauts flux de neutrons (> 10^{14} $n.s^{-1}.cm^{-2}$) et séparation radiochimique des isotopes formés, soit la fabrication d'une source de curium 247 d'activité bien caractérisée (d'où formation de plutonium 243 par décroissance α).

5 CONCLUSION

Ce chapitre montre que pour un certain nombre d'isotopes, les indices de capture calculés sont incohérents à k = 2 avec les résultats expérimentaux. Compte tenu de l'incertitude sur la reproductibilité de la mesure, souvent meilleure que 1%, ces incohérences sont directement imputables aux données nucléaires de base utilisées. Si la technique de mesure ne permet pas de conclure, de façon certaine, sur l'origine des écarts calcul / expérience, du fait d'une forte corrélation entre les données de décroissance radioactive et les sections efficaces, elle fournit néanmoins des informations complémentaires de celles obtenues par la technique d'oscillation en réacteur. Elle permet de conforter des tendances ou d'identifier des besoins de progrès sur les schémas de décroissance, en particulier sur les probabilités d'émission γ. Par ailleurs, les mesures de rapport cadmium de capture développées au cours de la thèse, apportent des indications supplémentaires sur la contribution du domaine thermique et / ou épithermique pour l'interprétation des écarts calcul / expérience.

Pour l'essentiel, cette étude met en évidence la nécessité d'analyses complémentaires quant à la sur-estimation systématique du taux de conversion de l'uranium 238 calculé sur des échantillons combustibles irradiés dans la canne d'oscillation, par rapport à des crayons combustibles du réseau R1-UO2, ainsi que l'influence de ce biais sur les autres mesures d'indice de capture. L'irradiation de plusieurs types de dosimètres, avec des sensibilités différentes en fonction de l'énergie des neutrons, permettrait de qualifier le calcul du spectre neutronique au centre du réseau. Par ailleurs, il serait judicieux de normaliser la section intégrale de capture d'un isotope d'intérêt par rapport à celle d'un isotope sensible à la même gamme de spectre neutronique. Pour cela, l'incorporation de faibles quantités d'isotopes absorbants de référence (exemples : or, manganèse, cobalt) dans les matrices UO_2 de chaque échantillon permettrait d'apporter des informations sur l'origine des écarts C / E, tout en s'affranchissant des données nucléaires de rendements de fission.

CONCLUSION

Cette quatrième partie a permis de dégager des incohérences sur certaines données nucléaires de base utilisées pour la mesure d'indices de capture ou pour leur interprétation par calcul neutronique.

Dans le premier chapitre, les progrès réalisés sur la mise en œuvre et le traitement des données se sont traduits par **une réduction d'un facteur 5 de l'incertitude de reproductibilité de la mesure** grâce à une propagation rigoureuse des variances. L'utilisation de chaînes de mesure et de méthodes optimisées permet en outre, une **fiabilité accrue** dans le résultat de mesure. Ces progrès ont permis l'identification de tendances sur certaines données nucléaires de décroissance utilisées (**Tab. 107**).

Dans le second chapitre, la confrontation des C / E obtenus pour les mesures d'indice de capture et des C / E obtenus pour les mesures de réactivité, réalisées à partir des mêmes échantillons, a permis de déconvoluer en partie les effets de corrélation entre les sections efficaces et les probabilités d'émission γ. Par ailleurs, la réalisation d'expériences de rapport cadmium de capture a permis d'apporter des éléments de réponse sur la contribution du spectre neutronique aux rapports C / E. Les principales conclusions pour la bibliothèque JEFF3.1 sont rappelées ci-dessous :

Isotope concerné	Donnée radioactive	$\frac{C-E}{E}$
^{92}Sr	$T_{1/2}$	(5 ± 1)%
^{135}I	$Y_{U238,f}$	(-7 ± 2)%
^{171}Er	$I_\gamma(E)$	(-18 ± 8)%
^{181}Hf	$I_\gamma(E)$	(-12 ± 5.5)%
^{238}Np	$I_\gamma(E)$	(15 ± 3)%
^{243}Pu	$I_\gamma(E)$	(21 ± 6)%

Isotope concerné	Donnée neutronique	$\frac{C-E}{E}$
^{164}Dy	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(-10.3 ± 1.6)%
^{170}Er	$\overline{\overline{\sigma}_{th}}(n,\gamma)$	(-44 ± 10)%
^{170}Er	$\overline{\overline{\sigma}_{epi}}(n,\gamma)$	(35 ± 3)%
^{180}Hf	$\overline{\overline{\sigma}_{th}}(n,\gamma)$	(-2.5 ± 0.7)%
^{180}Hf	$\overline{\overline{\sigma}_{epi}}(n,\gamma)$	(6.0 ± 1.8)%
^{232}Th	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(1.1 ± 2)%
^{232}Th	$\overline{\sigma}(f,n)$	(2 ± 2.5)%
^{236}U	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(-8 ± 3)%
^{238}U	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(0 ± 1.5)%
^{238}U	$\overline{\sigma}(2n,n)$	(-1.5 ± 5.5)%
^{238}Np	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(-9.2 ± 1.3)%

Tab. 107 : tendances observées sur les données JEFF3.1

Les tendances observées sur certaines sections efficaces de capture devront être affinées après finalisation des interprétations de mesures de réactivité et par la réalisation de nouvelles analyses isotopiques de la teneur en dopant des échantillons OCEAN et OSMOSE. Elles permettent néanmoins d'insister sur les besoins d'amélioration pour certains isotopes et la nécessité d'entreprendre des expériences visant à améliorer les données nucléaires de décroissance radioactive.

La reprise des mesures d'indice de capture et d'oscillation dans des spectres sur-modérés, sous-modérés et de type REP-MOX (respectivement : réseaux R2-UO2, MORGANE-R et R1-MOX) dans MINERVE, lors de la poursuite des programmes expérimentaux OCEAN et OSMOSE d'ici 2009, permettra d'affiner les tendances obtenues à ce jour, dans le seul réseau R1-UO2 (spectre de type REP-UO_2).

PARTIE V :
CONCEPTION DE MESURES PARTICIPANT A LA QUALIFICATION DE DONNEES DE DECROISSANCE

La chance ne sourit qu'aux esprits bien préparés.

Louis Pasteur

INTRODUCTION

Lors de l' arrêt d' un réacteur, une évaluation précise de la puissance résiduelle relâchée par la décroissance des produits de fission et des actinides est indispensable pour les études d' accident et de gestion des combustibles irradiés. Pour cela, des codes de calcul tels que DARWIN **[134]** (en France) ou FISPIN **[73]** (en Angleterre) sont utilisés par l' industrie pour prédire l'évolution des combustibles irradiés et des structures activées. Ils permettent de traiter toutes les chaînes radioactives des nucléides impliqués et supposent une bonne connaissance des données de décroissance associées (périodes radioactives, modes et énergies des désintégrations, rendements de fission).

La qualification de ces codes s' appuie sur le retour d' expérience des industriels qui, dans le cadre de programmes de surveillance des cuves, mènent des études comparatives entre les mesures dosimétriques réalisées en réacteur et les résultats issus de calculs. Elle s' appuie également sur une meilleure connaissance des données nucléaires relatives aux radionucléides qui contribuent à la puissance résiduelle et à l' évolution radiologique à long terme des combustibles irradiés.

Dans ce contexte, des mesures contribuant à la qualification de données de décroissance ont fait l' objet d' un développement au cours de la thèse, et pour la toute première fois pour le SPEx.

Le premier chapitre traite de la décroissance du strontium 92, produit de fission couramment employé depuis plus de 30 ans par les physiciens des réacteurs du CEA pour mesurer des distributions de taux de fission. En raison de l' erreur sur l' évaluation actuelle de sa période radioactive, identifiée dans le chapitre 1 de la partie IV, une nouvelle évaluation sera proposée avec une incertitude réduite.

Le second chapitre illustre les possibilités des mesures sur dosimètre fissile d' uranium 235 pour améliorer la connaissance des rendements de fission. Dans un premier temps, les évaluations en spectre thermique pour les produits de fission les plus couramment rencontrés sur les réacteurs EOLE et MINERVE, seront validées et permettront de conclure sur certaines tendances observées dans la partie IV. Dans un second temps, on réalisera la comparaison des distributions en masse des produits de fission créés suite à des irradiations dans des spectres neutroniques à forte composante thermique puis épithermique. Les résultats seront interprétés dans le cadre de la théorie de fission multi-mode.

Au-delà des améliorations qu' apportent ce travail en terme de réduction des incertitudes et de meilleure connaissance des données nucléaires de base, il met en avant des possibilités de nouvelles expériences dans EOLE et/ou MINERVE, consacrées à la qualification des données de décroissance.

CHAPITRE 1 :
MESURE DE LA PERIODE RADIOACTIVE DU STRONTIUM 92

1 INTRODUCTION

Le strontium 92 est un produit de fission bien adapté aux mesures post-irradiation réalisées sur les combustibles des réacteurs EOLE et MINERVE pour les raisons suivantes :

- période radioactive permettant des mesures d'une durée 5 à 10 fois plus courte que pour les produits de fission utilisés jusqu'alors (lanthane 140), pour la même incertitude de comptage.
- raie γ à haute énergie (E = 1383.9 keV), intense ($I_\gamma(E)$ = 90%) et située dans une zone du spectre isolée de toute autre raie perturbatrice sur une largeur de plusieurs keV.

Son utilisation est restée limitée jusqu'à présent en raison des biais de correction de temps mort induits par les précédentes chaînes de mesure (amplificateur 2026 + carte PCA3) mais est amené à se développer grâce à l'utilisation des électroniques DSP sur tous les bancs de spectrométrie γ. Les partie III et IV ont montré son intérêt pour des mesures de recalage de taux de fission ou d'indice de capture impliquant des radionucléides à courte durée de vie (i.e. quelques heures), mais ont également conduit à la mise en évidence d'une incohérence sur l'évaluation actuelle de sa période radioactive.

Répondant à un besoin d'amélioration des données nucléaires de décroissance, une technique de mesure a été conçue à partir de dosimètres fissiles d'uranium 235, afin de déterminer la période radioactive de ce radionucléide **[135][136][137][138]**. Après un passage en revu des principaux travaux antérieurs consacrés au strontium 92, ce chapitre présente la mise en œuvre expérimentale, les méthodes utilisées et les résultats conduisant à une nouvelle évaluation de sa période radioactive.

2 EVALUATIONS EXISTANTES

L'évaluation de la période radioactive du strontium 92 retenue dans les bibliothèques de données nucléaires JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 est basée sur la mesure réalisée en 1971 **[139]** :

$$T_{1/2} = 2.71 \pm 0.01 \text{ h}$$

Ce résultat a été obtenu par irradiation d'un échantillon de nitrate d'uranyle dans le réacteur de recherche TURR en Iran, puis séparation radiochimique du strontium et des autres produits de fission. Un détecteur de type Ge(Li), couplé à un discriminateur d'amplitude et à une échelle de comptage, a ensuite été utilisé pour suivre la décroissance de l'activité.

La plupart des mesures antérieures ont été obtenues par la même technique mais en utilisant des scintillateurs de type NaI, dont la résolution inférieure rend inévitable l'inclusion des raies γ de l'yttrium 92 à 1405.4 keV et du strontium 91 à 1413.4 keV, d'où une incertitude plus élevée, comme l'atteste le tableau suivant :

Auteur	Année	$T_{1/2}$
G. HERRMANN **[140]**	1956	2.57 ± 0.07 h
K. FRITZE **[141]**	1960	2.71 ± 0.02 h
?	< 1960	2.84 ± 0.22 h
?	< 1960	2.73 ± 0.10 h
?	< 1960	2.79 ± 0.19 h
?	< 1960	2.77 ± 0.17 h
?	< 1960	2.74 ± 0.18 h
?	< 1960	2.45 ± 0.07 h

Tab. 108 : mesures de la période de décroissance du strontium 92 antérieures à 1971

En 2003, une nouvelle mesure a été réalisée par Y. Nir-El à partir d' un détecteur de type Ge(Li) et reporte la valeur suivante **[142]** :

$$T_{1/2} = 2.627 \pm 0.009 \text{ h}$$

Suite à l' obtention de cette donnée expérimentale, une nouvelle évaluation ENSDF a été proposée et recommande la moyenne pondérée des mesures de 1971 et 2003, soit :

$$T_{1/2} = 2.66 \pm 0.04 \text{ h}$$

Il est précisé que cette estimation n' est pas fiable car les deux valeurs sont incohérentes. L' incertitude associée est déduite de la variance externe de la moyenne à partir des deux résultats de mesure (i.e. un seul degré de liberté) et traduit un besoin d' amélioration par la réalisation de mesures complémentaires permettant de déterminer l' origine de l' incohérence entre les deux valeurs.

3 DESCRIPTION DE LA TECHNIQUE EXPERIMENTALE

A ce jour, la technique expérimentale la plus courante pour mesurer la période radioactive d' un radionucléide consiste à suivre la décroissance de son activité par spectrométrie γ à partir d' une ou plusieurs de ses raies γ. Par le passé, la plupart des mesures étaient réalisées à partir de chambres proportionnelles qui posaient des problèmes de reproductibilité, en raison d' instabilités temporelles du courant. L' utilisation de semi-conducteurs au Ge[HP] permet de palier cet effet et d' aboutir à des incertitudes souvent meilleures que 0.5% **[105]**. Les principaux paramètres de sensibilité sont :

- la méthode de traitement des spectres γ,
- la statistique de comptage,
- la correction électronique du temps mort et son adaptation aux radionucléides à courte durée de vie (variation de l' activité au cours de la mesure).

En effectuant des mesures de surface nette N_i à différents instants t_i, pendant une durée réelle fixe, la constante de décroissance radioactive λ est estimée à partir de la relation **(21)** selon :

$$\ln(N_i C_{\theta,i}) = -\lambda t_i + c \qquad \textbf{(89)}$$

où c est une constante et $C_{\theta,i}$ la correction de temps mort pour la i-ème mesure.

L' incertitude liée au traitement des spectres peut être appréhendée en estimant l' influence de différentes méthodes d' analyse sur λ, en modifiant par exemple le modèle de soustraction du fond continu ou en utilisant différents algorithmes de calcul de la surface nette. Si les méthodes d' analyse sont cohérentes, les régressions réalisées pour chacune d' elles doivent conduire à des constantes de décroissance radioactive compatibles avec les incertitudes d' ajustements.

L' incertitude sur la statistique de comptage est prise en compte dans le processus d' ajustement en appliquant des pondérations w_i égales à l' inverse de la variance associée à la surface nette N_i.

Enfin, la sensibilité de λ à la correction de temps mort peut être évaluée en normalisant chaque surface nette d' intérêt N_i par la surface nette d' un pic de référence $N_{o,i}$ associé à un radionucléide dont l' activité est constante à l' échelle de la mesure (exemple: cobalt 60, yttrium 88, uranium 235). On peut par exemple utiliser une source d' étalonnage dont la position reste au cours de l' expérience.

L' incertitude sur l' estimation de λ doit tenir compte de la qualité de l' ajustement, fonction du nombre de mesures et de la statistique de comptage, et de l' incertitude propagée de la correction de temps mort, soit :

$$\left(\frac{u(\lambda)}{\lambda}\right)^2 = \left(\frac{u(\lambda)}{\lambda}\right)^2_{ajustement} + \left(\frac{C_\theta}{\lambda}\frac{\partial\lambda}{\partial C_\theta}\right)^2 \qquad \textbf{(90)}$$

Lorsque plusieurs mesures λ_k sont réalisées, soit sur un même détecteur, soit sur des détecteurs ayant des caractéristiques semblables, les différents résultats peuvent être combinés par une moyenne pondérée où les poids ς_k s' expriment en fonction de chaque incertitude d' ajustement:

$$\bar{\lambda} = \frac{\sum_k \varsigma_k \lambda_k}{\sum_k \varsigma_k} \text{ avec } \varsigma_k = \frac{1}{\left(\frac{u(\lambda)}{\lambda}\right)^2_{ajustement}} \qquad \textbf{(91)}$$

L' incertitude finale sur la constante de décroissance radioactive moyenne $\bar{\lambda}$ s' écrit alors :

$$\left(\frac{u(\bar{\lambda})}{\bar{\lambda}}\right)^2 = \frac{1}{\sum_k \varsigma_k} + \left(\frac{\overline{C_\theta}}{\lambda}\frac{\partial\lambda}{\partial C_\theta}\right)^2 \qquad \textbf{(92)}$$

4 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES

Du fait de leur facilité de mise en œuvre dans les réacteurs EOLE et MINERVE, les mesures sur dosimètre fissile sont particulièrement bien adaptées pour déterminer des périodes radioactives de produits de fission à vie courte car ils présentent un faible débit de dose[35] après irradiation.

Pour mesurer la décroissance de l' activité γ du strontium 92, deux disques d' uranium enrichis à 93% en uranium 235, d' épaisseur 0.1 mm et de diamètre 5.4 mm, sont utilisés (**Fig. 91**). Ils sont positionnés entre deux cylindres d' aluminium, puis introduits dans un tube hermétiquement fermé par des bouchons collés. L' ensemble est placé dans un canal libre du réacteur MINERVE et amené au niveau du plan médian pour y subir une irradiation dans un flux d' environ 1.6×10^8 $cm^{-2}.s^{-1}$.

[35] Inférieur à 30 $\mu Sv.h^{-1}$ au contact, pour une irradiation de 3 heures à 80 W dans MINERVE et après 2 heures de refroidissement.

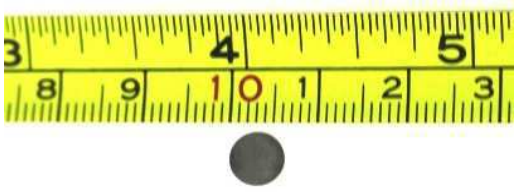

Fig. 91 : dosimètre d' uranium 235

Chaque dosimètre est irradié 2 fois à 3 semaines d' intervalle, puis mesuré sur le banc équipé du détecteur coaxial de 65% d' efficacité relative et sur le banc équipé du détecteur planaire. Les chaînes de mesure sont constituées d' un DSP et d' une carte PCA-8K assurant la fonction d' analyseur multicanaux. Une source de cobalt 60 est positionnée à proximité du dosimètre afin de vérifier simultanément la justesse de la correction de temps mort et afin d' en estimer l' influence sur la mesure de la période radioactive (**Fig. 92**).

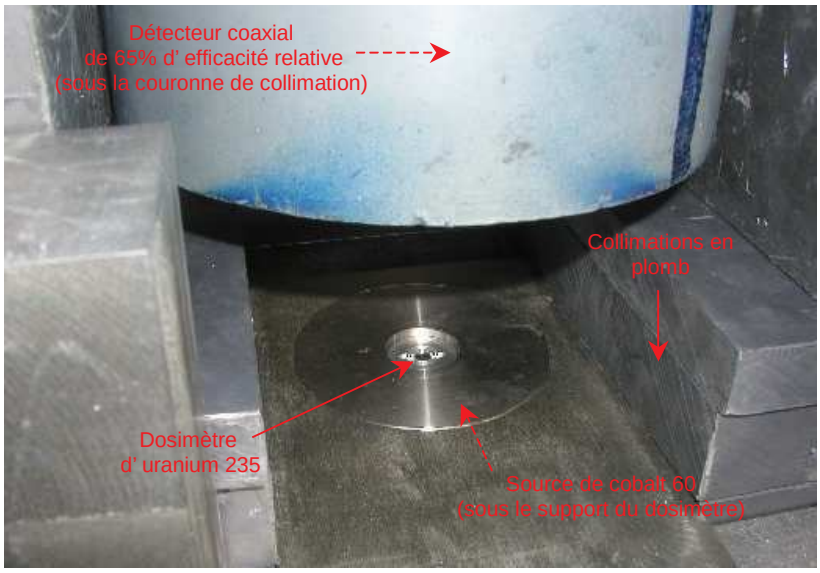

Fig. 92 : banc de spectrométrie γ utilisé pour la mesure des dosimètres irradiés

De 12 à 15 acquisitions successives de durée réelle fixe égale à 2 heures sont réalisées, soit une durée totale cumulée de 9 à 13 périodes radioactives. La mesure débute 2 à 3 heures après la fin de l' irradiation en réacteur afin de s' assurer de l' absence de raies γ perturbatrices dues à des produits de fission à vie très courte (i.e. quelques minutes).

Afin de prendre en compte l' influence de la méthode d' analyse, chaque mesure de la surface nette du pic à 1383.9 keV du strontium 92 est réalisé à partir des trois méthodes suivantes :

- *méthode n°1* : algorithme de sommation, sur une largeur choisie automatiquement par le logiciel, avec soustraction par un modèle linéaire,
- *méthode n°2* : algorithme d' ajustement de singulet, sur une largeur de RI de 4x LTMH, avec soustraction du fond continu par un modèle linéaire,
- *méthode n°3* : algorithme d' ajustement de multiplet, sur une largeur de RI allant de 1330 keV à 1390 keV, avec soustraction par un modèle linéaire, afin d' inclure les pics voisins.

5 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les deux figures suivantes présentent la décroissance temporelle de l' activité du strontium 92 (barres d' incertitude données pour k = 2) et les mesures simultanées des deux raies γ du cobalt 60 permettant de vérifier la justesse de la correction de temps mort :

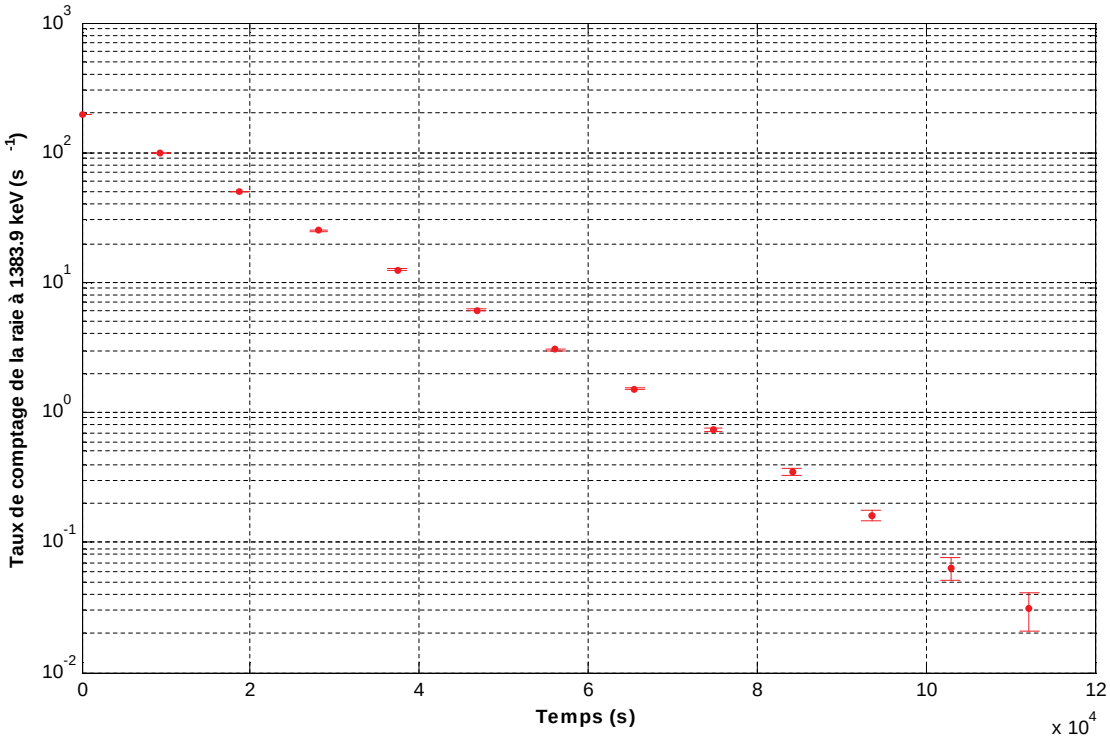

Fig. 93 : décroissance de l' activité du strontium 92 mesurée sur ledétecteur coaxial

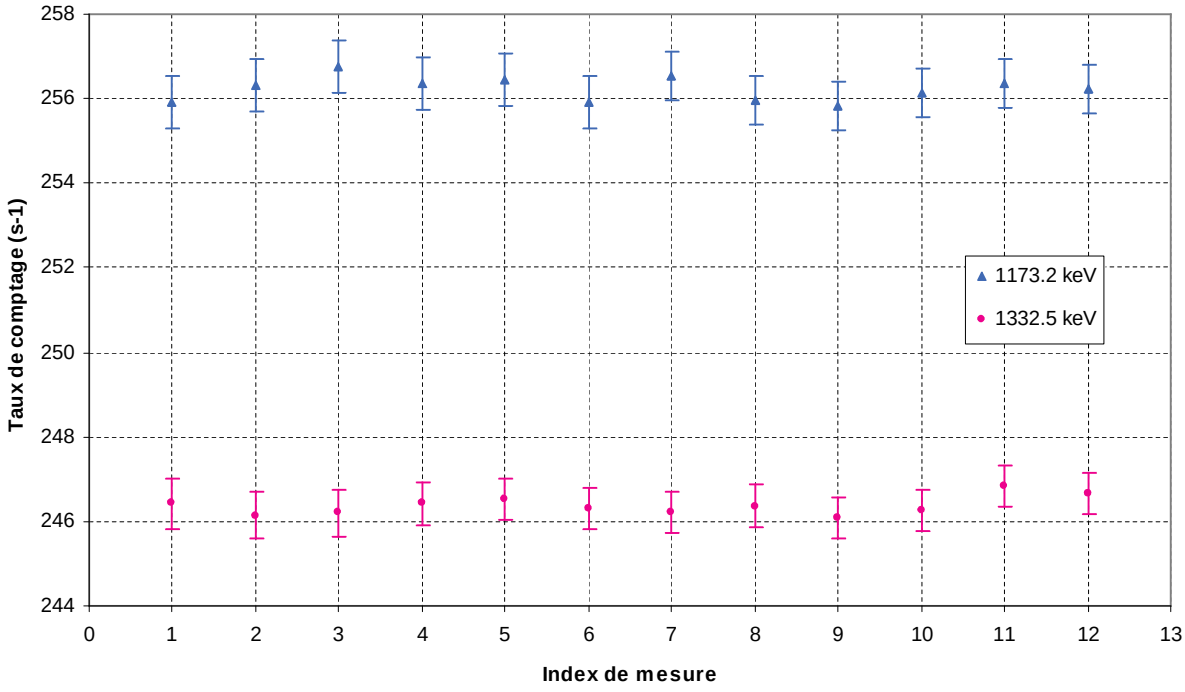

Fig. 94 : reproductibilité de la mesure du taux de comptage du cobalt 60

Conformément aux attentes, on observe une décroissance purement exponentielle du taux de comptage du strontium 92. L'ajustement de l'échantillon de valeurs conduit à $\chi^2 / \nu = 0.999$. Une excellente reproductibilité de la mesure du cobalt 60 est également atteinte avec $\chi^2 / \nu = 0.994$.

En appliquant la méthode décrite dans la section précédente, les résultats suivants sont obtenus pour les deux séries de mesures, réalisées sur les deux détecteurs :

Expérience	Méthode d'analyse	λ_i ($\times 10^{-5}$ s^{-1})	$\left.\frac{u(\lambda)}{\lambda}\right\|_{ajustement}$	$\frac{C_\theta}{\lambda}\frac{\partial\lambda}{\partial C_\theta}$
Dosimètre n°1 Irradiation n°1 Détecteur coaxial	n°1	7.447	0.28%	0.13%
	n°2	7.423	0.35%	
	n°3	7.440	0.26%	
Dosimètre n°2 Irradiation n°1 Détecteur planaire	n°1	7.454	0.38%	0.01%
	n°2	7.417	0.52%	
	n°3	7.452	0.71%	
Dosimètre n°1 Irradiation n°2 Détecteur coaxial	n°1	7.410	0.27%	0.04%
	n°2	7.403	0.14%	
	n°3	7.445	0.44%	
Dosimètre n°2 Irradiation n°2 Détecteur planaire	n°1	7.414	0.44%	0.12%
	n°2	7.398	0.30%	
	n°3	7.400	0.33%	

Tab. 109 : synthèses des mesures de constante de décroissance radioactive du strontium 92

On observe que pour une même expérience, les estimations de la constante de décroissance radioactive du strontium 92 sont cohérentes entre les trois méthodes d'analyse de spectre. En faisant l'hypothèse d'une distribution normale, on peut considérer que les trois estimations d'incertitudes sont compatibles car le moment d'ordre 2 (i.e. incertitude sur l'estimation de l'incertitude) est de 22% pour un échantillon de 3 valeurs. Autrement dit, pour chacune des 4 expériences, la constante de décroissance radioactive retenue est la moyenne arithmétique des 3 estimations, à laquelle on associe la moyenne arithmétique des 3 incertitudes **[94]**.

Ensuite, on combine les 4 résultats de mesure en calculant la moyenne pondérée à laquelle on associe l'écart-type interne de moyenne. On impose une covariance nulle entre chacun des résultats en faisant l'hypothèse d'indépendance des différentes mesures. Au final, on obtient l'estimation suivante de la constante de décroissance radioactive du strontium 92:

$$\lambda = (7.424 \pm 0.014) \times 10^{-5}\ \mathrm{s}^{-1}$$

soit la période :

$$T_{1/2} = 2.594 \pm 0.005\ \mathrm{h}$$

Cette valeur est 4.5% plus petite que la valeur adoptée dans les différentes bibliothèques de données nucléaires ($T_{1/2} = 2.71 \pm 0.01$ h) et inférieure de 1% à celle obtenue par la mesure de Y. Nir-El en 2003 ($T_{1/2} = 2.627 \pm 0.009$ h). La pertinence de cette nouvelle évaluation va maintenant être discutée en s'appuyant sur les mesures de taux de fission des parties III et IV qui font intervenir le strontium 92.

6 RETOUR SUR EXPERIENCE AVEC L' EVALUATION OBTENUE

6.1 Mesure de recalage de taux de fission UMoAl / U3

En reprenant les résultats expérimentaux présentés au chapitre 1 de la partie III concernant le facteur de recalage $r_{F,3}$ (**Tab. 31**) et en utilisant l' évaluation déterminée dans la section précédente de la période radioactive du strontium 92, les résultats suivants sont alors obtenus :

		$T_{1/2}$ = 2.71 ± 0.01 h		$T_{1/2}$ = 2.594 ± 0.005 h	
Produit de fission	Raie γ	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$	$r_{F,3}$	$\frac{u(r_{F,3})}{r_{F,3}}$
yttrium 91m	555.6 keV	2.500	0.54%	2.500	0.54%
strontium 92	**1383.9 keV**	**2.426**	**0.99%**	**2.449**	**0.99%**
iode 132	954.6 keV	2.472	0.90%	2.472	0.90%
	1398.6 keV	2.515	1.73%	2.515	1.73%
iode 133	1236.4 keV	2.434	1.65%	2.434	1.65%
iode 135	1260.4 keV	2.474	0.55%	2.474	0.55%
	1678.0 keV	2.486	0.84%	2.486	0.84%
	1706.5 keV	2.482	0.95%	2.482	0.95%
	1791.2 keV	2.475	0.82%	2.475	0.82%
lanthane 140	1596.2 keV	2.487	0.65%	2.487	0.65%
cérium 143	293.3 keV	2.503	1.15%	2.503	1.15%

Tab. 110 : influence de la période radioactive du strontium 92 sur le recalage de taux de fission (campagne de mesures B, détecteur n°4)

On observe une meilleure cohérence avec les autres produits de fission grâce à la modification de cette donnée nucléaire. Sur l' échantillon total des facteursde recalage mesurés, le χ^2 / ν se trouve alors diminué de 2.51 à 2.06.

Si ces différents résultats tendent à prouver que la nouvelle évaluation est plus pertinente que l' ancienne, l' influence sur cette mesure reste relativement faible (< 1%) car la durée t qui sépare les comptages des crayons combustibles UMoAl et U3 est telle que $\lambda t \cong 0.12$, ce qui réduit l' erreur propagée de la constante de décroissance radioactive sur $r_{F,3}$ d' après la relation **(45)**.

6.2 Mesure d' indice de capture des échantillons Pu242 et Th232

Contrairement au cas précédent, la mesure d' indice de capture surl' échantillon Pu242 fait intervenir une durée totale cumulée de mesure t telle que $\lambda t \cong 6$. De ce fait, l' existence d' une erreur ε sur la période radioactive se traduit par un écart proche de 6ε entre la mesure initiale et la mesure finale de l' activité du strontium 92 (**Tab. 61**). L' utilisation de la nouvelle évaluation permet alors d' aboutir à une meilleure cohérence sur les différentes mesures d' activité, comme le montre le tableau suivant :

	$T_{1/2}$ = 2.71 ± 0.01 h		$T_{1/2}$ = 2.594 ± 0.005 h	
Indice de la mesure	$n_{sat}(E)$	$\frac{u(n_{sat}(E))}{n_{sat}(E)}$	$n_{sat}(E)$	$\frac{u(n_{sat}(E))}{n_{sat}(E)}$
M1	**114.0**	**0.31%**	**114.6**	**0.31%**
M2	107.8	0.67%	114.0	0.55%
M3	104.4	1.15%	115.5	0.92%
M4	99.56	1.82%	115.3	1.52%
M5	**94.22**	**2.87%**	**114.3**	**2.55%**

Tab. 111 : influence de la période radioactive sur la reproductibilité de mesure du strontium 92 (échantillon Pu242)

Sur la série des 6 mesurages, le χ^2 / ν se trouve réduit de 29.7 à 0.894 avec l' évaluation proposée de la période radioactive. Une meilleure cohérence est alors obtenue entre le strontium 92 et les autres produits de fission utilisés pour la mesure du taux de fission :

	$T_{1/2}$ = 2.71 ± 0.01 h		$T_{1/2}$ = 2.594 ± 0.005 h	
Produit de fission	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$
yttrium 91m	1.046	5.94%	1.024	5.94%
strontium 92	**0.967**	**3.40%**	**0.974**	**3.40%**
iode 135	1.050	4.90%	1.028	4.90%
cérium 143	1.031	3.40%	1.009	3.40%

Tab. 112 : influence de la période radioactive du strontium 92 sur la mesure du taux de fission (échantillon Pu242)

En raisonnant de la même manière pour l' échantillon Th232, où le tauxde fission provient à 100% au thorium 232, une tendance similaire est observée à partir des 5 produits de fission analysés :

	$T_{1/2}$ = 2.71 ± 0.01 h		$T_{1/2}$ = 2.594 ± 0.005 h	
Produit de fission	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$	$F_i / \overline{F}$	$\frac{u(F_i)}{F_i}$
yttrium 91m	0.992	19.35%	0.981	19.35%
strontium 92	**0.912**	**4.10%**	**0.930**	**4.44%**
lanthane 140	1.075	5.94%	1.064	5.94%
iode 135	1.046	3.40%	1.035	3.40%
cérium 143	0.981	4.90%	0.970	4.90%

Tab. 113 : influence de la période radioactive du strontium 92 sur la mesure du taux de fission (échantillon Th232)

Pour les mesures d' indice de capture, la modification de la période radioactive du strontium 92 conduit donc à une augmentation de 3% du terme de fission dans le cas des échantillons Pu242 et Th232.

7 CONCLUSION

Dans ce chapitre ont été mis en avant des besoins d'amélioration de la connaissance de la période radioactive du strontium 92, produit de fission couramment utilisé pour les expériences réalisées dans EOLE et MINERVE. La synthèse réalisée en 2003 dans la bibliothèque ENSDF insiste sur l'incohérence des deux principales mesures réalisées parle passé (1971 et 2003) et confirme la nécessité d'entreprendre un programme d'étude sur ce radionucléide.

Répondant à ce besoin, des mesures spécifiques sur dosimètre fissile d'uranium 235 ont été développées pour réévaluer cette donnée nucléaire. Grâce aux progrès réalisés sur l'instrumentation et en particulier sur l'optimisation de la correction de tempsmort, une **erreur systématique de 4.5% sur l'évaluation JEFF3.1** a pu être identifié et une nouvelle estimation a été proposée, avec une **incertitude réduite d'un facteur 2**, à partir de 4 séries de mesure :

$$\boldsymbol{T_{1/2} = 2.594 \pm 0.005\ h}$$

L'influence de cette nouvelle évaluation sur les **mesures de recalage de taux de fission** présentées dans la partie III est **de l'ordre de 1%** Pour les **mesures d'indice de capture** des échantillons Pu242 et Th232, cette modification induit une **correction de l'ordre de 3%** Pour ces deux types d'étude, les résultats obtenus à partir du strontium 92 vont dans le sens d'une meilleure cohérence avec les autres produits de fission analysés, ce qui tend à valider l'évaluation proposée.

Pour progresser davantage sur la connaissance de cette période radioactive, il conviendrait de mettre en œuvre une technique de séparation radiochimique des isotopes du strontium après irradiation des dosimètres d'uranium. Elle permettrait de diminuer le temps mort lié à l'activité des autres produits de fission à vie courte tout en réduisant la hauteur du fond, autorisant ainsi la mesure d'autres raies γ du strontium 92 aux énergies de 241.5 keV, 953.3 keV et 1142.3 keV. L'échantillon pourrait également être rapproché du détecteur afin d'accroître la statistique de comptage et d'allonger la durée totale cumulée des mesures (jusqu'à 15 fois la période radioactive).

CHAPITRE 2 :
ETUDE DES RENDEMENTS DE FISSION DE L' URANIUM 235

1 INTRODUCTION

La plupart des mesures par spectrométrie γ réalisées pour les besoins des maquettes critiques - recalage de taux de fission, indices de capture, rapports cadmium – font intervenir les rendements de fission de l' uranium 235 qui permettent de remonter au taux de fission total à partir de l' activité d' un radionucléide donné. Au cours des études présentées dans la partie IV, des tendances ont été mises en évidence pour certains produits de fission, notamment lors d' expériences réalisées sur des échantillons faiblement enrichis en uranium 235 ou irradiés sous enveloppe cadmium (cas de l' iode 135). Cependant, comme les combustibles étudiés font intervenir au moins deux isotopes fissionnables (uranium 235 et 238), il n' est pas évident de découpler les effets dus à chacun.

Des mesures ont donc été développées au cours de la thèse afin d' isoler la contribution de l' uranium 235 seul, au moyen de dosimètres enrichis à 93%. Elles répondent aux objectifs suivants :

- s' assurer de la cohérence des évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 des rendements de fission de l' uranium 235 en spectre thermique et ainsi découpler les effets potentiels dus à l' uranium 238,
- vérifier la cohérence de la méthode de calcul des rendements effectifs de fission avec une coupure *thermal* / *fast* imposée à 9.118 keV, ce qui revient à supposer la distribution en masse des produits de fission indépendante de l' énergie des neutrons de 10^3 à 10^4 eV **[143]**.

Après quelques rappels préliminaires sur les modèles théoriques décrivant le processus de fission et la forme de la courbe de rendement en fonction du nombre de masse, la mise en œuvre des mesures sera explicitée et la synthèse des résultats expérimentaux présentée. In fine, on conclura sur la qualification des évaluations de rendements de fission de l' uranium 235 pour plusieurs produits de fission et pour les bibliothèques de données nucléaires JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 ainsi que sur les fluctuations observées pour certains d' entre eux entre des spectres neutroniques à forte composante thermique et épithermique.

2 DISTRIBUTION EN MASSE DES RENDEMENTS DE FISSION

Le processus de fission peut être décrit, de façon simplifiée, par une succession de déformations du noyau composé (i.e. $^{235}U + n$ dans le cas présent) qui aboutissent à sa scission en deux fragments, chacun étant caractérisé par sa masse et son énergie cinétique. Depuis les années 1950, l' une des interrogations récurrentes à laquelle les physiciens tentent de répondre est : comment et à quel instant du processus de fission sont déterminées les caractéristiques des deux fragments ? Par le passé, de nombreux travaux ont été menés pour tenter de prédire la distribution en masse des fragments de fission, mais l' accord avec l' expérience n' a pas donné satisfaction **[144]**.

Le concept de multi-modalité, imaginé dès 1950, a été formalisé en 1990 afin d'expliquer une partie du processus de fission, pour tous les actinides, de l'astate (Z = 85) jusqu'au fermium (Z = 100). Le modèle développé, appelé MM-RNR (*Multi-ModalRandom-Neck Rupture*), apporte une prédiction quantitative de la distribution en masse et de l'énergie cinétique totale des fragments de fission **[145]**, à partir de trois modes de fission, chacun étant associé à une « forme » spécifique du noyau composé et donc à une barrière de potentiel différente :

- les modes asymétriques standard I (SI) et standard II (SII),
- le mode symétrique superlong (SL).

Pour chacun d'eux, la probabilité d'apparition d'un fragment de fission peut être décrite par une gaussienne, fonction du nombre de masse *A* et de l'énergie cinétique totale du système. En notant respectivement A_i, w_i et σ_i les positions, les hauteurs et les largeurs à mi-hauteur des trois gaussiennes, la distribution des rendements de fission peut être ajustée par la fonction suivante :

$$Y(A) = \sum_{i=1}^{3} \frac{w_i}{\sqrt{2\pi}\,\sigma_i} \left[e^{-(A-A_i)^2/2\sigma_i^2} + e^{-(A-(236-A_i))^2/2\sigma_i^2} \right] \qquad \begin{matrix} 1 = \text{SI} \\ 2 = \text{SII} \\ 3 = \text{SL} \end{matrix} \qquad \textbf{(93)}$$

La forme et la contribution relative de chaque gaussienne est illustrée ci-dessous (**Fig. 95**). On note en particulier que pour l'uranium 235, le profil mesuré estcohérent avec la distribution déduite du modèle MM-RNR **[146]**, sur une large gamme de nombre de masse.

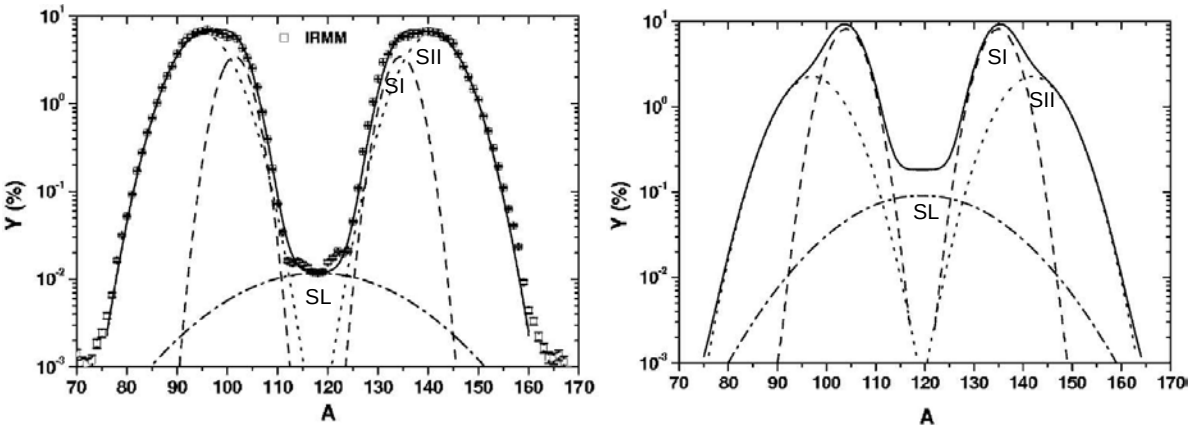

Fig. 95 : calcul des distributions en masse des fragments de fission de l'uranium 235 pour des neutrons thermiques (*à gauche*) et de l'uranium 238 pour des neutrons de 0.9 MeV (*à droite*)

Différentes études théoriques et expérimentales ont permis d'établir l'influence sur chaque mode, de l'énergie des neutrons induisant la fission. En particulier, dans le domaine épithermique, des fluctuations du rapport w_1 / w_2 pouvant atteindre 20%, ont été observées aux énergies de résonance de la section efficace de fission, par rapport à l'énergie thermique **[147]**.

Or, dans l'approche habituellement utilisée pour estimer le rendement effectif de fission, on fait implicitement l'hypothèse d'une invariance des rendements de fission avec l'énergie des neutrons dans chacun des trois groupes (approche de type histogramme). Jusqu'à maintenant, les évaluations de rendement de fission en spectre thermique et rapide ont suffit à prédire la formation des produits de fission des réacteurs de type REP ou RNR. En revanche, avec le développement de nouvelles filières de réacteur (RCG, HTR) impliquant des spectres à forte composante épithermiques, il est probable que l'approche habituelle nécessite certains ajustement pour mieux rendre compte de l'évolution du combustible.

De ce fait, les mesures développées au cours de la thèse, destinées à comparer les distributions en masse des produits de fission créés dans des spectres à forte composante épithermiques et thermiques, participent à améliorer la connaissance de la dépendance énergétique des rendements de fission.

3 PRESENTATION DES MESURES EFFECTUEES

L' étude est réalisée à partir d' un dosimètre enrichi à 93% en uranium 235, identique à celui utilisé pour la mesure de la période radioactive du strontium 92 (**Fig. 91**). Elle comporte deux étapes qui répondent aux besoins suivants :

- la qualification des évaluations de rendements de fission de l' uranium 235 en spectre thermique, pour les produits de fission usuellement étudiés sur EOLE et MINERVE,
- la validation de la méthode de calcul des rendements effectifs de fission dans des spectres à forte composante épithermique.

Pour la première étape, le dosimètre est conditionné entre deux rondins d' aluminium de haute pureté (> 99.9%), fabriqués spécifiquement pour limiter leur perturbation sur le spectre neutronique. L' ensemble est ensuite introduit dans un conteneur constitué du mêmematériau, lequel est translaté jusqu' au plan médian du cœur, dans un canal thermalisé du réacteur MINERVE ($R_{cd}(^{197}\mathrm{Au}) \cong 3$ **[39]**).

Le dosimètre est irradié à une puissance de 80 W pendant une durée de 2.5 heures environ. Il est déchargé du réacteur 2 heures après la chute des barres de sécurité, puis placé à 100 mm environ du détecteur au Ge[HP] de 65% d' efficacité relative, équipé dela chaîne numérique DSP 2060. Une série de 19 mesurages de durée cumulée égale à 64 heures, est réalisée afin d' estimer le taux de fission total du dosimètre à partir de tous les produits de fission suivants :

Produit de fission	Type de filiation	Période radioactive fils / père **[23]**	Raie γ étudiée
rubidium 88	ordre 2	17.8 min / 2.84 j	1836.0 keV
yttrium 91m	ordre 2	49.7 min / 9.52 h	555.6 keV
strontium 92	ordre 1	2.594 h [36]	1383.9 keV
ruthénium 103	ordre 1	39.3 j	497.1 keV
iode 131	ordre 1	8.02 j	364.5 keV
iode 132	ordre 2	2.30 j / 3.20 j	522.7 keV 630.2 keV 954.6 keV
iode 133	ordre 2	20.8 h / 12.5 min	1236.4 keV
iode 135	ordre 1	6.61 h	1260.4 keV 1678.0 keV 1706.5 keV
lanthane 140	ordre 2	1.38 j / 12.8 j	487.0 keV 1596.2 keV
cérium 143	ordre 2	33.0 h / 14.1 min	293.3 keV

Tab. 114 : produits de fission étudiés pour la mesure du taux de fission

[36] Pour les mesures qui suivent, on utilisera la période radioactive déterminée au chapitre précédente.

Par rapport aux mesures réalisées sur échantillon ou crayon combustible, l' utilisation d' un dosimètre permet de réduire les corrections de transfert de rendement, du fait de sa faible épaisseur (environ 100 µm). Par ailleurs, compte tenu de sa teneur en uranium 235 (93%) et du spectre neutronique dans lequel il est irradié (cf. **Fig. 98**), le rendement effectif de fission est directement représentatif de la donnée nucléaire reportée dans les bibliothèques. Enfin, grâce à la réalisation de mesures de longue durée (≅ 3 h), la réduction de l' incertitude de comptage devant celle quiaffecte la probabilité d' émissionγ et le rendement de fission permet de dégager plus facilement des tendances sur la pertinence des évaluations, en observant la dispersion des résultats autour de la moyenne.

Pour la seconde étape, l' expérience est reprise à l' identique après avoir enveloppé le dosimètre d' une capsule de cadmium d' épaisseur 0.5 mm qui permet d' absorber les neutrons d' énergie inférieure à 0.5 eV. L' ensemble est irradié à une puissance de 80 W pendantune durée de 3 heures environ, déchargé après 2 heures de refroidissement, puis mesuré à 16 reprises sur une durée totale cumulée de 135 heures. Pour les mêmes produits de fission que décrits précédemment, le taux de fission total du dosimètre est mesuré, afin de déduire le rapport cadmium de fission R_{cd}, défini par :

$$R_{cd} = \frac{\dfrac{n_{sat}(E_o)\big|_{sans\ \ cd}}{n_{sat}(E_o)\big|_{avec\ \ cd}}}{\dfrac{T(E_o)\big|_{sans\ \ cd}}{T(E_o)\big|_{avec\ \ cd}} \dfrac{Y\big|_{sans\ \ cd}}{Y\big|_{avec\ \ cd}}} \qquad \textbf{(94)}$$

Par la suite, les trois rapports qui interviennent dans cette expression seront notés $r_{n_{sat}}$, r_T et r_Y , par cohérence avec les mesures de recalage de taux de fission.

4 SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

4.1 Taux de comptage à saturation

Un exemple de spectre γ, enregistré 2 heures après l' arrêt du réacteur et pendantune durée de 9350 secondes, est donné ci-dessous :

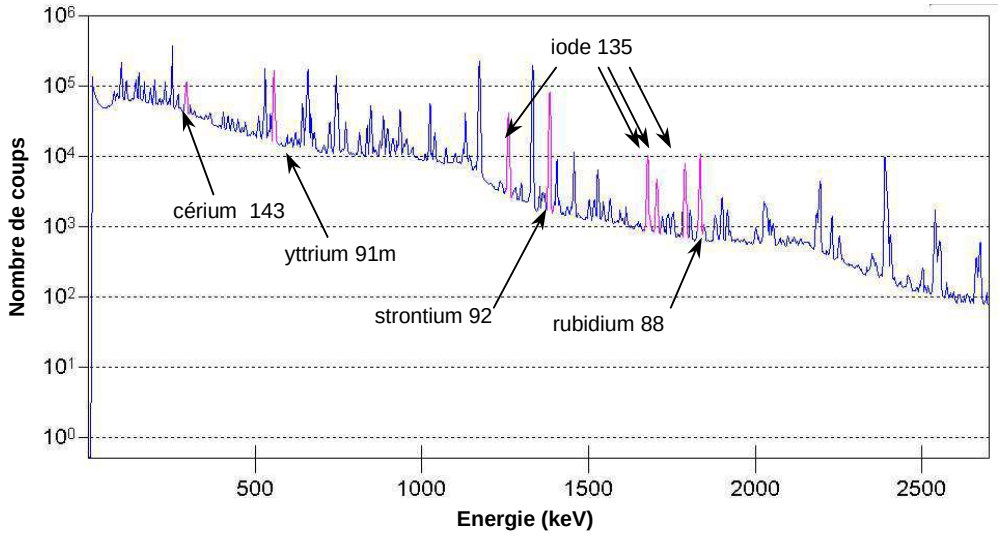

Fig. 96 : spectre γ de dosimètre uranium 235 obtenu 2 heures après irradiation

L' analyse des 35 spectres obtenus est réalisée à partir de GENIE 2000, en s' appuyant sur les recommandations formulées dans le chapitre 1 de la partie II et après avoir vérifié l' absence de raies γ perturbatrices à une énergie telle que le pic associé ne puisse être discriminé.

Les différentes corrections appliquées à la mesure de la surface nette sont ensuite calculées, selon les méthodes décrites au chapitre 2 de la partie II. Pour la prise en compte du phénomène de coïncidences vraies, qui représente le principal effet limitatif de l' expérience, le logiciel ETNA fournit les facteurs correctifs suivants (**Tab. 115**) :

Produit de fission	Raie γ étudiée	$C_{coinc}(E)$
rubidium 88	1836.0 keV	1.025
strontium 92	1383.9 keV	0.9989
iode 135	1260.4 keV	1.007
	1678.0 keV	0.985
	1706.5 keV	1.005
lanthane 140	487.0 keV	1.047
	1596.2 keV	1.037

Tab. 115 : corrections de coïncidences vraies calculées pour un dosimètre placé à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d' efficacité relative

Ce tableau montre que l' approche utilisée par le passé, où les corrections étaient négligées, pouvait conduire à des erreurs systématiques allant jusqu' à 5% sur la mesure du taux de fission.

Dans le cas du tellure 132 et du cérium 143, les schémas des niveaux énergétiques sont manquants dans les bibliothèques de données nucléaires. Les facteurs de correction ne peuvent donc être établis par ETNA. On peut toutefois les négliger en remarquant que ces trois radionucléides présentent des schémas à peu de niveaux et que les raies γ étudiées sont les plus intenses. Par précaution, une incertitude enveloppe de 0.5% a tout de même été ajoutée aux résultats de mesure.

En revanche, pour l' iode 131, 132 et 133, la complexité des schémas des niveaux énergétiques est telle qu' on ne peut négliger les corrections de coïncidences vraies. Puisqu' à l' heure actuelle, il n' est pas possible de les estimer avec ETNA, les résultats de mesure n' ont donc été utilisées que pour établir le rapport cadmium de fission où ces corrections n' interviennent plus car elles apparaissent à l' identique au numérateur et au dénominateur de l' expression (**94**).

Compte tenu du volume de données que constitue l' ensemble des résultats de mesure de taux de comptage à saturation, seuls les tableaux de synthèse finaux des indices de capture seront donnés dans ce mémoire.

4.2 Rendements d' absorption totale

A partir de la courbe d' étalonnage établie au chapitre 2 de la partie II (**Fig. 52**), on déduit les rendements d' absorption totale (sous-entendus « absolus ») pour toutes les raies γ étudiées. L' incertitude est estimée à partir du calcul de propagation des variances présenté au chapitre 3 de la partie II, en tenant compte de la matrice de variance des données et en estimant l' influence du modèle mathématique retenu pour représenter la loi $R^P(E)$. Le tableau suivant présente quelques exemples de rendements d' absorption totale obtenus (la synthèse complète est reportée en **Annexe D**) :

E	$R^P(E)$ ($\times 10^{-2}$)	$\left.\frac{u(R^P(E))}{R^P(E)}\right\|_{total}$	s_{mod}
228.2	1.669	0.70%	0.43%
364.5	1.244	0.50%	0.10%
555.6	0.9417	0.55%	0.25%
954.5	0.6678	0.48%	0.08%
1383.9	0.5240	0.52%	0.14%
1596.2	0.4747	0.74%	0.54%
1836.0	0.4291	0.63%	0.13%

Tab. 116 : rendements d'absorption totale absolus pour une source ponctuelle placée à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative

La méthodologie de propagation des incertitudes développée dans les chapitres 2 et 3 de la partie II, permet une réduction d'un facteur 5 de l'incertitude sur le rendement d'absorption totale par rapport à l'approche enveloppe utilisée par le passé **[39]**. En particulier, la prise en compte des covariances entre plusieurs raies γ émises par un même étalon permet d'atteindre des incertitudes légèrement inférieures à celles qui caractérisent l'activité des sources étalons utilisées pour établir la courbe d'étalonnage (de 0.75 à 1.5%).

4.3 Transferts de rendement

Contrairement aux mesures réalisées sur crayon ou échantillon combustible, le dosimètre s'avère peu sensible au phénomène d'autoabsorption γ du fait de sa faible épaisseur (environ 100 µm).

Tout d'abord, on peut montrer que l'absence de prise de l'autoprotection neutronique est négligeable sur l'évaluation de $T(E)$. Pour cela, un calcul neutronique à deux niveaux dimensionnels est réalisé (**Fig. 97**). Dans un premier temps, on estime le flux neutronique à l'intérieur du canal d'irradiation, à partir du schéma de calcul décrivant la géométrie réelle du réacteur (**Fig. 98**). Dans un second temps, on décrit seulement la géométrie du dosimètre et du support d'irradiation, et on suppose un flux d'irradiation isotrope, distribué en énergie selon le spectre déduit du premier calcul.

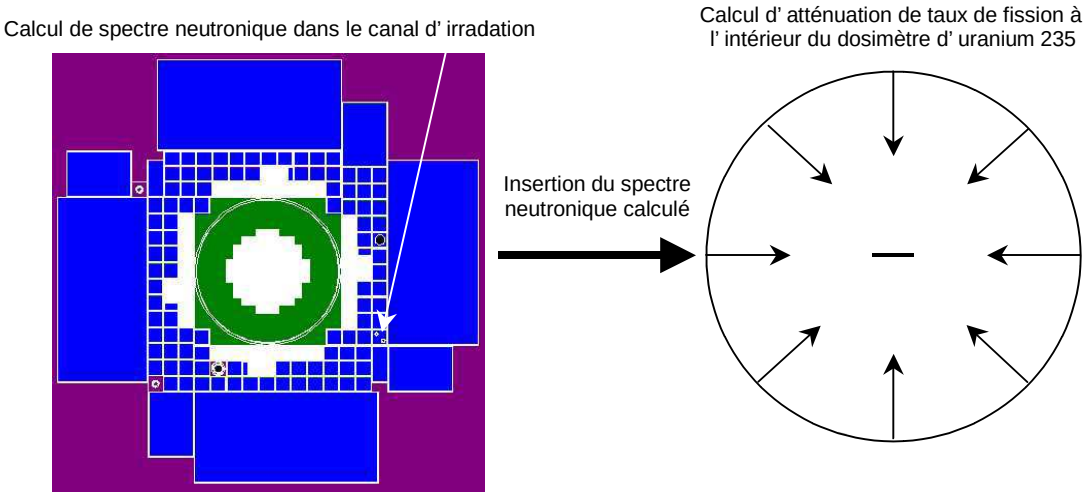

Fig. 97 : calcul de l'autoprotection du dosimètre par une approche à deux niveaux dimensionnels

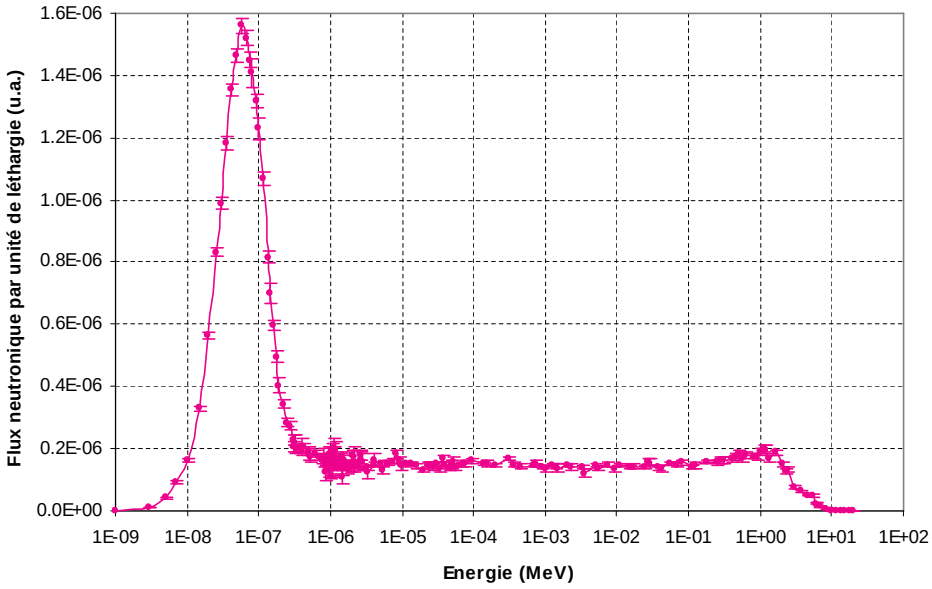

Fig. 98 : spectre de flux neutronique à 172 groupes d' énergie calculé dans le canal d' irradiation (MCNP4C2+JEFF3.1)

A partir d' un maillage spatial à 10 groupes radiaux et axiaux isovolumiques, on estime à 1% l' atténuation du taux de fission total entre la périphérie et le centre du dosimètre. En assimilant le parcours x des photons à l' intérieur du disque à une loi d' atténuation de type $exp(-\mu x)$, où μ est le coefficient linéique d' atténuation, on montre que pour des photons d' énergie supérieure à 200 keV, l' erreur commise, en utilisant une distribution homogène des sources de photons, est inférieure à 0.1%.

La principale conclusion qui en découle est l' égalité des transferts de rendement calculés pour un dosimètre irradié avec et sans cadmium, pour la même énergie E. L' expression **(94)** devient alors :

$$R_{cd} = \frac{r_{n_{sat}}}{r_Y} = \frac{\dfrac{n_{sat}(E_o)\big|_{sans\ cd}}{n_{sat}(E_o)\big|_{avec\ cd}}}{\dfrac{Y\big|_{sans\ cd}}{Y\big|_{avec\ cd}}} \qquad \textbf{(95)}$$

Le calcul des transferts de rendement $T(E)$ pour toutes les énergies étudiées est réalisé à partir du schéma de calcul MCNP4C2 décrit dans le chapitre 2 de la partie II (section §5.3). Le tableau suivant présente quelques exemples de valeurs obtenues :

E (keV)	$T(E)$	$\dfrac{u(T(E))}{T(E)}\Big\vert_{total}$
228.2	0.917	0.08%
293.3	0.952	0.08%
364.5	0.969	0.08%
487.0	0.982	0.10%
630.2	0.988	0.11%
954.6	0.993	0.13%
1383.9	0.997	0.14%

Tab. 117 : transferts de rendement pour un dosimètre placé à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d' efficacité relative

Ce tableau indique que la correction liée au phénomène d'autoabsorption γ est inférieure à 8% pour toute énergie E supérieure à 228 keV. A noter que compte tenu de la similitude entre la géométrie des sources étalons et celle des dosimètres, l'angle d'incidence des photons sur le détecteur est pratiquement identique entre l'étalonnage et la mesure d'intérêt. Un calcul d'atténuation à l'aide d'une loi d'atténuation de type $exp(-\mu x)$ aurait donc permis d'obtenir les mêmes résultats.

4.4 Rendements effectifs de fission

L'estimation des rendements effectifs de fission des différents produits de fission étudiés est effectuée en négligeant la contribution de l'uranium 238 au taux de fission total (< 0.01%). Pour tenir compte de la probabilité de fission de l'uranium 235 dans les 3 groupes d'énergie, on utilise une approche à deux niveaux dimensionnels (cf §4.3) où l'on estime le spectre de taux de fission à l'intérieur du dosimètre, pour les deux configurations d'irradiation (**Fig. 99**) :

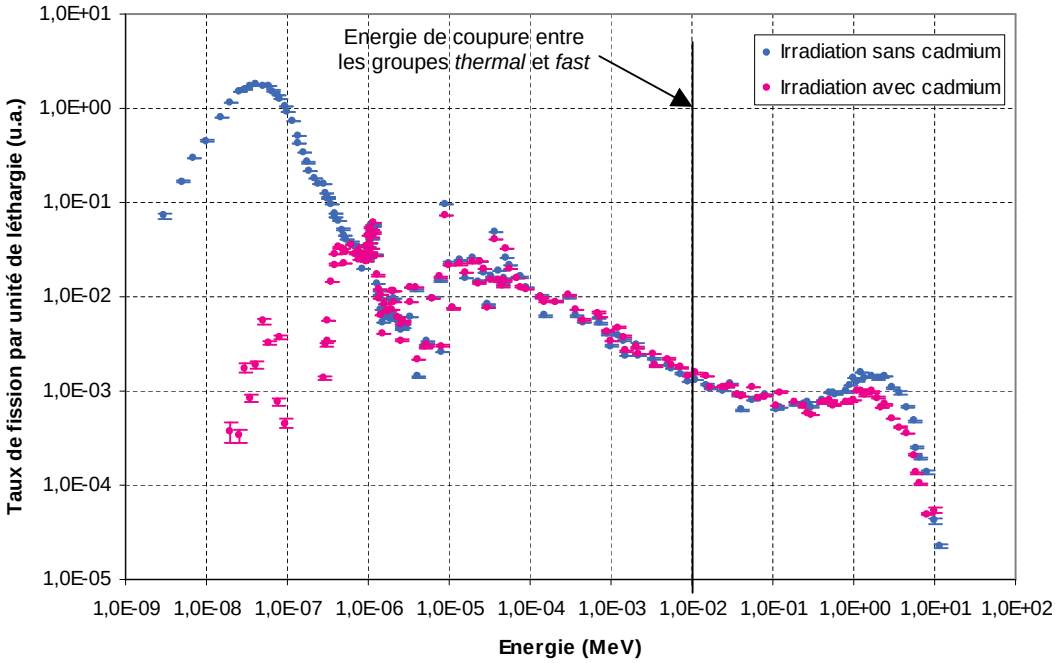

Fig. 99 : spectre de taux de fission à 172 groupes d'énergie calculé dans le dosimètre (MCNP4C2+JEFF3.1)

La figure ci-dessus, qui illustre la distribution de taux de fission de l'uranium 235 par groupe d'énergie, montre la réduction d'un facteur 1000 de la composante thermique du spectre (E < 0.5 eV) pour l'irradiation réalisée sous enveloppe en cadmium. On observe également que la probabilité de fission de l'uranium 235 pour des neutrons d'énergie supérieure à 10 keV, est faible dans les deux cas de figure, comme le confirme le tableau de synthèse ci-dessous :

Irradiation	*Thermal* [1 eV ; 9.118 keV]	*Fast* [9.118 keV ; 10 MeV]	*High* [10 MeV ; 19.6 MeV]
sans cadmium	99.85%	0.15%	< 0.01%
avec cadmium	97.51%	2.49%	< 0.01%

Tab. 118 : probabilités de fission de l'uranium 235 par groupe d'énergie

A titre d'exemple, on reporte ci-dessous les rendements effectifs de fission calculés à partir de la bibliothèque JEFF3.1:

Produit de fission	$Y\|_{sans\ cd}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(Y\|_{sans\ cd})}{Y\|_{sans\ cd}}$	$Y\|_{avec\ cd}$ ($\times 10^{-2}$)	$\frac{u(Y\|_{avec\ cd})}{Y\|_{avec\ cd}}$	r_Y	$\frac{u(r_Y)}{r_Y}$
rubidium 88	3.538	1.78%	3.543	1.93%	0.9987	0.23%
yttrium 91m	3.440	5.08%	3.433	5.09%	1.0021	0.07%
strontium 92	6.034	1.10%	6.029	1.14%	1.0008	0.09%
ruthénium 103	3.104	2.70%	3.108	2.66%	0.9987	0.10%
iode 131	2.879	1.10%	2.892	1.12%	0.9957	0.08%
tellure 132	4.276	1.00%	4.286	1.01%	0.9978	0.07%
iode 133	6.595	1.60%	6.595	1.61%	1.0000	0.09%
iode 135	6.385	3.43%	6.375	3.42%	1.0015	0.15%
lanthane 140	6.314	1.50%	6.304	1.48%	1.0015	0.05%
cérium 143	5.953	1.40%	5.942	1.39%	1.0019	0.06%

Tab. 119 : synthèse des rendements effectifs de fission (données JEFF3.1)

On remarque que le rapport des rendements effectifs de fission entre les deux irradiations (avec et sans cadmium) est nécessairement proche de l'unité, compte tenu du découpage en énergie imposé pour le calcul des probabilités de fission par isotope. Dans les deux cas, le rendement effectif de fission est en effet dominé par la donnée relative à l'uranium 235, évaluée en spectre thermique. De ce fait, le numérateur et le dénominateur du rapport r_Y sont fortement corrélés et l'incertitude associée est nettement plus faible (au moins d'un facteur 10) que celle qui affecte les données nucléaires utilisées.

L'une des principales conséquences de ce résultat est la quasi-indépendance du rapport cadmium de fission en fonction de la bibliothèque choisie. Autrement dit, si la méthode de calcul des rendements effectifs de fission est pertinente pour un spectre à forte composante épithermique, tous les rapports cadmium mesurés doivent être cohérents à l'incertitude de comptage près. On se propose de le vérifier dans la section §5 de ce chapitre.

4.5 Synthèse des taux de fission

La synthèse des résultats de mesure de taux de fission sur le dosimètre d'uranium 235, irradié dans le canal dédié de MINERVE sans enveloppe cadmium, est présenté ci-après (**Tab. 120**). La dernière colonne du tableau représente la composante « expérimentale » de l'incertitude, incluant la statistique de comptage et l'incertitude sur l'étalonnage en rendement d'absorption totale.

A noter que pour les besoins de l'interprétation qui sera présentée dans la section §5 suivante, des évaluations communes issues de JEFF3.1 ont été utilisées pour les probabilités d'émission γ afin d'isoler les effets liés uniquement aux rendements de fission. Cette bibliothèque a été choisie car elle contient à ce jour, les évaluations les plus récentes et les mieux maîtrisées en terme d'incertitude pour la plupart des radionucléides étudiés.

		JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1		
Produit de fission	Raie γ étudiée	F ($\times 10^6$ s^{-1})	$\frac{u(F)}{F}$	F ($\times 10^6$ s^{-1})	$\frac{u(F)}{F}$	$\frac{u(F)}{F}$	F ($\times 10^6$ s^{-1})	$\left.\frac{u(F)}{F}\right\|_{exp}$
rubidium 88	1836.0 keV	3.888	9.74%	3.803	4.74%	3.817	4.65%	1.05%
yttrium 91m	555.6 keV	4.451	100%	3.870	7.00%	3.803	5.13%	0.57%
strontium 92	1383.9 keV	3.637	5.50%	3.667	1.66%	3.608	1.41%	0.52%
ruthénium 103	497.1 keV	3.769	7.72%	3.760	2.04%	3.672	3.08%	0.60%
tellure 132	228.2 keV	3.853	4.27%	3.811	4.27%	3.828	4.15%	0.78%
iode 135	1260.4 keV	3.775	4.38%	3.795	3.54%	3.734	4.73%	0.53%
	1678.0 keV	3.774	4.85%	3.794	4.12%	3.733	5.17%	0.79%
	1706.5 keV	3.781	5.21%	3.801	4.53%	3.740	5.51%	0.90%
lanthane 140	487.0 keV	3.831	1.58%	3.868	1.44%	3.807	1.82%	0.55%
	1596.2 keV	3.789	1.45%	3.826	1.30%	3.766	1.71%	0.78%
cérium 143	293.3 keV	3.792	7.41%	3.785	1.84%	3.787	1.84%	0.58%

Tab. 120 : synthèse des taux de fission absolus mesurés sur dosimètre d' uranium 235

On observe que les incertitudes de comptage sont faibles (< 1%) devant celles qui affectent les rendements de fission et les probabilités d' émissionγ. Ainsi, les écarts observés entre les différents produits de fission relèvent directement de la justesse des données nucléaires de base (cf. §5.1).

4.6 Synthèse des rapports cadmium de fission

Après correction des mesures de taux de comptage par le rapport des rendements effectifs de fission (**Tab. 119**), la relation **(95)** conduit aux rapports cadmium de fission suivants :

		JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1		
Produit de fission	Raie γ étudiée	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$	R_{cd}	$\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}$	$\left.\frac{u(R_{cd})}{R_{cd}}\right\|_{exp}$
rubidium 88	1836.0 keV	22.02	1.10%	21.97	1.10%	22.02	1.10%	1.08%
yttrium 91m	555.6 keV	21.84	0.47%	21.88	0.47%	21.84	0.47%	0.46%
strontium 92	1383.9 keV	21.79	0.65%	21.79	0.65%	21.79	0.65%	0.64%
ruthénium 103	497.1 keV	21.27	0.94%	21.26	0.94%	21.25	0.94%	0.93%
iode 131	364.5 keV	21.40	0.65%	21.38	0.65%	21.41	0.65%	0.64%
tellure 132	228.2 keV	21.33	0.71%	21.33	0.71%	21.33	0.71%	0.71%
iode 132	522.7 keV	21.54	1.44%	21.54	1.44%	21.54	1.44%	1.44%
	630.2 keV	21.25	1.16%	21.25	1.16%	21.25	1.16%	1.16%
	954.5 keV	21.13	0.93%	21.13	0.93%	21.13	0.93%	0.93%
iode 133	1236.4 keV	21.34	1.15%	21.34	1.15%	21.34	1.15%	1.15%
iode 135	1260.4 keV	21.54	0.62%	21.58	0.62%	21.54	0.62%	0.60%
	1678.0 keV	21.68	1.29%	21.71	1.29%	21.68	1.29%	1.28%
	1706.5 keV	21.47	2.13%	21.50	2.13%	21.04	1.78%	2.12%
lanthane 140	487.0 keV	22.05	0.54%	22.07	0.54%	22.06	0.54%	0.50%
	1596.2 keV	21.71	0.73%	21.74	0.73%	21.73	0.73%	0.70%
cérium 143	293.3 keV	22.01	0.43%	22.01	0.43%	21.99	0.43%	0.42%

Tab. 121 : synthèse des rapports cadmium de fission mesurés sur dosimètre d' uranium 235

5 INTERPRETATION

5.1 Analyse des mesures de taux de fission

A partir de la synthèse présentée dans la section précédente (**Tab. 120**), on normalise les résultats de mesure associés à chaque bibliothèque par la moyenne pondérée sur tous les produits de fission étudiés. Les figures suivantes illustrent les distributions obtenues :

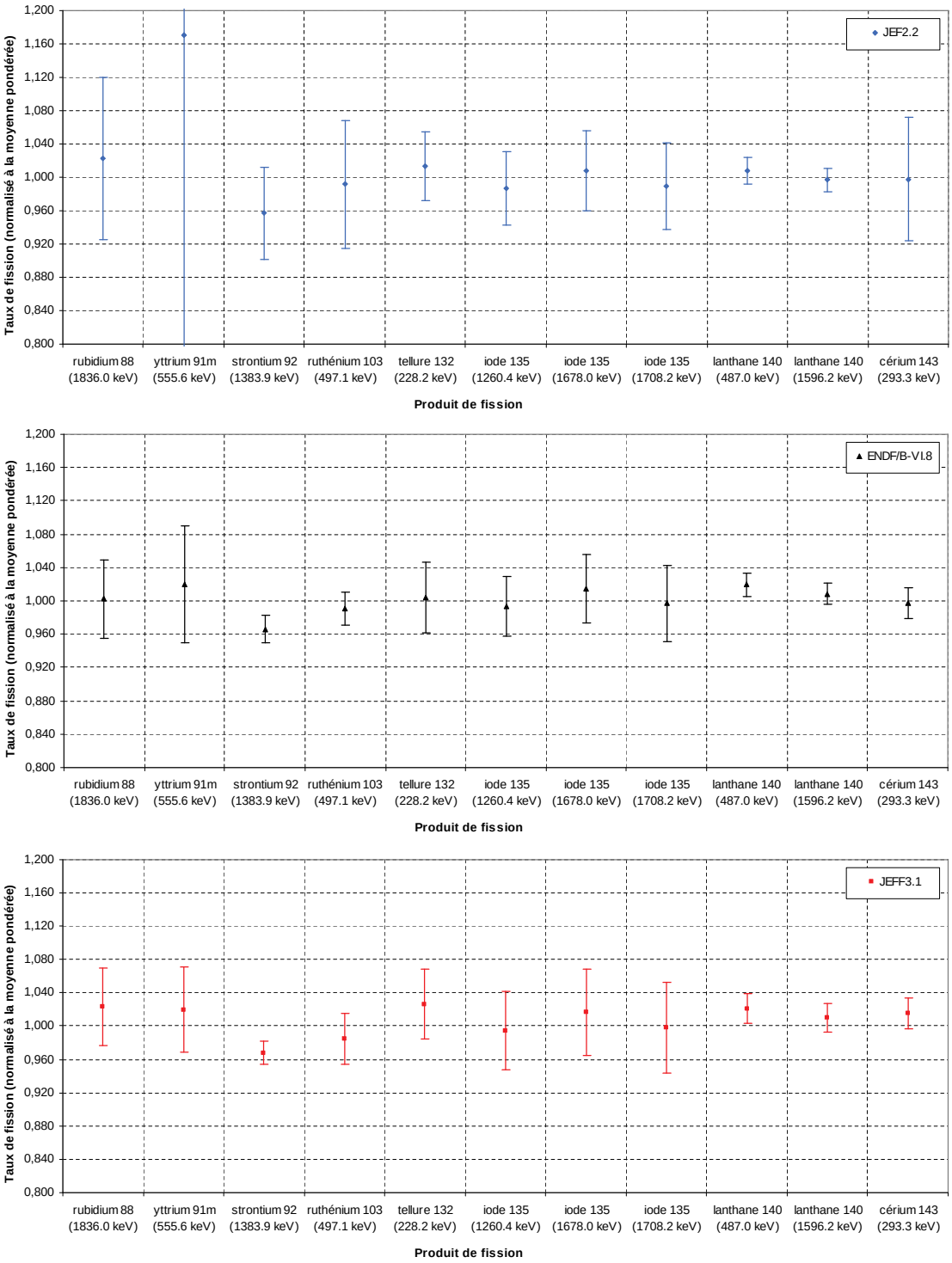

Fig. 100 : distributions des taux de fissions mesurés par bibliothèque et par produit de fission

Si l'on considère les échantillons des 11 évaluations de taux de fission obtenues à partir de chaque bibliothèque, on peut contrôler l'adéquation entre les incertitudes sur les données nucléaires de base et la dispersion des résultats autour de la moyenne grâce au calcul du χ^2 réduit :

	JEF2.2	ENDF/B-VI.8	JEFF3.1
χ^2 / ν	0.13	0.69	0.88

Tab. 122 : χ^2 réduit sur les échantillons de résultats de mesure de taux de fission

Pour un nombre de degrés de liberté $\nu = 10$, on peut conclure avec un risque de première espèce $\alpha = 5\%$ que si le rapport χ^2 / ν est extérieur à l'intervalle [0.32 ; 2.0], alors les variances associées à chaque mesure ne sont pas représentatives de la variance estimée d'après la dispersion des résultats autour de la moyenne. Le tableau ci-dessus indique que les incertitudes sur les données JEF2.2 sont globalement sur-estimées, alors que celles des bibliothèques ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 sont assez réalistes. Cette conclusion justifie le choix de JEFF3.1 pour l'estimation des données radioactives (probabilités d'émission γ et périodes radioactives) qui sont, en général, mieux maîtrisées.

Ensuite, l'analyse de ces trois figures permet de confirmer des tendances observées sur certaines données nucléaires lors des études menées dans les précédents chapitres.

Tout d'abord, dans le cas de l'yttrium 91 métastable, on identifie une sur-estimation d'environ 18% du taux de fission mesuré, corrélé à une sous-estimation équivalente du rapport d'embranchement υ qui caractérise la décroissance du strontium 91 ($\upsilon = 0.5 \pm ?$). En revanche, les évaluations proposées dans ENDF/B-VI.8 ($\upsilon = 0.58 \pm 0.04$) et JEFF3.1 ($\upsilon = 0.588 \pm 0.029$) conduisent à un accord meilleur que 2% avec la moyenne de tous les résultats.

Ensuite, dans le **cas du strontium 92**, on remarque que le taux de fission mesuré est systématiquement inférieur de 3 à 5% à la valeur moyenne. Cet écart n'est pas imputable au biais sur l'évaluation JEFF3.1 de la période radioactive puisqu'au cours de cette étude, l'estimation mesurée dans le chapitre précédent a été utilisée et conduit à une excellente reproductibilité sur la série de 12 mesures ($\chi^2 / \nu = 1.2$). En s'appuyant sur les études antérieures relatives à ce produit de fission, réalisées sur des échantillons d'UO_2 naturel (**Tab. 112**) et de thorium pur (**Tab. 113**), on observe que le taux de fission obtenu est systématiquement inférieur à la moyenne de 2.5 à 7%, quelle que soit la bibliothèque choisie. Compte tenu de l'indépendance quasi-totale entre les évaluations de rendement de fission du thorium 232 et de l'uranium 238, il est probable que cette tendance soit le fait d'une autre donnée nucléaire. Une explication vraisemblable serait une **sur-estimation de l'ordre de 3% de la probabilité d'émission de la raie γ à 1383.9 keV**. Cette hypothèse est appuyée par d'autres bibliothèques de données nucléaires, comme le montre le tableau suivant :

Bibliothèque	I_γ (1383.9 keV) ($\times 10^{-2}$)
JEF2.2	90 ± 10
ENDF/B-VI.8	90 ± 10
JEFF3.1	$\mathbf{93 \pm 0.6}$
ENSDF	90 ± 6
NUCLEIDE	90.0 ± 0.3

Tab. 123 : évaluations de la probabilité d'émission de la raie γ à 1383.9 keV du strontium 92

En utilisant l'évaluation proposée par NUCLEIDE, 3.3% plus faible que la valeur JEFF3.1 et d'incertitude diminuée d'un facteur 2, le taux de fission associé au strontium 92 est augmenté d'un facteur équivalent et la cohérence obtenue avec la moyenne, meilleure que 1%.

Enfin, dans le **cas de l'iode 135**, on observe que les résultats obtenus à partir des trois γ étudiées, sont cohérents à moins de 1.5% avec la moyenne, quelle que soit la bibliothèque choisie. Ce résultat est particulièrement intéressant car il permet de qualifier les évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 du rendement de fission thermique de l'uranium 235. Par conséquent, la sur-estimation d'environ 5% observée dans la partie IV sur les mesures de taux de fission sous enveloppe cadmium des échantillons constitués d'uranium naturel (cf. section §4.6.1.3, chapitre 1, partie IV) est imputable à une **sous-estimation d'environ 7% du rendement de fission JEFF3.1 associé à l'uranium 238**. La qualification de cette chaîne radioactive est fondamentale car elle est à la base de la formation du xénon 135 qui est l'un des principaux poisons neutroniques à courte durée de vie. Cette conclusion pourra être confirmée à l'avenir, par la réalisation de la même étude sur des dosimètres constitués de billes d'uranium 238 de haute pureté isotopique (teneur en uranium 235 de 10^{-2} ppm), irradiés dans des spectres de fission (exemple : MASURCA).

5.2 Analyse des mesures de rapport cadmium de fission

A partir de la synthèse des rapports cadmium de taux de fission mesurés (cf. section §4.6), on regroupe les résultats par produit de fission en réalisant une moyenne pondérée, selon la méthode décrite au début de la thèse (cf. partie II, chapitre 3, section §2.4.2). Ensuite, dans toute l'interprétation qui va suivre, seuls les résultats associés à la bibliothèque JEFF3.1 seront présentés, compte tenu de la faible influence des données nucléaires utilisées sur le résultat de mesure. La distribution des rapports cadmium en fonction du nombre de masse A (ou 236 – A)[37] du produit de fission utilisé est représentée ci-dessous :

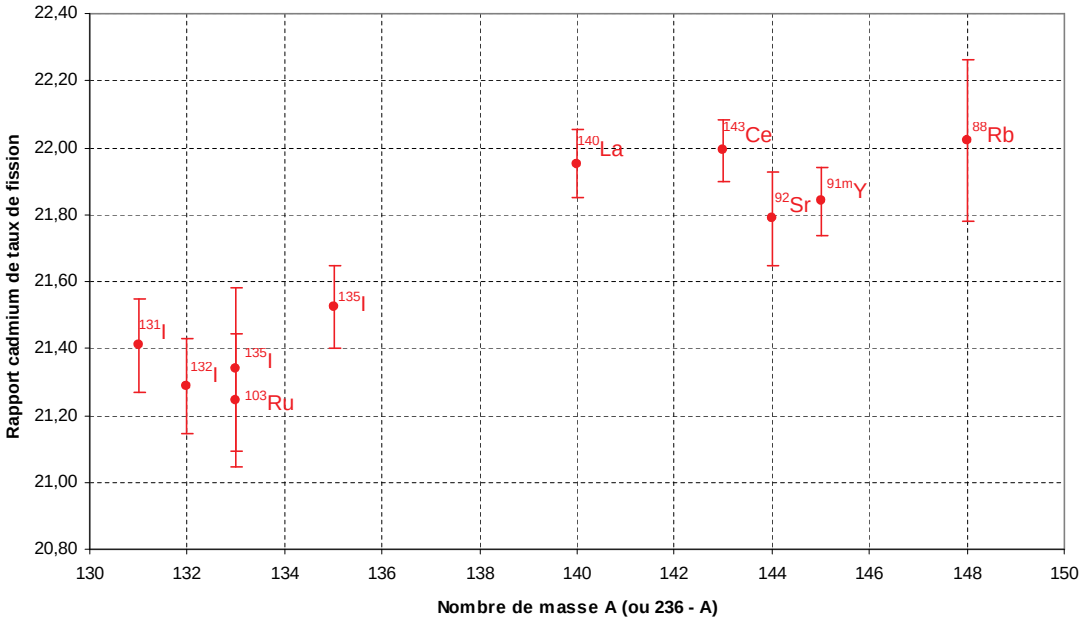

Fig. 101 : rapport cadmium de fission mesuré en fonction du nombre de masse

[37] Le modèle de fission multi-mode décrit la distribution en masse des fragments de fission, avant émission des neutrons prompts. Par conséquent, il est parfaitement équivalent de considérer un fragment de nombre de masse A ou 236 – A.

Cette figure montre une différence significative, de l' ordre de 2.5%, entre les rapports cadmium mesurés à partir de produits de fission de nombre de masse A > 138 (respectivement A < 98) et ceux de nombre de masse A < 138 (respectivement A > 98). Compte tenu de l' incertitude d' environ 0.5% associée à chaque estimation, cette différence ne peut s' expliquer uniquement par la statistique de comptage. Par conséquent, la distribution des rapports cadmium mesurés traduit l' existence de fluctuations des rendements de fission entre le domaine d' énergie thermique et épithermique, fonction du nombre de masse du produit de fission considéré.

Dans le cadre du modèle de fission multi-mode, ces fluctuations pourraient provenir d' une variation avec l' énergie des neutrons, du rapport w_1 / w_2 qui caractérise la hauteur relative des gaussiennes associées aux modes standard 1 (SI) et standard 2 (SII). En effet, si on néglige en première approximation la contribution du mode superlong, les modes SI et SII sont intrinsèquement corrélés par la relation $w_2 = 1- w_1$. Aussi tout accroissement de la hauteur w_1 du mode SI conduit-il nécessairement à une diminution de la hauteur w_2 du mode SII, et donc à une déformation de la distribution en masse des produits de fission.

Ce phénomène pourrait expliquer la surestimation du rapport cadmium de fission mesuré pour des nombre de masse A > 138 par rapport à des nombre des masses A < 138, puisque la contribution relative des modes SI et SII est différente. Cette hypothèse est, appuyée par des études passées réalisées à partir de neutrons monoénergétiques couvrant la gamme de 6 meV à 130 eV **[147]**. Elle peut être quantifiée de façon intégrale par les mesures réalisées au cours de la thèse, en s' appuyant sur la connaissance a priori des caractéristiques de chaque gaussienne (**Fig. 102**) :

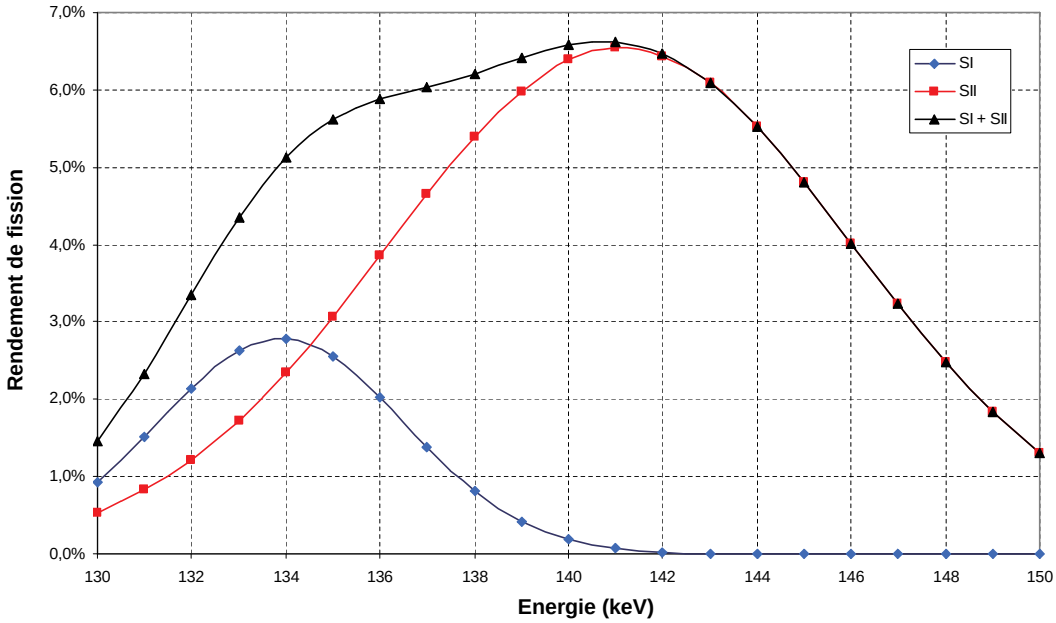

Fig. 102 : contributions des modes SI et SII à la distribution en masse des rendements de fission (pour des neutrons d' énergie thermique)

Si l' on suppose une fluctuation $u(w_1)$ de la hauteur du mode SI en spectre épithermique, par rapport à sa valeur de référence w_1 en spectre thermique, on peut alors estimer la modification induite sur le profil de rendements de fission (i.e. sur SI+SII), par différentiation de l' équation **(95)**. Sachant que la distribution des rapports cadmium mesurés en fonction du nombre de masse est représentative de la variation du rendement de fission entre les domaines thermique et épithermique, on peut établir un lien entre $u(w_1)$ et les différences observées entre produits de fission (**Fig. 101**).

Un algorithme, basé sur les moindres carrés, a donc été conçu pour obtenir une estimation ε_1 de la fluctuation $u(w_1)$ sur la hauteur du mode SI qui minimise l'écart type de l'échantillon des rapports cadmium mesurés. Pour chaque tirage ε_1, on évalue la variation induite sur les rendements de fission et on modifie chaque rapport cadmium mesuré à partir d'un produit de fission de nombre de masse A_i, noté $R_{cd}(A_i)$, pour obtenir une estimation post-corrigée de la fluctuation ε_1, notée $y_i(\varepsilon_1)$:

$$y_i(\varepsilon_1) = R_{cd}(A_i)\frac{\frac{w_1+\varepsilon_1}{\sqrt{2\pi}\sigma_1}\left[e^{-(A_i-A_1)^2/2\sigma_1^2}\right]+\frac{(1-w_1-\varepsilon_1)}{\sqrt{2\pi}\sigma_2}\left[e^{-(A_i-A_2)^2/2\sigma_2^2}\right]}{\frac{w_1}{\sqrt{2\pi}\sigma_1}\left[e^{-(A_i-A_1)^2/2\sigma_1^2}\right]+\frac{(1-w_1)}{\sqrt{2\pi}\sigma_2}\left[e^{-(A_i-A_2)^2/2\sigma_2^2}\right]} \quad \textbf{(96)}$$

L'algorithme cherche alors à minimiser la fonction suivante :

$$Q_i(\varepsilon_1) = \frac{1}{9}\sum_{i=1}^{10}\frac{\left(y_i(\varepsilon_1)-\bar{y}\right)^2}{u^2(y_i(\varepsilon_1))} \quad \textbf{(97)}$$

Après une dizaine d'itérations, la fluctuation obtenue est d'environ $\varepsilon_1 = 0.64\%$, soit au final :

$$\frac{(w_1/w_2)_{epithermique}}{(w_1/w_2)_{thermique}} = 1.043$$

La variation du rapport w_1 / w_2, estimée par cette étude, est compatible avec les expériences différentielles qui mettent en évidence des fluctuations de -1.2 à +24% sur les 50 principales résonances de l'uranium 235 et une fluctuation moyenne de +2.6% sur la gamme [6 meV ; 130 eV] en dehors des résonances **[147]**.

Le tableau suivant regroupe les variations du rendement de fission de l'uranium 235 entre le domaine thermique et épithermique, déduites des fluctuations estimées des modes SI et SII :

A	$\frac{\partial Y(A)}{Y(A)}(\varepsilon_1 = 0.64\%)$
131	+2.0%
132	+1.9%
133	+1.8%
134	+1.5%
135	+1.2%
136	+0.7%
137	+0.2%
139	-0.5%
141	-0.7%
> 143	-0.8%

Tab. 124 : estimation de la variation relative du rendement de fission de l'uranium 235 en spectre épithermique par rapport à l'évaluation en spectre thermique

En utilisant les valeurs ci-dessus, on pourrait construire des estimations du rendement effectif de fission en spectre épithermique et ainsi extrapoler la méthode de calcul des rendements effectifs de fission à une approche à 4 groupes d'énergie (contre 3 actuellement). Elle serait alors davantage adaptée pour les calculs d'évolution de combustibles irradiés dans des spectres intermédiaires en énergie, par exemple pour des réacteurs type RCG ou VHTR.

6 CONCLUSION

Dans ce chapitre, la mise au point de mesures de taux de fission et de rapports cadmium de fission à partir d' un dosimètre uranium 235 irradié dans un canal thermalisé du réacteur MINERVE, a permis de dégager des tendances sur les rendements de fission.

Dans un premier temps, la comparaison des résultats de mesure obtenus d' après 8 produits de fission différents a permis la **qualification à mieux que 1.5% du rendement de fission thermique de l' uranium 235, conduisant à la formation d' iode 135**, et ainsi de conclure, pour ce même produit de fission, à **la sous-estimation de 7.5% de l' évaluation JEFF3.1 du rendement de fission rapide de l' uranium 238.** L' étude a également de permis d' identifier des tendances sur des données radioactives, notamment **la surestimation de 3.3% de la probabilité d' émission de la raie γ à 1383.9 keV du strontium 92 dans JEFF3.1** et la **sous-estimation de 18% du rapport d' embranchement de la décroissance ^{91}Sr → ^{91m}Y dans JEF2.2.**

Dans un second temps, la comparaison des rapports cadmium mesurés d' après 16 raies γ caractéristiques, a permis d' identifier des fluctuations sur la distribution en masse des produits de fission, en fonction du spectre neutronique. Ce phénomène a été interprété à partir du modèle de fission multi-mode, en admettant l' existence de **fluctuations des modes SI et SII selon l' énergie des neutrons**. L' étude montre une **variation de 4.3% en spectre épithermique** du rapport w_1 / w_2 des hauteurs associées à ces deux modes, par rapport à la valeur de référence en spectre thermique. L' influence de cette fluctuation sur le calcul des rendements effectifs de fission varie de **-0.8% à +2.0%** pour les produits de fission usuels ($131 < A < 145$ et $91 < A < 105$).

Cette étude ouvre des perspectives d' expérience nouvelles dans EOLE et MINERVE pour la qualification des rendements de fission sur d' autres isotopes fissiles aux neutrons thermiques (exemples : uranium 233, plutonium 239). A terme, il pourrait également être envisagé d' extrapoler la méthode de calcul des rendements effectifs de fission à une approche à 4 groupes d' énergie, en proposant des estimations des rendements de fission en spectre épithermiques, à partir des fluctuations observées sur le rapport w_1 / w_2.

CONCLUSION

Dans cette cinquième partie, des techniques innovantes de mesure par spectrométrie γ sur dosimètre fissile ont été mises au point, afin de contribuer à la qualification de données nucléaires de décroissance. Elles visent plus spécifiquement à affiner l' interprétation des tendances observées dans la partie IV, sur les mesures de certains indices de capture.

Tout d' abord, l' étude de la **période radioactive du strontium 92** a été menée dans le premier chapitre. Elle révèle l' existence d' un **biais d' environ 4.5%** sur l' évaluation retenue dans les principales bibliothèques de données nucléaires (JEF2.2, ENDF/B-VI.8, JEFF3.1). La campagne de mesures réalisée a permis de proposer une nouvelle évaluation, d'**incertitude réduite d' un facteur 2 par rapport au passé** et conduisant à une meilleure cohérence des mesures de taux de fission, soit :

$$\boldsymbol{T_{1/2} = 2.594 \pm 0.005\ h}$$

Pour ce même radionucléide, plusieurs études indépendantes (i.e. expériences d' irradiations réalisées à partir de différents isotopes fissionnables) montrent une **surestimation probable de la probabilité d' émission de la raie γ à 1383.9 keV de l' ordre de 3% dans JEFF3.1**

Ensuite, le développement de mesures spécifiques a permis de valider les évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 des rendements de fission thermiques de plusieurs chaînes radioactives, pour l' uranium 235, notamment celle de nombre de masse $\boldsymbol{A = 135}$, conduisant à la formation du xénon 135. De ce fait, il a été possible de conclure à la **sous-estimation d' environ 7% dans JEFF3.1 du rendement de fission de l' iode 135, pour l' uranium 238**, à partir des mesures réalisées dans la partie IV, sur des échantillons irradiés avec et sans cadmium.

Enfin, des mesures de rapport cadmium ont permis d' identifier **des fluctuations des rendements de fission de l' uranium 235 dans le domaine épithermique**, confirmant ainsi les tendances observées par d' autres études, à partir d' analyses isotopiques par spectrométrie de masse **[146][147]**. Pour des nombres de masse $131 < A < 145$ (ou $91 < A < 105$), les écarts relatifs mesurés par rapport aux évaluations données en spectre thermique varient de **-0.8 à 2.0%**.

Compte tenu de la facilité de mise en œuvre expérimentale, le faible coût, et l' aspect non-destructif de la méthode, la spectrométrie γ s' avère particulièrement adaptée aux différentes études menées dans cette partie. Par ailleurs, celles-ci pourront à l' avenir, être transposées directement à d' autres isotopes fissionnables tels que l' uranium 238 et le neptunium 237, grâce à l' acquisition, au cours de la thèse, de dosimètres basés sur ces deux isotopes, et éventuellement au plutonium 242, à partir d' un autre dosimètre dont la conception est actuellement à l' étude. Ces expériences permettront d' enrichir la base de données expérimentales relative à la fission des actinides en spectre rapide, en soutien aux études sur leur incinération en réacteur.

CONCLUSION GENERALE

BILAN DES PROGRES REALISES

Ce travail de recherche avait pour objectifs de concevoir et d'optimiser des techniques de mesure intégrale par spectrométrie γ, appliquées aux combustibles des réacteurs EOLE et MINERVE, et de maîtriser les incertitudes associées aux résultats de mesure. Il se positionne dans un contexte d'amélioration de la précision des calculs neutroniques et des données nucléaires de base. Le but est de réduire les marges de conception et de fonctionnement (donc les coûts) des réacteurs nucléaires, actuels et futurs, tout en conservant un haut niveau de sûreté. Grâce à l'utilisation **d'instrumentations maîtrisées**, l'application de **méthodes de traitement optimisées** et la mise au point de **mesures innovantes**, le travail réalisé au cours de la thèse participe à ces objectifs.

Maîtrise de l'instrumentation

La première étape a consisté à caractériser le fonctionnement quantitatif des chaînes de mesure par spectrométrie γ utilisées par le passé et a montré leur inadaptation à tenir correctement compte du temps mort électronique. Plus précisément, l'absence de correction des empilements de signaux par la carte codeur/analyseur CANBERRA PCA3, conduisait à des **erreurs systématiques de 1 à 12% sur les mesures de recalage de taux de fission réalisées auparavant et de 1 à 3% sur les mesures de laplacien géométrique axial.**

La réalisation d'une étude comparative, basée sur différentes électroniques, a permis de montrer les excellentes performances atteintes par la chaîne numérique CANBERRA DSP 2060. En effet, pour une résolution en énergie équivalente, le DSP permet une **capacité de traitement 2 fois plus élevée** qu'avec les chaînes analogiques passées. A l'issue de cette étude, le laboratoire a fait l'acquisition de cinq unités de cette électronique pour équiper tous les bancs de spectrométrie γ.

Une méthodologie d'optimisation de ses réglages a ensuite été proposée. Après un ajustement adapté aux spécificités de chaque mesure, on aboutit aux performances suivantes :

- **résolution en énergie améliorée de 20%** par rapport aux anciennes chaînes de mesure, pour une capacité de traitement équivalente, soit une réduction de 2.0 keV à 1.6 keV de la LTMH (largeur totale à mi-hauteur) du pic à 1332.5 keV du cobalt 60.
- **absence de biais systématique jusqu'à au moins 65% de temps mort**, soit un taux de comptage d'environ 1.5×10^5 s^{-1}, avec une **incertitude meilleure que 0.5%**,
- **indépendance énergétique de la correction de temps mort**.

Enfin, le logiciel GENIE 2000 de traitement des spectres a été caractérisé en terme de justesse des calculs de surface nette et de représentativité de l'incertitude associée. Une méthode expérimentale a été développée et aboutit aux progrès suivants :

- **recommandations sur le choix des paramètres d'analyse**, notamment sur la largeur de région d'intérêt et sur les méthode de soustraction et d'évaluation du fond continu,
- **justesse des modèles de soustraction du fond continu meilleure que 1%** jusqu'à un rapport $H_f / H_p = 4$ (hauteur du fond / hauteur du pic) pour un pic superposé à un fond plat (modèle linéaire), et jusqu'à $H_f / H_p = 0.5$ pour un pic superposé à un front Compton (modèle escalier),
- **justesse du module de déconvolution de multiplets meilleure que 1%,** quel que soit l'écart en énergie des pics (de 1 à 4 fois la LTMH) et leurs surfaces nettes relatives (de 0.25 à 2.5).

A ce jour, l' une des principales conséquences de ce travail est la cohérence à moins de 1.5%, obtenue pour la toute première fois, entre les mesures de recalage de taux de fission réalisées à partir de la raie γ à 1596.2 keV du lanthane 140, à faible temps mort (θ < 5%), et à partir de la raie γ à 1383.9 keV du strontium 92, à fort temps mort (θ > 30%).

Optimisation des méthodes de traitement

Une deuxième étape a conduit à la définition de méthodes de traitement des données brutes de mesure, permettant d' accéder à un taux de réaction par la technique de spectrométrie γ de pic particulier. Plus précisément, il s' agissait d' unifier les méthodes d' analyse appliquées par le passé à différentes mesures, au sein d' une méthodologie générale et facilement transposable. Il ressort de cette étude, les avancées suivantes :

En terme d' amélioration de la justesse :

- **l' optimisation des schémas de calcul MCNP de transfert de rendement** pour la correction du phénomène d' autoabsorption γ dans le combustible. Ils s' appuient désormais sur la géométrie réelle du banc de mesure et sur le calcul du dépôt d' énergie dans le détecteur, décrit de façon exacte. Cette nouvelle approche permet de mieux prendre en compte les effets dus à la différence d' angle d' incidence des photons sur le détecteur entre une source ponctuelle, utilisée pour l' étalonnage, et une source volumique, tel un crayon combustible. Elle corrige des **erreurs systématiques allant jusqu' à 8%** sur le taux de conversion de l' uranium 238, mesuré à partir des raies γ à 277.6 keV du neptunium 239 et à 1596.2 keV du lanthane 140.
- **la mise en œuvre, pour la première fois, d' un outil de calcul permettant de corriger les coïncidences vraies**, pour les mesures en géométrie rapprochée (< 200 mm). L' étude montre que pour un dosimètre placé à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative, les **erreurs commises atteignent jusqu' à 5% sur le résultat de la mesure**, en cas de non prise en compte de ces corrections.
- **l' adaptation de la méthode de correction de temps mort en temps actif pour la mesure des radionucléides à courte durée de vie** (i.e. dont la période radioactive $T_{1/2}$ est comparable à la durée de mesure). Pour cela, une post-correction ξ à appliquer au temps mort θ a été estimée et permet de corriger une **erreur systématique potentielle de 2%** pour des mesures de durée $t \cong T_{1/2}$, réalisées quelques heures après irradiation dans EOLE ou MINERVE.

En terme de réduction des incertitudes :

- **le calcul rigoureux de propagation des incertitudes sur le rapport des rendements effectifs de fission**. Une meilleure prise en compte des corrélations entre les termes présents au numérateur et au dénominateur par rapport à l' approche enveloppe utilisée par le passé conduit à une **réduction au moins d' un facteur 3 de l' incertitude sur ce rapport** selon, le produit de fission, la bibliothèque de données nucléaires et les combustibles considérés.
- **le calcul rigoureux de propagation des incertitudes sur le rapport des rendements d' absorption totale** L' utilisation de 14 étalons pour établir la réponse en énergie du détecteur et la prise en compte des corrélations entre les raies γ d' une même source et entre les sources issues d' un même fabricant, a permis une **réduction au moins d' un facteur 5 de l' incertitude sur ce rapport**

- **la combinaison de résultats de mesure obtenus à partir de plusieurs produits de fission et/ou raies γ**. Une méthode de combinaison des résultats obtenus à partir de plusieurs mesures corrélées d' un même mesurande a été proposée. Elle vise à limiter l' influence des données nucléaires de base utilisées (en particulier : probabilités d'émission γ et rendements de fission) sur le résultat de mesure et à réduire l' incertitude finale.

Ces méthodes ont été intégrées au sein de deux logiciels développés spécifiquement pour les mesures de recalage de taux de fission et les études du taux de conversion de l' uranium 238. Ils permettent de réaliser un traitement uniforme des incertitudes entre les différentes expériences réalisées et assurent une plus grande fiabilité du résultat de mesure, en limitant « l' effet utilisateur ».

L' application de ces progrès à la détermination du recalage de taux de fission entre un combustible UMoAl et UO_2 et à l' estimation du laplacien géométrique axiale d' un crayon UO_2 irradié dans un réseau homogène, a permis une réduction de l' incertitude sur le résultat de mesure d' un facteur 3 par rapport au passé.

Conception de mesures innovantes

La dernière étape du travail consistait à concevoir des expériences novatrices, visant à améliorer la connaissance de données nucléaires de base d' intérêt pour la physique des réacteurs. Dans le cadre des programmes expérimentaux OCEAN et OSMOSE réalisés sur le réacteur MINERVE à partir de 2005 et jusqu' en 2009, des échantillons de combustible contenant des isotopes séparés ont été fabriqués afin de qualifier les sections efficaces d' absorption par la technique d' oscillation. Compte tenu de la rareté et de la quantité des isotopes étudiés, ces expériences sont uniques au monde.

Aussi l' un des objectifs majeurs de la thèse résidait-il dans la conception de mesures par spectrométrie γ de pic particulier permettant de caractériser les sections efficaces de capture neutronique à partir de ces mêmes échantillons. Les deux techniques (oscillation et spectrométrie γ), par la complémentarité des informations qu' elles apportent, constituent des outils puissants pour améliorer la connaissance des sections efficaces. Tirant profit des progrès accomplis sur la mise en œuvre expérimentale et le traitement des mesures, l' apport de ce travail concerne :

- **le développement de mesures d' indice de capture** par spectrométrie γ de pic particulier, sur échantillon combustible. S' appuyant sur les mesures passées de taux de conversion de l' uranium 238 réalisées sur crayon combustible, une technique de mesure a été mise au point. Après une étude de faisabilité et la réalisation d' adaptations mécaniques du banc de mesure pour autoriser la mesure sur échantillon combustible, les isotopes suivants ont été étudiés : **^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf, ^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{238}U, ^{242}Pu**. Grâce à la réalisation de séries de 5 à 12 mesures par échantillon et la combinaison des résultats de mesure issus de plusieurs raies γ, une **incertitude de reproductibilité expérimentale meilleure que 1% et réduite au moins d' un facteur 3 par rapport au passé** a été atteinte dans la plupart des cas.
- en complément de ces mesures, des **expériences novatrices d' irradiation sous enveloppe cadmium** ont été conçues pour plusieurs échantillons (^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf). Elles visaient à estimer la contribution de la composante épithermique du spectre neutronique aux écarts calcul / expérience observés par les mesures d' indice de capture. Une **incertitude de reproductibilité expérimentale meilleure que 2%** a été atteinte. Par ailleurs, le rapport cadmium, qui fait intervenir les mêmes termes au numérateur et au dénominateur, présente l' avantage d' être quasi-indépendant des données nucléaires de base utilisées.

Ces mesures ont ensuite fait l' objet d' un travail d' interprétation par la réalisation de calculs neutroniques au moyen des codes déterministe APOLLO2 et probabiliste MCNP4C2, utilisant les bibliothèques de données nucléaires JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1.

Pour certains isotopes, les données de décroissance utilisées au cours de la mesure sont suffisamment bien maîtrisées pour que les écarts C / E puissent directement être corrélés à la section de capture. Il s' agit essentiellement des cas suivants :

Isotope	Donnée nucléaire	$\frac{C-E}{E}$
^{164}Dy	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(-10.3 ± 1.6)%
^{170}Er	$\overline{\sigma_{th}}(n,\gamma)$	(-44 ± 10)%
^{170}Er	$\overline{\sigma_{epi}}(n,\gamma)$	(35 ± 3)%
^{180}Hf	$\overline{\sigma_{th}}(n,\gamma)$	(-2.5 ± 0.7)%
^{180}Hf	$\overline{\sigma_{epi}}(n,\gamma)$	(6.0 ± 1.8)%
^{232}Th	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(1.1 ± 2)%
^{232}Th	$\overline{\sigma}(f,n)$	(2 ± 2.5)%
^{236}U	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(-8 ± 3)%
^{238}U	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(0 ± 1.5)%
^{238}U	$\overline{\sigma}(2n,n)$	(-1.5 ± 5.5)%
^{238}Np	$\overline{\sigma}(n,\gamma)$	(-9.2 ± 1.3)%

σ_{th} est la section efficace thermique, σ_{epi} est la section efficace épithermique, $\overline{\sigma}$ est la section efficace moyenne

Tab. 125 : tendances observées sur les sections efficaces de capture dans JEFF3.1

Pour d' autres isotopes, les incertitudes sur les probabilités d' émission γ des radionucléides créés par capture ne permettent pas de conclure sur la provenance des écarts C / E. Toutefois, la confrontation aux mesures de réactivité réalisées par la technique d' oscillation à partir des mêmes échantillons, permet de confirmer ou d' infirmer des tendances sur les sections efficaces de capture et donc d' identifier l' existence de biais potentiels. Les hypothèses émises sont les suivantes :

Isotope	$\frac{C-E}{E}$
^{171}Er	(-18 ± 8)%
^{181}Hf	(-12 ± 5.5)%
^{238}Np	(15 ± 3)%
^{243}Pu	(21 ± 6)%

Tab. 126 : tendances observées sur les probabilités d' émission γ proposées dans JEFF3.1

A l' occasion de ces mesures d' indice de capture, des tendances ont également été identifiées sur les données de décroissance de certains produits de fission, utilisés pour la normalisation du taux de capture au taux de fission total. Elles ont conduit à la **conception de mesures sur des dosimètres fissiles d' uranium 235**, destinées à confirmer les hypothèses émises et pour améliorer la précision de certaines données. Les principales conclusions déduites de ces expériences sont :

- l' identification d' une **erreur systématique de 4.5% sur l' évaluation de la période radioactive du strontium 92**, soit $T_{1/2}$ = (2.71 ± 0.01) h, adoptée dans toutes les bibliothèques de données nucléaires. Grâce à des mesures réalisées à partir de 4 dosimètres, sur une durée

d' au moins 10 fois la période radioactive et sur 2 bancs de mesure différents, **une nouvelle évaluation a été proposée avec une incertitude réduite d' un facteur 2** :

$$T_{1/2} = 2.594 \pm 0.005 \text{ h}$$

Cette valeur conduit à une modification d' environ 1% du facteur de recalage de taux de fission obtenu à partir du strontium 92 et conduit à une meilleure cohérence avec les résultats déduits d' autres produits de fission.

- l' irradiation des mêmes dosimètres d' uranium 235, enveloppés dans une capsule de 0.5 mm d' épaisseur de cadmium, a permis de vérifier l' adaptation du modèle de calcul des rendements effectifs de fission pour un spectre neutronique à forte composante épithermique. Confortées par des mesures différentielles réalisées par d' autres équipes, les mesures de rapport cadmium de fission ont permis de mettre en évidence l' existence de **fluctuations des rendements de fission de l' uranium 235 entre les domaines thermiques et épithermiques, en fonction du nombre de masse du produit de fission créé**. A partir du modèle de fission multi-mode décrivant la scission du noyau composé en deux fragments, ces fluctuations ont été corrélées à des variations des probabilités d' occurrence des modes asymétriques standard I et standard II. Par une méthode d' ajustement appropriée, on a pu quantifier une **variation allant de -0.8% à +2%** des rendements de fission entre les domaines thermiques et épithermiques.

In fine, pour toute grandeur physique accessible par spectrométrie γ (recalage de taux de fission, laplacien géométrique, indice de capture, rapport cadmium de capture ou de fission), les incertitudes de reproductibilité de la mesure ont été suffisamment réduites pour que les tendances obtenues sur les C / E soient nécessairement le fait des schémas de calcul et/ou des données nucléaires de base utilisées.

PERSPECTIVES

Les progrès réalisés sur l' instrumentation par spectrométrie γ profitent dès à présent aux études en cours, notamment le programme expérimental FUBILA sur EOLE. Ils permettent d' obtenir des **données brutes de mesure plus fiables et des incertitudes mieux maîtrisées** que par le passé. Par ailleurs, leur application à d' autres activités du SPEx, notamment pour la dosimétrie en réacteur, représente un apport important pour le déroulement, dans les meilleures conditions, de futurs programmes expérimentaux tels que FLUOLE, PERLE et AMMON sur EOLE.

La réduction des incertitudes sur les mesures de recalage de taux de fission permettra également de **progresser sur l' interprétation des distributions radiales de puissance neutronique**. Par exemple, pour les configurations incluant des combustibles dopés au Gd_2O_3, des écarts C / E allant jusqu' à 5% ont été identifiées lors de précédentes études **[148]** et n' ont pas pu être correctement expliqués, du fait d' une incertitude trop pénalisante sur le résultat de mesure.

Des nouveaux besoins sont aussi amenés à faire leur apparition comme la **qualification de nouveaux types de réflecteurs**. Les mesures de distributions axiales de puissance neutronique par spectrométrie γ de pic particulier mises en œuvre au cours de la thèse sont susceptibles de contribuer à ce besoin puisqu' elles ont permis de qualifier les effets réflecteurs observés à l' interface entre la colonne fissile et la cale plexiglas d' un crayon combustible MINERVE UO_2.

La principale perspective de ce travail porte sur l'**amélioration de la connaissance des données nucléaires de base**. En effet, la poursuite des programmes OCEAN et OSMOSE jusqu'en 2009 dans des spectres neutroniques sous-modérés, sur-modérés et de type REP-MOX permettra de confirmer les hypothèses émises à partir de mesures réalisées dans un seul spectre, de type REP-UO_2. Par ailleurs, les mesures de rapports cadmium pourront être étendues à d'autres échantillons qui n'ont pas pu être réalisées au cours de la thèse, compte tenu des contraintes de temps liées aux programmes en cours. Plusieurs pistes d'amélioration sont également à l'étude :

- la mise en place d'une **collaboration avec des laboratoires de référence pour l'évaluation de données de décroissance** de radionucléides d'intérêt (^{171}Er, ^{181}Hf, ^{238}Np, ^{243}Pu), permettrait de réduire l'incertitude sur les mesures d'indice de capture afin de progresser sur la connaissance des sections efficaces de capture associées.
- **la normalisation du taux de capture d'intérêt à une autre référence que le taux de fission total** (par exemple : le taux de capture de l'uranium 238) des taux de capture des isotopes étudiés, pourrait être envisagée afin de limiter l'influence du calcul de spectre neutronique dans le processus d'interprétation.
- **la conception d'expériences d'indice de capture sur des dosimètres** est dès à présent envisagée, grâce à l'acquisition de dosimètres d'uranium 238 et de neptunium 237 de haute pureté et la mise en place d'une étude de faisabilité pour la conception d'un dosimètre de plutonium 242 auprès de l'IRMM (*Institute for Reference Materials and Measurements*).

Ces même expériences sur dosimètre fissile sont susceptibles de répondre à d'autres besoins, notamment la **qualification des rendements de fission**, pour les études sur l'incinération des actinides dans des réacteurs à neutrons rapides, ou bien la **reconstitution d'un spectre neutronique par groupe d'énergie** pour les études de fluence cuve, grâce aux réactions de fission à seuil.

Plus généralement, l'amélioration de la qualité et de la diversité des mesures intégrales par spectrométrie γ, offre une alternative aux autres techniques couramment employées dans les réacteurs de recherche (mesures par chambre à fission ou par oscillation). La complémentarité de ces techniques permet de plus, d'accéder à des données nucléaires de base, rarement mesurées par le passé.

In fine, les avancées réalisées au cours de la thèse permettent d'envisager une meilleure symbiose entre les mesures différentielles et intégrales de données nucléaires. Elles valorisent les programmes expérimentaux réalisés au SPEx, et contribuent à la reconnaissance et à la pérennité de ses maquettes critiques. Le travail réalisé s'inscrit enfin dans un axe stratégique du CEA, à l'initiative du haut commissaire **[149]**, pour le renforcement de ses capacités de production et de capitalisation de données nucléaires.

REFERENCES

[1] D. BERNARD, **« Détermination des incertitudes liées aux grandeurs d'intérêt des réacteurs à eau pressurisée à plaques combustibles et applications aux études de conformité »**,
Thèse de l'Université Clermont-Ferrand II, 2002.

[2] CEA/DEN Direction scientifique, **« Nuclear energy of the future : what research for which objectives ? »**,
DEN monographs, Editions du Moniteur, 2006.

[3] NF ENV 13005, **« Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure »**
août 1999.

[4] M. NEUILLY, **« Modélisation et estimation des erreurs de mesure »**,
Editions Lavoisier TEC & DOC, 1998.

[5] MM. BE, **« Activity measurements an dgamma emission intensities determination in the decay of 65Zn »**,
Rapport CEA-R-6081, CEA/DRT/DETECS/LNHB, mars 2005.

[6] P. REUSS, **« Précis de neutronique »**,
Editions EDP Sciences, 2003.

[7] A. SANTAMARINA, C. CHABERT, A. COURCELLE, O. LITAIZE, G.WILLERMOZ, D.BIRON, L.DAUDIN. **« Qualification of the APOLLO2.5/CEA93.V6 Code for UOX and MOX fuelled PWRs »**,
Proceedings of the International Conference on the Physics of Reactor PHYSOR 2002, Séoul. Corée du Sud, 7-10 octobre 2002.

[8] JM. RUGGIERI J. TOMMASI, JF. LEBRAT, C. SUTEAU, D. PLISSON-RIEUNIER, C. DE SAINT JEAN, G.RIMPAULT, JC. SUBLET, **« ERANOS 2.1 : The International Code System for GENIV Fast Reactor Analysis »**,
Proceedings of the International Congress on Advances in Nuclear Power Plants 2006, Reno, Nevada, 4-8 juin 2006.

[9] P. FOUGERAS, A. CHABRE, C. MERGUI, **« The place of EOLE, MINERVE and MASURCA facilities in the R&D Activities of the CEA »**,
Proceedings of the International Group On Research Reactors (IGROR 10), Gaitherburg, EU, 12-16 septembre 2005.

[10] JP. HUDELOT, A. SANTAMARINA, **« Le réacteur expérimental MINERVE : atouts et perspectives de programmes expérimentaux innovants en soutien au parc actuel. aux futurs concepts de réacteur et à l'amélioration des données nucléaires de base »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-100, 2005.

[11] JP. HUDELOT, D. BERNARD, **« Etat de l'art des méthodes de mesure et d'interprétation des expériences d'oscillation dans le réacteur MINERVE : étude qualitative et quantitative des incertitudes expérimentales – Perspectives d'améliorations »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-103, 2005

[12] A. LYOUSSI, **« Mesure nucléaire non destructive dans le cycle du combustible »**,
Techniques de l'Ingénieur, Réf. BN3405, janvier 2005.

[13] B. PEROT, **« Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d'un dispositif industriel »**,
Thèse Université Joseph Fourier, Grenoble 1 juin 1996.

[14] GF. KNOLL, **« Radiation Detection and Measurement, third edition »**,
Editions John Wiley & Sons, 2000.
Ann Arbor, Michigan, 1989.

[15] G. GILMORE, J. HEMINGWAY, **« Practical Gamma-Ray Spectrometry »**,
Editions John Wiley & Sons, 1995.

[16] P. CHEVALLIER, **« Principaux détecteurs utilisés en spectrométrie gamma et X et électronique associée »**,
Cours INSTN « Perfectionnement en spectrométrie gamma », Réf. P049/03/v1, juin 2004.

[17] CETAMA, **« Spectrométrie gamma appliqué aux échantillons de l'environnement »**,
Editions Tec & Doc, 2002.

[18] NUCLEAR ENERGY AGENCY, **« The JEF-2.2 Nuclear Data Library »**,
Nuclear Energy Agency Data Bank, JEF Report 17, avril 2000.

[19] NUCLEAR ENERGY AGENCY, **« The JEF-3.1 Project »**,
http://www.nea.fr/html/dbdata/JEFF/

[20] CROSS SECTION EVALUATION WORKING GROUP, **« ENDF-102 Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File ENDF/B-VI »**,
BNL-NCS-44945-01/04-Rev, 2002.

[21] K. SHIBATA, T. KAWANO, T. NAKAGAWA, **« Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3 : JENDL-3.3 »**,
Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 39, p. 1125, 2002.

[22] JK. TULI, **« ENSDF : a manual for preparation of data sets »**,
BNL-NCS-51655-01/02-Rev, http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/, février 2001.

[23] MM. BÉ, R. HELMER, V. CHISTÉ, **« The NUCLEIDE database for decay data and the International Decay Data Evaluation Project »**,
Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, p. 481, août 2002.

[24] J. PLAGNARD, **« Hauts taux de comptage »**,
Cours INSTN « Perfectionnement en spectrométrie gamma », Réf. P049/16/v1, juin 2004.

[25] J. HARMS, **« Automatic Dead-Time Correction for Multichannel Pulse Height Analyzers at Variable Counting Rates »**,
Nuclear Instruments and Methods, Vol. 53, p. 192-196, 1967.

[26] GP. WESTPHAL, **« On the performance of Loss-Free Counting – A method for real-time compensation of dead-time and pile-up losses in nuclear pulse spectroscopy »**,
Nuclear Instruments and Methods, Vol. 163, p. 189-196, 1978.

[27] M. GIACALONE, **« Incertitudes de mesure. cas des forts taux de comptage : Evaluation des incertitudes de mesures induites par l' utilisation d' un tiroir de Westphal »**,
Note technique IRSN/DPAM/SEREA/LEMRA, juin 2004.

[28] MC. LEPY, MM. BE, F. PITON, « **ETNA. logiciel pour le calcul du rendement et des corrections de coïncidences en spectrométrie gamma »**,
Note technique CEA/DRT/DIMRI/LNHB/01/09/F, avril 2001.

[29] O. SIMA, D. ARNOLD, D. DOVLETE, **« GESPECOR - A versatile tool in gamma-ray spectrometry »**,
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 248, No. 2, p. 359-364, 2001.

[30] JF. BRIESMEISTER, **« MCNP – A General Monte-Carlo N-Particle Transport Code »**.
Los Alamos National Laboratory, Manual LA-13709-M, mars 2000.

[31] S. AGOSTINELLI, J. ALLISON, K. AMAKO, **« Geant4 - A Simulation Toolkit »**,
Nuclear Instruments and Methods, Vol. 506 A, p. 250-303, 2003.

[32] C. CERDAN, **« Qualification du calcul des réseaux modérés à l' eau légère et empoisonnés au Gadolinium »**,
Thèse Université Orsay, 25 octobre 1984.

[33] M. DARROUZT, G. GRANGET, L. MARTIN DEIDIER, A. SANTAMARINA. **« Mesures de distributions de puissance et d' effets en réactivité dans les configurations UO_2 et UO_2-PuO_2 réalisées dans MINERVE »**,
Note technique CEA/SEN/091, mars 1980.

[34] L. MARTIN DEIDIER, M. BOST, A. NICOLAS, **« Mesures par activation d' isotopes séparés de produits de fission dans ERMINE »**,
Note technique CEA/SEN/LPRE/80/132, décembre 1980.

[35] V. LAVAL, H. PHILIBERT, **« Dispositif automatique de spectrométrie gamma des réacteurs EOLE et MINERVE »**,
Journée de spectrométrie gamma et X 2002, CEA Saclay – 15, 16 et 17 octobre 2002.

[36] NOTICE CANBERRA**. « Genie 2000 Modules de base – Manuel utilisateur »,**
1997.

[37] P. LECONTE, JP. HUDELOT, M. ANTONY, JM. GIRARD, V. LAVAL, **« Amélioration des mesures de spectrométrie gamma sur crayon combustible irradié – Application au recalage de nappes de puissance sur le cœur MINERVE en configuration R1MOX »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/03-099, octobre 2003.

[38] M. ANTONY, JP. HUDELOT, JM. GIRARD, V. LAVAL, P. LECONTE, **« Réacteur MINERVE – configuration MELODIE IV – R1-UO2, Rapport d'Expérience : Mesures des paramètres physiques du réseau - Programme expérimental Hauts Taux de Combustion (HTC) »,**
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/04-104, octobre 2004

[39] JP. HUDELOT, **« Développement. amélioration et calibration de mesures de taux de réaction neutroniques : élaboration d' une base de techniques standards »**,
Thèse Université Joseph Fourier, Grenoble 1, 19 Juin 1998.

[40] JP. HUDELOT, B. GESLOT, P. LECONTE, C. JAMMES, C. BLANDIN, C. DESTOUCHES, **« Plan d' action P2 pour la maîtrise des incertitudes expérimentales »,**
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-044, mai 2005.

[41] C. CATHALAU, JC. CABRILLAT, JP. CHAUVIN, P. FOUGERAS, G. FLAMENBAUM, PJ. FINCK, H. MATSU-URA, M. UEJI, T. YAMAMOTO, **« MISTRAL : an Experimental Programme in the EOLE Facility Devoted to MOX Core Physics »**,
International Conference on the Physics of Reactors, Mito, Japon, 16-20 septembre 1996.

[42] T. YAMAMOTO, Y. IWATA, M. UEJI, S. CATHALAU, P. FOUGERAS, P. BLAISE, JP. CHAUVIN, A. SANTAMARINA, **« BASALA : Advanced BWR MOX Core Physics Experiments »**,
2000 ANS International Meeting on Advances in Reactor Physics and Mathematics and computation into the next Millennium PHYSOR-2000, Pittsburg, EU, 7-12 mai 2000.

[43] P. BLAISE, JP. HUDELOT, S. CATHALAU, V. LAVAL, H. PHILIBERT, JM. GIRARD, **« Principle of Peak Check measurement and UOx-Mox γ-scanning renormalization »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/03-049, septembre 2003.

[44] B. LAVENIR, **« Mesure du taux de capture du ^{242}Pu »**,
Rapport de stage ENSPG, juin 1999.

[45] JP. HUDELOT, S. CATHALAU, P. BLAISE, V. LAVAL, H. PHILIBERT, G. PERRET, P. FOUGERAS, **« Méthodologie de dépouillement des mesures de pics particuliers ^{92}Sr et ^{140}La – prise en compte des effets d'autoprotection neutronique. d'autoabsorption gamma et de temps mort des chaînes de comptage »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/01-017, mai 2001.

[46] P. LECONTE, **« Mesures générales de taux de comptage – méthodes. corrections. incertitudes. Validation de la correction de temps mort par générateur d'impulsions. Caractérisation des performances de différentes électroniques de mesure »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/04-043, juin 2004.

[47] NOTICE CANBERRA, **« Model 2026 Spectroscopy Amplifier – User's Manual »**,
1999.

[48] NOTICE CANBERRA, **« Model 2024 Spectroscopy Amplifier – User's Manual »**,
1996.

[49] NOTICE CANBERRA, **« Model PCA3 Multichannel Analyzer – User's Manual »**,
1992.

[50] NOTICE CANBERRA, **« Model Multiport II – User's Manual »**,
2001.

[51] NOTICE CANBERRA, **« Model 2060 Digital Signal Processor – User's Manual »**,
1999.

[52] J. PLAGNARD, **« Etude du fonctionnement de l'électronique : DSP 2060 pour la mesure par spectrométrie gamma des fortes activités »**,
Note technique CEA/DRT/DIMRI/LNHB/02-06, mars 2002.

[53] N. REGUIGUI, J. MOREL, H. KRAIEM, A. MAHJOUB, **« Characterization of three digital signal processor systems used in gamma ray spectrometry »**,
Applied Radiation and Isotopes 56, p. 93-97, 2002.

[54] P. LECONTE, **« Optimisation de la chaîne de spectrométrie gamma capture U8 et qualification algorithmes de calcul de surface nette du logiciel GENIE 2000 »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-002, janvier 2005.

[55] V. LAVAL, **« Réalisation d'une mesure en mode PHA avec une carte d'acquisition modèle PCA3 de chez Canberra connectée en sortie d'une chaîne de spectrométrie γ »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/03-094, 2003.

[56] JP. HUDELOT, S. CATHALAU, P. BLAISE, V. LAVAL, H. PHILIBERT, G. PERRET, P. FOUGERAS, **« Méthodologie de dépouillement des mesures de pics particuliers ^{92}Sr et ^{140}La – prise en compte des effets d' autoprotection neutronique, d' autoabsorption gamma et de temps mort des chaînes de comptage »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/01-017 , mai 2001.

[57] Communications privées J. PLAGNARD,
CEA/DRT/DETECS/LNHB/LMA, CEA Saclay.

[58] NOTICE CANBERRA**. « Genie 2000 Customization Tool Manual »,**
1997.

[59] Communications privées JL. MA,
CEA/DEN/DTN/SMTM/LMN,CEA Cadarache.

[60] J. SAEGUSA, T. OISHI, K. KAWASAKI, M. YOSHIZAWA, M. YOSHIDA, T. HONDA, **« Determination of Gamma-ray Efficiency Curves for Volumes Samples by the Combination of Monte-Carlo Simulations and Point Source Calibration »**,
Nuclear Science and Technology, Vol. 37, No. 12, p. 1075-1081, décembre 2000.

[61] GL. MOLNAR, ZS REVAY, T. BELGYA, **« Wide energy range efficiency calibration method for Ge detectors »,**
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Vol. 489 A, p. 140-159, mars 2002.

[62] M. JURADO VARGAS, N. CORNEJO DIAZ, D. PEREZ SANCHEZ, **« Efficiency transfer in the calibration of a coaxial p-type HPGe detector using the Monte-Carlo method »**,
Applied Radiation and Isotopes, Vol. 58, p. 707-712, 2003.

[63] A. SASAHARA, T. MATSUMURA, G. NICOLAOU, D. PAPAIOANNOU, **« Neutron and Gamma Ray Source Evaluation of LWR High Burn-up UO_2 and MOX Spent Fuels »**,
Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 41, No. 4, p. 448-456, avril 2004.

[64] C. PRALONG, **« Investigation of within-pin reaction rate distributions in a highly heterogeneous BWR fuel assembly »**,
Thèse N°2663, Ecole Polytechnique fédérale de Lausanne, 2003.

[65] P. LECONTE, **« Méthodologie de mesure de taux de réaction par spectrométrie γ de pic particulier sur crayon combustible irradié. Identification des biais. maîtrise et propagation des incertitudes associées - Application : recalage de puissance du crayon U/Mo/Al et facteur de conversion modifié sur les échantillons d'oscillation VALMONT »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEX/LPE/05-003, juillet 2005.

[66] D. BERNARD, A. SANTAMARINA, **« Qualification du calcul APOLLO2 de l' effet de peau à partir des mesures par spectrométrie électronique sur des combustibles REP-UOX irradiés »**,
Note Technique CEA/DEN/DER/SPRC/LEPh/04-226, mars 2006.

[67] RG. HELMER, JC. HARDY, VE. IACOB, M. SANCHEZ-VEGA, RG. NEILSON, **« The use of Monte-Carlo calculation in the determination of a Ge detector efficiency curve »**, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Vol. 511 A, p. 360-381, 2003.

[68] MA. LUDINGTON, RG. HELMER, **« High accuracy measurements and Monte-Carlo calculations of the relative efficiency curve of an HPGe detector from 433 to 2754 keV »**, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Vol. 446 A, p. 506-521, 2000.

[69] HO. DENSCHLAG, TR. ENGLAND, AA. GOVERDOVSKI, MF. JAMES, L. TINGJIN, RW. MILLS, G. RUDSTAM, F. STORRER, AC. WAHL, W. DAO, **« Compilation and evaluation of fission yield nuclear data »**,
IAEA, Vienne, TECDOC-1168, ISSN 1011-4289, décembre 2000.

[70] Communications privées RW. Mills,
British Nuclear FueLs (BNFL).

[71] CROSS SECTION EVALUATION WORKING GROUP, **« ENDF-102 Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File ENDF-VI »**,
BNL-NCS-44945-01/04-Rev, 2002.

[72] A. TRKOV, **« AVRFPY (AVeRage Fission Product Yield) »**,
WIMS Library Update Project, 2001.

[73] RF. BURSTALL, **« FISPIN-A computer code for nuclide inventory calculations »**,
ND-R-328 (R), octobre 1979.

[74] A. SANTAMARINA, D. BERNARD, C. CHABERT, A. COURCELLE, P. FOUGERAS, O. LITAIZE, C. MOUNIER, A. SARGENI, G. WILLERMOZ, **« Rapport de qualification R2 du produit APOLLO2.5/CEA93.V6 »**,
Note Technique CEA/DEN/DER/SPRC/LEPh/05-003, janvier 2006.

[75] P. LECONTE, **« Optimisation de la correction de temps mort en temps actif pour la mesure des radionucléides à courte durée de vie »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-110, mars 2006.

[76] RM. CASTRO, VR. VANIN, O. HELENE, PR. PASCHOLATI, NL. MAIDANA, MS. DIAS, MF. KOSKINAS, **« The interplay between the statistical correlations of γ-ray emission probabilities and efficiency calibration »**,
Applied Radiation and Isotopes, Vol. 60, p. 185-190, 2004.

[77] Communications privées JH. SICARD.
CERCA LEA, site du Tricastin. Pierrelatte.

[78] R. TRAMONTANO, VR. VANIN, **« Mixing activity-calibrated and uncalibrated gamma-ray sources in efficiency calibration »**,
Applied Radiation and Isotopes, Vol. 51, p. 323-328, 1999.

[79] MC. LEPY, **« Les coïncidences vraies gamma-gamma et gamma-X – pics sommes »**, Cours INSTN « Perfectionnement en spectrométrie gamma – Application à l' analyse des produits de fission », Réf. P049/14/v1, 2004.

[80] P. BLAISE, N. HUOT, V. LAVAL, A. ROCHE, N. THIOLLAY, P. LECONTE, S. KIKUCHI, **« FUBILA Experimental Report in EOLE – Second part : the FUBILA/NORM 70% and VIDAX cores »,**
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/06-014, avril 2006.

[81] JP. HUDELOT, **« Plan d' action pour la maîtrise des incertitudes expérimentales »**, Note Technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/04-121, 2004.

[82] M. ANTONY, **« Plan d' action pour le développement et l' utilisation commune de logiciels au SPEx »**,
Note Technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-102, 2005.

[83] JP. HUDELOT, **« Programme de principe d' expérience – Programme expérimental VALMONT dans MINERVE »**,
Note Technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/03-101, 2003.

[84] C. DODERLEIN, **« Interprétation du programme VALMONT »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LPN/03-1439, janvier 2006.

[85] M. ANTONY, JP. HUDELOT, JM. GIRARD, V. LAVAL, P. LECONTE, **« Réacteur MINERVE – configuration MELODIE IV - R1-UO2, Rapport d'Expérience : Mesures physiques (Programme expérimental VALMONT) »,**
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/04-087, juin 2004.

[86] M. ANTONY, JP. HUDELOT, **« Caractérisation géométrique et bilan matière du réacteur MINERVE dans la configuration MELODIE IV »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/03-005, 2003.

[87] C. DODERLEIN, **« Bilan matière des échantillons et du crayon du programme VALMONT »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LPN/03-1366, 2003.

[88] JP. HUDELOT, C. CHABERT, **« Calcul d' autoabsorption γ dans un crayon combustible avec le code Monte-Carlo MCNP – Application au cas d' un crayon combustible UO_2 MISTRAL1 irradié »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/01-003, janvier 2001.

[89] M. ANTONY, JP. HUDELOT, JM. GIRARD, V. LAVAl, P. LECONTE, **« Réacteur MINERVE, Configuration MELODIE IV – R1-UO2, Rapport d' Expériences, Mesures Physiques, Programme Expérimental VALMONT »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/04-087, juin 2004.

[90] P. FOUGERAS, C. GARZENNE, Z. STRANKOVSKI, R. AIGLE, **« Generalised Geometry Analysis of the EPICURE Measurements of the Effect of the Radial Displacement of a MOX or UO_2 Fuel Pin »**,
Proceedings of the International Conference on the Physics of Reactors PHYSOR' 96, p. 133, Mito, Japon, 16-20 septembre 1996.

[91] P. FOUGERAS, JP. CHAUVIN, H. PHILIBERT, V. LAVAL, G. IMEL, JP. HUDELOT, **« Experimental Report : Experimental Programme MISTRAL in EOLE – MITSRAL 1 : Homogeneous UO_2 Configuration »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRc/LPEx/97-001, mars 1997.

[92] P. FOUGERAS, S. CATHALAU, JP. CHAUVIN, H. PHILIBERT, V. LAVAL, P. BLAISE, JP. HUDELOT, T. YAMAMOTO, T. UMANO, **« Experimental Report : Experimental Programme MISTRAL in EOLE – MITSRAL 2 : Homogeneous MOX Configuration (Lattice pitch of 1.32 cm) »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRc/LPEx/98-008, novembre 1999.

[93] JP. HUDELOT, R. KLANN, B. MICKLICH, M. ANTONY, G. PERRET, N. THIOLLAY, JM. GIRARD, V. LAVAL, P. LECONTE, **« MINERVE Reactor Characterization in Support of the OSMOSE Program : Safety Parameters »**,
Proceedings of the International Conference on the Physics of Reactor PHYSOR 2004, Chicago, Illinois, 25-29 avril 2004.

[94] Communications privées Philippe BLANCHIS,
CEA/DRT/DETECS/LNHB/LMA, CEA Saclay.

[95] Communications privées JP. HUDELOT,
CEA/DEN/DER/SPEx/LPE, CEA Cadarache.

[96] M. ANTONY, JP. HUDELOT, JM. GIRARD, V. LAVAL, P. LECONTE, **« Réacteur MINERVE – configuration MELODIE IV – R1-UO2, Rapport d'Expérience : Reprise des mesures de taux de conversion modifié sur crayons combustibles (Programme expérimental VALMONT) »,**
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-096, décembre 2005.

[97] JP. HUDELOT, C. CHABERT, **« Programme de Principe d'Expérience – Programme expérimental "Nouveaux absorbants – Poisons consommables" dans MINERVE »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/01-040, 2001.

[98] JP. CHAUVIN, P. NAVARRA, S. CATHALAU, C. CHABERT, JP. HUDELOT, **« Programme de Principe d' Expériences – Programme expérimental OSMOSE dans MINERVE »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/03-005, 2003.

[99] JP. HUDELOT, R. KLANN, B. MICKLICH, M. ANTONY, G. PERRET, N. THIOLLAY, JM. GIRARD, V. LAVAL, P. LECONTE, **« MINERVE Reactor Characterization in Support of the OSMOSE Program : Safety Parameters »**,
PHYSOR 2004 - The Physics of Fuel Cycles and Advanced Nuclear Systems, Chicago, Illinois, 25-29 avril 2004.

[100] C. CHABERT, A. SANTAMRINA, **« Conception d' une expérience de mesure des sections efficaces des absorbants et des poisons consommables dans MINERVE »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LEPh/02-202, avril 2000.

[101] G. NOGUERRE, E. DUPONT, J. TOMMASI, D. BERNARD, **« Besoins en données nucléaires pour les actinides par comparaison avec des expériences de combustibles et d' échantillons irradiés »**
Note Technique CEA/DEN/DER/SPRC/LEPh/05-204, septembre 2005.

[102] M. ANTONY, P. LECONTE, JP. HUDELOT, V. LAVAL, **« Réacteur MINERVE – configuration MELODIE IV – R1-UO2, Mesures de taux de conversion modifié – Programmes expérimentaux OSMOSE / OCEAN »,**
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/06-031, mai 2006.

[103] H. RUELLAN, M.C. LEPY, J. PLAGNARD, **« Présentation du logiciel COLEGRAM »**,
Note technique CEA/DRT/DETECS/LNHB/95-016, 1995.

[104] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, **« Integral capture rate measurements of neutron absorbers and minor actinides by γ-ray spectrometry on specific fuel samples »,**
International Youth Nuclear Congress, Stockholm, Suède, 18-23 juin 2006.

[105] J. ADAM, **« Precision half-life measurement of ^{140}La with Ge-Detector »**,
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Vol. 187 B, p. 419-426, 2002.

[106] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, D BERNARD, **« An innovating γ-spectroscopy experimental technique for measuring the integral capture cross section of actinides »,**
PHYSOR 2006 - Advances in Nuclear Analysis and Simulation, Vancouver, BC, Canada, 10-14 septembre 2006.

[107] A. BENSLIMANE-BOULAND, **« Validation expérimentale du calcul du taux de capture des noyaux intervenant dans le cycle du combustible »**,
Thèse de l' Université Aix-Marseille, 15 septembre 1997.

[108] CR. LUBITZ, RW. ROUSSIN, **« Epithermal capture cross section of ^{235}U »**,
NEA/WPEC-subgroup 18, mai 1995.

[109] A. COURCELLE, **« First conclusions of the WPEC/Subgroup-22 Nuclear Data for improved LEU-LWR reactivity predictions »**,
International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Vol. 769, p. 462-467, 24 mai 2005.

[110] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, **« Measurements of the uranium 238 integral capture rate by γ-ray spectrometry – Comparison with Monte Carlo calculations with the JEF2.2, ENDF/B-VI.8 and JEFF3.1 libraries »,**
The International Conference on Physics and technology of Reactors and Applications, Marrakech, Maroc, 14-16 mars 2007.

[111] A. TRKOV, GL. MOLNAR, ZS REVAY, SF. MUGHABGHAB, RB. FIRESTONE, VG. PRONYAEV, AL. NICHOLS, MC MOXON, **« Revisiting the ^{238}U thermal capture cross section and gamma-ray emission probabilities from ^{239}Np decay »**,
Nuclear Science and Engineering, Vol. 150, p. 336-348, 2005.

[112] GL. MOLNAR, ZS REVAY, T BELGYA, **« Non destructive Interrogation of Uranium using PGAA »**,
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Vol. 213 B, p. 389-393, 2004.

[113] JP. HUDELOT, M. ANTONY, D. BERNARD, P. LECONTE, S. TESTANIERE, P. FOUGERAS, **« OCEAN : an Ambitious Experimental Program for the Qualification of Integral Capture Cross Sections of Neutron Absorbers »**,
International Conference on the Physics of Reactor PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, 10-14 septembre 2006.

[114] AJ. FLIPOT, A. DELBRASSINE, R. GILISSEN, **« Behaviour of uranium oxide fuel containing burnable poisons »**,
Rapport INIS, Réf. mf-1121, janvier 1973

[115] D. CHRISTENSEN, JS. CHOI, A. DISABATINO, B. WIRTH, **« FY2001 Final Report Laboratory Directed Research and Development (LDRD) – Advanced Nuclear Fuel Design in the Future Nuclear Energy Market »**,
Rapport LLNL, Réf. UCLR-ID-145954, septembre 2001.

[116] C. CHABERT, A. COURCELLE, **« Analyse des sections efficaces de l' erbium 166 et 167 – étude de sensibilité associée »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LEDC/04-412, septembre 2004.

[117] A. STANCULESCU, U. KASEMEYER, JM. PARATTE, R. CHAWLA, **« Conceptual studies for pressurised water reactor cores employing plutonium-erbium-zirconium oxide inert matrix fuel assemblies »**,
Journal of Nuclear Materials, Vol. 274, p. 146-152, 1999.

[118] R. ESCHBACH, **« Etude de radiotoxicité de grappes hafnium industrielles »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LECy/05-337, novembre 2005.

[119] G. NOGUERE, A. COURCELLE, P. SIEGLER, J-M. PALAU, O. LITAIZE, **« Révision du domaine de résonances résolues des isotopes de l' hafnium pour JEFF3.1 »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LEPh/05-201, juin 2005.

[120] P. BLANC-TRANCHANT, **« Elaboration et qualification de schémas de calcul de référence pour les absorbants dans les Réacteurs à Eau Pressurisée »**,
Thèse de l' Université Aix-Marseille, 8 novembre 1999 septembre 1997.

[121] N. THIOLLAY, J. P. CHAUVIN, B. ROQUE, A. SANTAMARINA, J. PAVAGEAU, J. P. HUDELOT, H. TOUBON, **« Burnup Credit for Fission Product Nuclides in PWR (UO_2) Spent Fuels »**,
Proceedings of the Sixth International Conference on Nuclear Criticality Safety, Versailles, 20-24 septembre 1999.

[122] IAEA, **« Thorium fuel utilization : Options and trends »**,
IAEA, TECDOC-1319, Vienne, novembre 2002.

[123] D. GRENECHE, WJ. SZYMCZAK, **« The AREVA HTR fuel cycle : Analysis of technical issues and potential industrial solutions »**,
Nuclear Engineering and Design, Vol. 236, p. 635–642, 2006.

[124] L. MATHIEU, **« Cycle thorium et réacteurs à sel fondu. Exploration du champ des paramètres et des contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor »**,
Thèse de l' Institut National Polytechnique de Grenoble, septembre 2005.

[125] J-P. GROUILLER, H. TOUBON, **« La criticité des combustibles usés : comment tirer profit des marges créées par leur usure ? »**,
Clefs CEA – N°45, édition automne 2005.

[126] T. KATOH, S. NAKAMURA, K. FURUTAKA, H. HARADA, K. FUJIWARA, T. FUJI, H. YAMANA, **« Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{237}Np(n,\gamma)^{238}Np$ Reaction »**,
Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 40, No. 8, p. 559-568, Août 2003.

[127] JP. HUDELOT, R. KLANN, M. ANTONY, D. BERNARD, P. FOUGERAS, F. JORION, N. DRIN, L. DONNET, C. LEORIER, Z. ZHONG, **« The OSMOSE Program for the Qualification of Integral Cross Sections of Actinides: Preliminary Results in a PWR-UOx Spectrum »**,
Proceedings of the International Conference on the Physics of Reactor PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, 10-14 septembre 2006.

[128] O. SEROT, A. COURCELLE, **« Gamma production data – Prompt gamma emitted in fission – Review for JEFF3.0 »**,
JEF/DOC-886, novembre 2001.

[129] J-P. HUDELOT, C. DÖDERLEIN, M. ANTONY, J-M. GIRARD, V. LAVAL, P. FOUGERAS, G. WILLERMOZ, P. LECONTE, **« The VALMONT program: accurate experimental techniques to support the neutronic qualification of UMo/Al »**,
RRFM 2005 - 9th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management, Budapest, 10-13 avril 2005.

[130] C. DODERLEIN, **« Interprétation du programme VALMONT »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPRC/LPN/05-1439, janvier 2006.

[131] J-P. HUDELOT, M. ANTONY, P. LECONTE, **« Measurement of gamma-emission probabilities using a combination of activation and oscillation techniques : application to ^{181}Hf and ^{243}Pu »,**
ND-2007, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 22-27 avril 2007.

[132] JP. HUDELOT, R. KLANN, M. ANTONY, D. BERNARD, P. FOUGERAS, F. JORION, N. DRIN, L. DONNET, C. LEORIER, Z. ZHONG, **« The OSMOSE Program for the Qualification of Integral Cross Sections of Actinides : Preliminary Results in a PWR-UOx Spectrum »**,
International Conference on the Physics of Reactor PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, 10-14 septembre 2006.

[133] D. BERNARD, A. SANTAMARINA, **« ^{237}Np XS experimental validation. Proposal for JEFF3 modification »**,
JEF/DOC-1144, mai 2006.

[134] A. TSILANIZARA, CM. DIOP, **« DARWIN : An Evolution code system for a large range of application »**,
Journal of Nuclear Science and Technology, Suppl. 1, p.845-849, mars 2000.

[135] P. LECONTE, **« Révision de la période de décroissance radioactive du strontium 92 »**,
Note technique CEA/DEN/DER/SPEx/LPE/05-111, mars 2006.

[136] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, **« Revisiting the half-life of ^{92}Sr with precise γ-spectroscopy measurements »,**
NEA, JEFF/DOC-1137, mai 2006.

[137] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, **« Precise γ-ray spectrometry measurements of the half-life of ^{92}Sr »,**
ND-2007, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 22-27 avril 2007.

[138] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, **« Precise γ-ray spectrometry measurements of the half-life of ^{92}Sr »,**
Soumis à un comité de lecture pour une parution dans *Nuclear instruments and Methods*, septembre 2006,

[139] B. PARSA, A. ASHARI, L. GOOLVARD, YM. NOBAR, **« Decay scheme of 2.71 h ^{92}Sr »**, Nuclear Physics, Vol. 175 A, p. 629-640, juillet 1971.

[140] G. HERRMANN, **« Uber einige Strontium- und Yttriumisotope bei der Uranspaltung »**, Z. Naturforsch, Vol. 11a, p. 946, 1956.

[141] K. FRITZE, **« The identification and half-life of fission product ^{92}Rb and ^{93}Rb »**, Canadian Journal of Physics, Vol. 38, p. 1614, 1960.

[142] Communications privées Y. NIR-EL,
Soreq Research Centre, Yavne, Israel.

[143] P. LECONTE, J-P. HUDELOT, M. ANTONY, **« Fluctuations of the cumulative fission yield of ^{235}U in the epithermal range »,**
ND-2007, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 22-27 avril 2007.

[144] BD. WILKINS, EP. STEINBERG, RR. CHASMAN, **« Scission-point model of nuclear fission based on deformed-shell effects »**,
Physical Review, Vol. 14, Issue C, p. 1832-1863, 1976.

[145] U. BROSA, S. GROSSMANN, A. MULLER, **« Nuclear Scission »**,
Physical Reports, Vol. 197, No. 4, p. 167, 1990.

[146] FJ. HAMBSCH, G. VLADUCA, A. TUDORA, S. OBERSTEDT, I. RUSKOV, **« Prediction of fission mass-yield distributions based on cross section calculations »**,
Annals of Nuclear Energy, Vol. 32, p. 1297-1304, 2005.

[147] FJ. HAMBSCH, HH. KNITTER, C. BUDTZ-JORGENSEN, **« Fission mode fluctuations in the resonances of ^{235}U(n.f) »**,
Nuclear Physics, Vol. 491 A, p. 56-90, 1989.

[148] Communications privées Patrick BLAISE,
CEA/DEN/DER/SPEx/LPE, CEA Cadarache.

[149] P. FOUILLAUD, **« Production de Données Nucléaires »**,
Compte rendu de réunion CEA/DAM/DRMN/SRNC, 13 mars 2006.

LISTE DES TABLEAUX

Tab. 1 : synthèse des réglages de forme optimums....63
Tab. 2 : pertes de comptage par temps mort pour les différentes chaînes de mesure....64
Tab. 3 : estimateur de type A de l'incertitude sur la correction de temps mort....74
Tab. 4 : influence de la largeur de RI sur le calcul de surface nette....78
Tab. 5 : influence du modèle de soustraction du fond continu sur le calcul de surface nette....78
Tab. 6 : comparaison des méthodes d'ajustement et de sommation....80
Tab. 7 : influence de la valeur de surface nette sur l'ajustement du modèle....80
Tab. 8 : influence de l'énergie des pics sur l'ajustement du modèle....81
Tab. 9 : coefficients d'ajustement du modèle d'évolution temporelle $\theta(t)$....95
Tab. 10 : corrections de coïncidences vraies calculées par ETNA, pour une source ponctuelle placée à 100 mm du détecteur de 65% d'efficacité relative....98
Tab. 11 : corrections de coïncidences vraies des raies γ d'une source de baryum 133....103
Tab. 12 : coefficients d'ajustement du modèle APOLOG aux rendements mesurés....104
Tab. 13 : erreurs sur $T(E_o)$ selon la discrétisation du profil continu de taux de fission....106
Tab. 14 : rendement d'absorption totale du détecteur planaire mesuré et calculé par MCNP4C2....108
Tab. 15 : transferts de rendement d'absorption totale pour un échantillon de combustible UO_2....109
Tab. 16 : conventions pour les évaluations par groupe d'énergie des rendements de fission....110
Tab. 17 : produits de fission étudiés pour la mesure des facteurs de recalage de taux de fission....138
Tab. 18 : déroulement des mesures de facteurs de recalage de taux de fission....139
Tab. 19 : rapports des taux de comptage à saturation du strontium 92 (campagne A)....140
Tab. 20 : rapports des taux de comptage à saturation du lanthane 140 (campagne B)....140
Tab. 21 : rapports des taux de comptage à saturation d'autres produits de fission (campagne C)....141
Tab. 22 : rapports des taux de comptage à saturation du lanthane 140 (campagne B) après correction du biais lié à la correction de temps mort des chaînes de mesure 2026+PCA3....142
Tab. 23 : maillage radiale optimum pour la description de l'hétérogénéité des sources de photons....143
Tab. 24 : profil radial des sources γ dans le combustible UMoAl (*à gauche*) et UO_2 (*à droite*)....144
Tab. 25 : étude comparative des schémas de calcul de transfert de rendement (raie à 293.3 keV)....144
Tab. 26 : synthèse des calculs de rapports de transferts de rendement....145
Tab. 27 : probabilités de fission par isotope fissionnable....146
Tab. 28 : rapports des rendements effectifs de fission entre les combustibles UMoAl et UO_2....146
Tab. 29 : synthèse des facteurs de recalage de taux de fission mesurés (campagne A)....147
Tab. 30 : synthèse des facteurs de recalage de taux de fission mesurés (campagne B)....147
Tab. 31 : synthèse des facteurs de recalage de taux de fission mesurés (campagne C)....147
Tab. 32 : synthèse par produit de fission des facteurs de recalage mesurés....148
Tab. 33 : synthèse finale des facteurs de recalage mesurés....148
Tab. 34 : synthèse finale des facteurs de recalage mesurés (sans le strontium 92)....149
Tab. 35 : comparaison calcul / expérience des facteurs de recalage de taux de fission....150
Tab. 36 : comparaison au profil réel du profil axial mesuré sur le banc de référence....155
Tab. 37 : comparaison au profil réel du profil axial mesuré sur le banc optimisé....157

Tab. 38 : maillage optimisé à gradient constant 159
Tab. 39 : synthèse des laplaciens obtenus à partir du profil intégral et du profil pic particulier 164
Tab. 40 : influence du biais de mesure lié au temps mort sur la détermination du laplacien B_z^2 168
Tab. 41 : radionucléides adaptés pour la mesure d'indice de capture par spectrométrie γ 179
Tab. 42 : descriptif des mesures de taux de conversion de l'uranium 238 sur crayon 182
Tab. 43 : descriptif des mesure de taux de conversion de l'uranium 238 sur échantillon 182
Tab. 44 : descriptif des mesures d'indice de capture d'absorbants neutroniques 182
Tab. 45 : descriptif des mesures d'indice de capture d'actinides 183
Tab. 46 : synthèse des pics les plus sensibles aux paramètres d'analyse 184
Tab. 47 : synthèse des pics nécessitant une correction analytique de leur surface nette 184
Tab. 48 : comparaisons des méthodes de traitement sur la mesure d'activité du ^{243}Pu 186
Tab. 49 : rapports de corrections de temps mort tenant compte de la décroissance radioactive au cours de la mesure 187
Tab. 50 : corrections de coïncidences vraies calculées par ETNA 187
Tab. 51 : rapports de rendements d'absorption totale mesurés (détecteur planaire) 188
Tab. 52 : transferts de rendements calculés pour l'échantillon U20%Al (détecteur coaxial) 190
Tab. 53 : comparaison des mesures d'activité du lanthane 140 obtenues à partie des deux méthodes de calcul des transferts de rendement 191
Tab. 54 : contribution des différents isotopes fissionnables au taux de fission total 192
Tab. 55 : rendements effectifs de fission pour un combustible enrichi à 0.72% 192
Tab. 56 : rendements effectifs de fission pour un combustible de thorium pur 192
Tab. 57 : rapports cadmium de capture par raie γ 193
Tab. 58 : rapports cadmium de capture moyens 194
Tab. 59 : dispersion des résultats de mesure de taux de fission pour les échantillons H1 et H8 195
Tab. 60 : données relatives à l'iode 132 195
Tab. 61 : mesures successives du taux de comptage à saturation de la raie γ du strontium 92 196
Tab. 62 : dispersion des résultats de mesure de taux de fission pour l'échantillon Er170 197
Tab. 63 : rendements de fission de l'iode 135 associé à l'uranium 235 et 238 198
Tab. 64 : rapport d'embranchement de la décroissance $^{91}Sr \rightarrow {}^{91m}Y$ 198
Tab. 65 : dispersion des résultats de mesure de taux de fission pour l'échantillon H3 199
Tab. 66 : dispersion des résultats de mesure de taux de capture pour l'échantillon Hf180 199
Tab. 67 : synthèse des mesures de taux de conversion de l'uranium 238 200
Tab. 68 : synthèse des mesures indice de capture d'absorbants 200
Tab. 69 : synthèse des mesures d'indice de capture d'actinides 201
Tab. 70 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'europium 151 205
Tab. 71 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'europium 153 205
Tab. 72 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du dysprosium 164 206
Tab. 73 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'erbium 170 207

Tab. 74 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'hafnium 180 208
Tab. 75 : principales évaluations de la section intégrale de fission du thorium 232.....208
Tab. 76 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du thorium 232 209
Tab. 77 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) de l'uranium 236 209
Tab. 78 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du neptunium 237.....210
Tab. 79 : principales évaluations de la section intégrale de capture (n,γ) du plutonium 242 210
Tab. 80 : calculs des rapports cadmium de taux de capture.....212
Tab. 81 : synthèse des calculs de taux de conversion de l'uranium 238.....213
Tab. 82 : synthèse des calculs d'indice de capture d'absorbants.....213
Tab. 83 : synthèse des calculs d'indice de capture d'actinides.....214
Tab. 84 : comparaison calcul / expérience de l'indice de capture (n,2n) de l'uranium 238 214
Tab. 85 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 238 216
Tab. 86 : évaluations de la probabilité d'émission de la raie γ à 277.6 keV du neptunium 239.....216
Tab. 87 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 238 obtenus en utilisant les probabilités d'émission γ du neptunium 239 recommandées dans la Réf. [100] 217
Tab. 88 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 238 217
Tab. 89 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'europium 151 et 153 219
Tab. 90 : comparaison calcul / expérience du rapport cadmium de capture du dysprosium 164.....220
Tab. 91 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du dysprosium 164.....219
Tab. 92 : comparaison calcul / expérience du rapport cadmium de capture de l'erbium 170.....222
Tab. 93 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'erbium 170.....221
Tab. 94 : comparaison calcul / expérience du rapport cadmium de capture de l'hafnium 180.....223
Tab. 95 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'hafnium 180 222
Tab. 96 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du thorium 232 223
Tab. 97 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) de l'uranium 236 224
Tab. 98 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du neptunium 237.....225
Tab. 99 : évaluations de la probabilité d'émission de la raie γ à 984 keV du neptunium 238.....225
Tab. 100 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du neptunium 237 obtenus en utilisant les probabilités d'émission γ du neptunium 238 recommandées dans ENSDF 226
Tab. 101 : comparaison calcul / expérience des indices de capture (n,γ) du plutonium 242 226
Tab. 102 : tendances observées sur les données JEFF3.1 229
Tab. 103 : mesures de la période de décroissance du strontium 92 antérieures à 1971.....236
Tab. 104 : synthèses des mesures de constante de décroissance radioactive du strontium 92.....240
Tab. 105 : influence de la période radioactive du strontium 92 sur le recalage de taux de fission (campagne de mesures lanthane 140, détecteur n°4).....241
Tab. 106 : influence de la période radioactive sur la reproductibilité de mesure du strontium 92 (échantillon Pu242).....242

Tab. 107 : influence de la période radioactive du strontium 92 sur la mesure du taux de fission (échantillon Pu242) 242
Tab. 108 : influence de la période radioactive du strontium 92 sur la mesure du taux de fission (échantillon Th232) 242
Tab. 109 : produits de fission étudiés pour la mesure du taux de fission 247
Tab. 110 : corrections de coïncidences vraies calculées pour un dosimètre placé à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative 249
Tab. 111 : rendements d'absorption totale absolus pour une source ponctuelle placée à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative 250
Tab. 112 : transferts de rendement pour un dosimètre placé à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative 251
Tab. 113 : probabilités de fission de l'uranium 235 par groupe d'énergie 252
Tab. 114 : synthèse des rendements effectifs de fission (données JEFF3.1) 253
Tab. 115 : synthèse des taux de fission absolus mesurés sur dosimètre d'uranium 235 254
Tab. 116 : synthèse des rapports cadmium de fission mesurés sur dosimètre d'uranium 235 254
Tab. 117 : χ^2 réduit sur les échantillons de résultats de mesure de taux de fission 256
Tab. 118 : évaluations de la probabilité d'émission de la raie γ à 1383.9 keV du strontium 92 256
Tab. 119 : estimation de la variation relative du rendement de fission de l'uranium 235 en spectre épithermique par rapport à l'évaluation en spectre thermique 259
Tab. 120 : tendances observées sur les sections efficaces de capture dans JEFF3.1 268
Tab. 121 : table de χ^2 / ν pour une probabilité p et un nombre de degrés de liberté ν 301
Tab. 122 : évaluations des périodes radioactives et incertitudes associées 303
Tab. 123 : probabilités d'émission γ et incertitudes associées 304
Tab. 124 : rendements de fission cumulés et incertitudes associées (données JEF2.2) 305
Tab. 125 : rendements de fission cumulés et incertitudes associées (données ENDF/B-VI.8) 306
Tab. 126 : rendements de fission cumulés et incertitudes associées (données JEFF3.1 307
Tab. 127 : rendements d'absorption totale absolus et incertitudes associées (détecteur coaxial d'efficacité relative 65%) 319
Tab. 128 : rapports des rendements d'absorption totale et incertitudes associées (détecteur planaire) 320

LISTE DES FIGURES

Fig. 1 : section efficace de capture (n,γ) de l'uranium 238 17
Fig. 2 : positionnement des maquettes critiques du SPEx dans le processus de qualification 18
Fig. 3 : vue de l'intérieur du cœur EOLE lors du programme BASALA 19
Fig. 4 : vue globale du réacteur MINERVE 20
Fig. 5 : chambres à fission miniatures de 8 mm (*à gauche*) et 1.5 mm (*à droite*) 21
Fig. 6 : mouvement des échantillons lors des oscillations dans MINERVE 22
Fig. 7 : réalisation d'une mesure par spectrométrie γ sur un crayon combustible, après irradiation à 40 W pendant 15 minutes dans le réacteur EOLE 23
Fig. 8 : schéma de principe d'une chaîne de mesure de spectrométrie γ 29
Fig. 9 : spectre γ type 31
Fig. 10 : principe du circuit de rejet d'empilements 33
Fig. 11 : principe de la correction de Westphal 34
Fig. 12 : résolution des pics en fonction de l'énergie 35
Fig. 13 : spectre de produits de fission obtenu 2 heures après irradiation d'un crayon combustible dans le réacteur MINERVE 36
Fig. 14 : vue des bancs de spectrométrie γ utilisés pour la mesure des crayons combustibles 40
Fig. 15 : passeur automatique pour la mesure de profil axial et radial de taux de fission 41
Fig. 16 : banc de spectrométrie γ dédié à la mesure du taux de conversion de l'uranium 238 43
Fig. 17 : pertes de comptage par temps mort sur la chaîne de mesure utilisant la carte PCA3 45
Fig. 18 : spectre d'un crayon MOX mesuré deux heures après irradiation 46
Fig. 19 : schéma du banc dédié aux mesures de profil axial de taux de fission 47
Fig. 20 : vue des différents dispositifs de mesure utilisés dans le cadre de l'étude comparative, de gauche à droite : amplificateur 2026, amplificateur 2024, DSP 2060, carte PCA3, carte MP2. 58
Fig. 21 : mise en forme des signaux réalisée par le DSP 59
Fig. 22 : allure des pics du spectre, dans le cas d'une sous-compensation du PZ (*à gauche*) et d'une compensation correcte du PZ (*à droite*) 60
Fig. 23 : influence du gain sur la résolution (*à gauche*) et sur le temps mort (*à droite*) 61
Fig. 24 : influence du *shaping time* sur la résolution (*à gauche*) et sur le temps mort (*à droite*) pour les chaînes de mesure utilisant un amplificateur analogique 62
Fig. 25 : influence du *rise time* du DSP sur la résolution (*à gauche*) et le temps mort (*à droite*) 62
Fig. 26 : influence du *flat top* du DSP sur la résolution (*à gauche*) et le temps mort (*à droite*) 63
Fig. 27 : influence du circuit de rejet d'empilements sur la hauteur du fond continu 64
Fig. 28 : caractérisation des performances quantitatives de correction de temps mort 65
Fig. 29 : caractérisation des capacités de traitement 66
Fig. 30 : influence du réglage du pôle zéro sur le coefficient gaussien 69
Fig. 31 : courbes d'étalonnage de l'énergie (*à gauche*) et des paramètres de forme (*à droite*) 69
Fig. 32 : taux de comptage en sortie en fonction du taux de comptage en entrée 70
Fig. 33 : temps mort en fonction du taux de comptage en entrée 71
Fig. 34 : pertes de comptage par temps mort en fonction du LT TRIM 72

Fig. 35 : caractérisation de la justesse de la correction de temps mort 73
Fig. 36 : principe de la méthode de sommation pour le calcul de surface nette d' un pic..... 75
Fig. 37 : dissymétrie des pics obtenue pour un détecteur au Ge[HP]..... 76
Fig. 38 : allure des pics observée sur un détecteur au Ge[HP] en fonction de l' énergie..... 77
Fig. 39 : allure du fond continu d' un spectre de produits de fission 78
Fig. 40 : influence de la largeur d' évaluation du fond continu sur le calcul de surface nette 79
Fig. 41 : pics de référence sur un fond linéaire (*à gauche*) et sur un front Compton (*à droite*)..... 82
Fig. 42 : calcul de la surface nette d' un pic superposé à un fond linéaire de hauteur croissante 83
Fig. 43 : calcul de la surface nette d' un pic superposé à un front Compton de hauteur croissante..... 84
Fig. 44 : exemple de multiplet créé artificiellement pour qualifier les calculs de surface nette 85
Fig. 45 : influence de l' écart en énergie des pics d' un multiplet sur le calcul de déconvolution..... 85
Fig. 46 : influence des surfaces nettes des pics d' un multiplet sur le calcul de déconvolution..... 86
Fig. 47 : évolution du temps mort en fonction du temps de décroissance..... 95
Fig. 48 : divergence de puissance par chambre à fission dans MINERVE (cœur R1-UO2)..... 99
Fig. 49 : géométrie des étalons utilisés 101
Fig. 50 : dispositif de centrage et de positionnement des sources pour l' étalonnage en rendement ... 101
Fig. 51 : pré-étalonnage en rendement du détecteur au Ge[HP] de type planaire..... 102
Fig. 52 : étalonnage en rendement d' absorption totale du détecteur coaxial et planaire..... 103
Fig. 53 : profil radial de taux de réaction à 20 couronnes, calculé par APOLLO2 et JEFF3.1, pour un combustible UO_2 à 3% irradié dans le réseau R1-UO2 de MINERVE 107
Fig. 54 : géométrie des schémas de calcul MCNP4C2 de transfert de rendement pour une source d' étalonnage (*à gauche*) et pour un crayon combustible collimaté (*à droite*) 107
Fig. 55 : qualité de l' ajustement en fonction de l' ordre du modèle..... 123
Fig. 56 : coupe axiale de la zone expérimentale du réacteur MINERVE en réseau R1-UO2 138
Fig. 57 : spectre post-irradiation du crayon V (campagne C) 139
Fig. 58 : géométrie type des 4 bancs de mesure utilisés..... 143
Fig. 59 : géométrie du schéma de calcul MCNP4C2 décrivant le réacteur MINERVE - coupe axiale (*à gauche*) et radiale (*à droite*)..... 149
Fig. 60 : profil radial de taux de fission (y = 0) calculé par MCNP4C2 + JEFF3.1..... 150
Fig. 61 : coupe selon X du banc de mesure simulé par MCNP..... 154
Fig. 62 : coupe selon Z du banc de mesure simulé par MCNP 154
Fig. 63 : spectre des principales raies γ d' un crayon combustible, deux heures après irradiation 155
Fig. 64 : provenance axiale des photons contribuant au dépôt d' énergie dans le détecteur..... 156
Fig. 65 : banc de mesure optimisé simulé par MCNP..... 157
Fig. 66 : comparaison des résolutions spatiales des bancs de mesure (combustible à $z_o = 0$)..... 157
Fig. 67 : position des crayons irradiés dans le réseau R1-UO2 du réacteur MINERVE..... 159
Fig. 68 : spectres PHA obtenus sur le banc axial (*à gauche*) et décroissant (*à droite*) 159
Fig. 69 : spectres MCS obtenus sur le banc axial (*à gauche*) et décroissant (*à droite*)..... 160
Fig. 70 : spectres PHA obtenus avant (*à gauche*) et après irradiation (*à droite*), de 50 à 300 keV 161

Fig. 71 : comparaison des profils mesurés par spectrométrie γ intégrale PHA et MCS 162
Fig. 72 : comparaison des profils mesurés par spectrométrie γ intégrale et de pic particulier.....163
Fig. 73 : figure de convergence du laplacien en fonction de la largeur de la zone d'ajustement.....165
Fig. 74 : comparaison du profil pic particulier et du profil calculé par MCNP4C2 + JEFF3.1 166
Fig. 75 : profil axial de taux de fission du crayon UMoAl irradié dans MINERVE 168
Fig. 76 : échantillon d'oscillation OSMOSE 178
Fig. 77 : banc de spectrométrie γ adapté pour la mesure d'échantillons combustible 179
Fig. 78 : dispositif pour la réalisation d'irradiations sous cadmium d'échantillons combustibles 180
Fig. 79 : expérience d'identification du phénomène de fluorescence X du plomb.....180
Fig. 80 : spectre γ de l'échantillon Eu151 enregistré pendant 87 heures, 1 mois après irradiation 183
Fig. 81 : évolution du ratio entre le pic du ^{243}Pu et le pic de fluorescence X du plomb à 84.7 keV 185
Fig. 82 : étalonnage du pic de fluorescence X à 84.7 keV en fonction du comptage intégral 186
Fig. 83 : profils radiaux de taux de capture calculés sur les actinides 189
Fig. 84 : profils radiaux de taux de capture calculés sur les absorbants 189
Fig. 85 : profils radiaux de taux de fission calculés sur les échantillons uranium.....190
Fig. 86 : coefficient de sensibilité du transfert de rendement $T(E)$ en fonction de la densité μ 191
Fig. 87 : coupe radiale de la canne d'oscillation (schéma de calcul MCNP4C2).....211
Fig. 88 : spectre neutronique à 172 groupes de l'échantillon H3 au centre du réseau R1-UO2 212
Fig. 89 : comparaison des sections efficaces de capture (n,2n) et (γ,n) de l'uranium 238.....215
Fig. 90 : comparaison du spectre neutronique et photonique au centre du réseau R1-UO2 215
Fig. 91 : dosimètre d'uranium 235.....238
Fig. 92 : banc de spectrométrie γ utilisé pour la mesure des dosimètres irradiés 238
Fig. 93 : décroissance de l'activité du strontium 92 mesurée sur le détecteur coaxial 239
Fig. 94 : reproductibilité de la mesure du taux de comptage du cobalt 60 239
Fig. 95 : calcul des distributions en masse des fragments de fission de l'uranium 235 pour des neutrons thermiques (*à gauche*) et de l'uranium 238 pour des neutrons de 0.9 MeV (*à droite*).....246
Fig. 96 : spectre γ de dosimètre uranium 235 obtenu 2 heures après irradiation 248
Fig. 97 : calcul de l'autoprotection du dosimètre par une approche à deux niveaux dimensionnels...250
Fig. 98 : spectre de flux neutronique à 172 groupes d'énergie calculé dans le canal d'irradiation (MCNP4C2+JEFF3.1).....251
Fig. 99 : spectre de taux de fission à 172 groupes d'énergie calculé dans le dosimètre (MCNP4C2+JEFF3.1).....252
Fig. 100 : distributions des taux de fissions mesurés par bibliothèque et par produit de fission 255
Fig. 101 : rapport cadmium de fission mesuré en fonction du nombre de masse 257
Fig. 102 : contributions des modes SI et SII à la distribution en masse des rendements de fission (pour des neutrons d'énergie thermique).....258

ANNEXES

ANNEXE A :
DONNEES STATISTIQUES

Le tableau suivant donne les valeurs de χ_p^2/ν pour un nombre de degrés de liberté ν et pour une probabilité *p* :

	p										
ν	0.01	0.025	0.05	0.10	0.20	0.50	0.80	0.90	0.95	0.975	0.99
1	0.00	0.00	0.02	0.06	0.45	1.64	0.20	3.84	6.63	6.63	7.88
2	0.03	0.05	0.11	0.22	0.69	1.61	2.71	3.00	4.61	4.61	5.30
3	0.07	0.12	0.19	0.34	0.79	1.55	2.30	2.60	3.78	3.78	4.28
4	0.12	0.18	0.27	0.41	0.84	1.50	2.08	2.37	3.32	3.32	3.72
5	0.17	0.23	0.32	0.47	0.87	1.46	1.94	2.21	3.02	3.02	3.35
6	0.21	0.27	0.37	0.51	0.89	1.43	1.85	2.10	2.80	2.80	3.09
7	0.24	0.31	0.40	0.55	0.91	1.40	1.77	2.01	2.64	2.64	2.90
8	0.27	0.34	0.44	0.57	0.92	1.38	1.72	1.94	2.51	2.51	2.74
9	0.30	0.37	0.46	0.60	0.93	1.36	1.67	1.88	2.41	2.41	2.62
10	0.32	0.39	0.49	0.62	0.93	1.34	1.63	1.83	2.32	2.32	2.52
11	0.35	0.42	0.51	0.64	0.94	1.33	1.60	1.79	2.25	2.25	2.43
12	0.37	0.44	0.53	0.65	0.95	1.32	1.57	1.75	2.18	2.18	2.36
15	0.42	0.48	0.57	0.69	0.96	1.29	1.55	1.67	2.04	2.04	2.19
20	0.48	0.54	0.62	0.73	0.97	1.25	1.49	1.57	1.88	1.88	2.00
25	1.88	1.77	1.63	1.51	1.38	1.23	0.97	0.76	0.66	0.58	0.52
30	0.56	0.62	0.69	0.78	0.98	1.21	1.38	1.46	1.70	1.70	1.79
40	0.61	0.66	0.73	0.81	0.98	1.18	1.34	1.39	1.59	1.59	1.67
50	0.65	0.70	0.75	0.83	0.99	1.16	1.30	1.35	1.52	1.52	1.59
60	0.67	0.72	0.77	0.84	0.99	1.15	1.26	1.32	1.47	1.47	1.53
70	0.70	0.74	0.79	0.86	0.99	1.14	1.24	1.29	1.43	1.43	1.49
80	0.71	0.75	0.80	0.87	0.99	1.13	1.22	1.27	1.40	1.40	1.45
90	0.73	0.77	0.81	0.87	0.99	1.12	1.21	1.26	1.38	1.38	1.43
100	0.74	0.78	0.82	0.88	0.99	1.12	1.20	1.24	1.36	1.36	1.40

Tab. 127 : table de χ^2/ν pour une probabilité *p* et un nombre de degrés de liberté ν

Le test du χ^2 bilatéral à ν degrés de liberté est dit significatif au niveau de confiance $(1-\alpha)$ (ou au risque de première espèce α) si le rapport entre la variance externe s_{ext}^2 et la variance interne u_{int}^2 est extérieur à l'intervalle $[\chi^2_{\alpha/2}/\nu \ ; \ \chi^2_{1-\alpha/2}/\nu \ ]$. On peut alors conclure que :

- $s_{ext} < u_{\text{int}}$ si $s_{ext}^2 / u_{\text{int}}^2 < \chi^2_{\alpha/2}/\nu$
- $s_{ext} > u_{\text{int}}$ si $s_{ext}^2 / u_{\text{int}}^2 > \chi^2_{1-\alpha/2}/\nu$

Si $s_{ext}^2 / u_{\text{int}}^2$ appartient à l'intervalle $[\chi^2_{\alpha/2}/\nu \ ; \ \chi^2_{1-\alpha/2}/\nu \ ]$, on peut seulement conclure que l'incertitude sur l'estimation de la variance ne permet pas d'admettre de différence entre s_{ext}^2 et u_{int}^2.

ANNEXE B :

DONNEES NUCLEAIRES DE BASE

Le tableau suivant donne les évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 des périodes radioactives de tous les radionucléides étudiés :

	JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1	
Radionucléide	$T_{1/2}$ (s)	$u(T_{1/2})$ (s)	$T_{1/2}$ (s)	$u(T_{1/2})$ (s)	$T_{1/2}$ (s)	$u(T_{1/2})$ (s)
^{88}Kr	10224	72	10224	108	10224	108
^{88}Rb	1068	6	1067	7	1068	6
^{91}Sr	34272	216	34272	216	34668	180
^{91m}Y	2983	2	2983	4	2983	3
^{92}Sr	9756	36	9756	36	9756	36
^{103}Ru	3399840	4320	3392064	1728	3392060	1728
^{132}Te	281520	2880	281520	2880	276826	1123
^{131}I	694656	864	694656	864	693213	164
^{132}Te	281520	2880	281520	2880	276826	1123
^{132}I	8280	108	8222	4	8262	47
^{133}I	74880	360	74880	360	74880	360
^{135}I	23796	36	23652	72	23652	72
^{140}La	144972	25	144948	60	145026	18
^{140}Ba	1100740	4320	1101773	259	1102900	1296
^{143}Ce	118800	720	118800	720	119160	180
^{143}La	848	10	848	10	848	10
^{152}Eu	420370000	1261400	420653800	1262277	426807000	441797
^{154}Eu	271395000	3155760	271137100	157785	271166000	120959
^{165}Dy	8402	22	8402	22	8402	22
^{171}Dy	27070	110	-	-	27058	7
^{181}Hf	3663360	8640	-	-	3661630	5184
^{233}Pa	2332800	8640	2332800	8640	2332800	8640
^{233}Th	1338	6	1338	6	1338	6
^{237}U	583200	864	583200	864	583200	864
^{238}Np	182909	173	182909	173	182909	173
^{239}Np	203500	346	203472	346	203472	346
^{239}U	1408	3	1408	3	1408	3
^{243}Pu	17842	11	17842	11	17842	11

Tab. 128 : évaluations des périodes radioactives et incertitudes associées

Le tableau suivant donne les évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 des probabilités d'émission de toutes les raies γ étudiées :

		JEF2.2		ENDF/B-VI.8		JEFF3.1	
Radionucléide	E (keV)	$I_\gamma(E)$ ($\times 10^{-2}$)	$u(I_\gamma(E))$ ($\times 10^{-2}$)	$I_\gamma(E)$ ($\times 10^{-2}$)	$u(I_\gamma(E))$ ($\times 10^{-2}$)	$I_\gamma(E)$ ($\times 10^{-2}$)	$u(I_\gamma(E))$ ($\times 10^{-2}$)
^{88}Rb	1836.0	21.40	0.26	21.40	1.22	22.40	0.80
^{91m}Y	555.6	94.88	0.60	94.90	0.57	95.00	0.30
^{91}Sr	749.8	23.61	1.63	23.61	1.63	23.68	0.80
^{92}Sr	1383.9	90.00	10.63	90.00	10.63	93.00	0.60
^{103}Ru	497.1	88.90	2.76	90.90	0.27	91.00	1.22
^{131}I	364.5	81.24	1.62	81.24	1.14	81.20	0.80
^{132}Te	228.2	88.20	0.40	88.20	0.40	88.00	3.48
^{132}I	522.7	16.09	0.62	16.09	0.59	15.99	0.49
^{132}I	630.2	13.72	0.62	13.72	0.59	13.32	0.39
^{132}I	954.6	18.06	0.63	18.06	0.59	17.57	0.49
^{132}I	1398.6	7.11	0.31	7.11	0.30	7.01	0.20
^{133}I	529.9	86.31	1.74	87.00	2.65	87.00	2.65
^{135}I	1260.4	28.94	0.95	28.90	0.17	28.70	0.92
^{135}I	1678.0	9.64	0.39	9.62	0.20	9.56	0.36
^{135}I	1706.5	4.14	0.18	4.13	0.12	4.10	0.17
^{140}La	487.0	45.90	0.40	44.27	0.76	45.52	0.38
^{140}La	1596.2	95.40	0.08	95.40	0.08	95.42	0.05
^{143}Ce	293.3	42.00	1.68	42.80	0.42	42.80	0.42
^{152}Eu	344.3	26.58	0.19	26.58	0.19	26.58	0.12
^{152}Eu	964.1	14.62	0.06	14.62	0.06	14.62	0.06
^{152}Eu	1408.0	20.85	0.08	20.85	0.08	20.84	0.09
^{154}Eu	1004.7	17.40	0.44	17.89	0.32	17.89	0.15
^{154}Eu	1274.4	35.50	0.79	35.50	0.71	35.00	0.10
^{165}Dy	279.8	0.50	0.03	0.50	0.06	0.50	0.05
^{165}Dy	361.7	0.84	0.04	0.84	0.09	0.84	0.09
^{171}Er	295.9	28.90	0.80	-	-	28.90	1.18
^{171}Er	308.3	64.40	1.60	-	-	64.40	2.51
^{181}Hf	345.9	12.00	1.00	-	-	15.15	0.09
^{181}Hf	482.2	83.00	1.00	-	-	80.60	0.20
^{233}Pa	300.1	6.64	0.12	6.63	0.06	6.62	0.06
^{233}Pa	312.0	38.60	0.50	38.63	0.39	38.65	0.40
^{237}U	208.0	21.60	0.50	21.60	0.50	21.60	0.50
^{238}Np	984.5	27.80	0.80	27.80	0.83	27.80	0.80
^{238}Np	1028.5	20.29	1.00	20.30	1.01	20.29	1.00
^{239}Np	277.6	14.38	0.43	14.38	0.21	14.38	0.43
^{243}Pu	84.0	23.00	2.00	23.00	2.00	23.00	2.00
^{243}Pu	381.7	0.55	0.07	0.55	0.07	0.55	0.07

Tab. 129 : probabilités d'émission γ et incertitudes associées

Les trois tableaux suivants donnent les évaluations JEF2.2, ENDF/B-VI.8 et JEFF3.1 des rendements de fission cumulés de tous les produits de fission étudiés, produits à partir des six isotopes fissionnables étudiés au cours de la thèse :

Produit de fission	Isotope fissile	$Y_{thermal}$ ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{thermal})$ ($\times 10^{-2}$)	Y_{fast} ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{fast})$ ($\times 10^{-2}$)	Y_{high} ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{high})$ ($\times 10^{-2}$)
^{88}Kr	^{232}Th	-	-	6.65	0.39	4.82	0.38
	^{235}U	3.47	0.30	3.65	0.47	3.53	0.46
	^{236}U	-	-	3.09	0.49	-	-
	^{238}U	-	-	2.08	0.14	1.99	0.25
	^{237}Np	2.24	0.39	2.14	0.20	-	-
	^{242}Pu	-	-	0.83	0.10	-	-
^{91}Sr	^{232}Th	-	-	6.86	0.02	5.91	0.05
	^{235}U	5.88	0.08	5.39	0.06	4.63	0.22
	^{236}U	-	-	5.21	0.05	-	-
	^{238}U	-	-	4.14	0.01	3.77	0.06
	^{237}Np	3.73	0.13	3.85	0.08	-	-
	^{242}Pu	-	-	1.79	0.03	-	-
^{92}Sr	^{232}Th	-	-	7.04	0.11	5.33	0.20
	^{235}U	5.99	0.32	5.81	0.30	4.70	0.54
	^{236}U	-	-	5.62	0.23	-	-
	^{238}U	-	-	4.23	0.08	3.78	0.24
	^{237}Np	4.21	0.49	4.42	0.28	-	-
	^{242}Pu	-	-	2.15	0.12	-	-
^{103}Ru	^{232}Th	-	-	-	-	-	-
	^{235}U	3.02	0.23	3.29	0.26	3.39	0.38
	^{236}U	-	-	4.62	0.39	-	-
	^{238}U	-	-	6.07	0.23	4.46	0.48
	^{237}Np	5.93	0.86	5.38	0.46	-	-
	^{242}Pu	-	-	5.93	0.68	-	-
^{131}I	^{232}Th	-	-	1.71	0.06	2.31	0.12
	^{235}U	2.89	0.03	3.33	0.06	3.93	0.13
	^{236}U	-	-	3.09	0.26	-	-
	^{238}U	-	-	3.30	0.07	3.83	0.10
	^{237}Np	3.79	0.86	3.48	0.11	-	-
	^{242}Pu	-	-	3.09	0.12	-	-
^{132}Te	^{232}Th	-	-	2.82	0.09	3.08	0.14
	^{235}U	4.25	0.04	4.60	0.10	4.30	0.17
	^{236}U	-	-	4.08	0.23	-	-
	^{238}U	-	-	5.07	0.10	4.71	0.06
	^{237}Np	4.25	0.51	4.57	0.14	-	-
	^{242}Pu	-	-	4.46	0.16	-	-
^{133}I	^{232}Th	-	-	4.47	0.26	4.09	0.21
	^{235}U	6.61	0.09	6.61	0.17	5.52	0.32
	^{236}U	-	-	6.88	0.59	-	-
	^{238}U	-	-	6.73	0.45	5.74	0.32
	^{237}Np	6.52	0.58	6.71	0.13	-	-
	^{242}Pu	-	-	6.80	0.30	-	-
^{135}I	^{232}Th	-	-	5.43	0.34	5.90	0.60
	^{235}U	6.32	0.18	5.92	0.33	5.10	0.58
	^{236}U	-	-	6.06	0.28	-	-
	^{238}U	-	-	6.55	0.50	5.42	0.34
	^{237}Np	7.22	0.64	7.02	0.27	-	-
	^{242}Pu	-	-	6.84	0.35	-	-
^{140}Ba	^{232}Th	-	-	7.80	0.43	5.68	0.23
	^{235}U	6.28	0.07	5.78	0.06	4.30	0.06
	^{236}U	-	-	5.77	0.46	-	-
	^{238}U	-	-	5.74	0.41	4.70	0.22
	^{237}Np	6.01	0.64	5.86	0.11	-	-
	^{242}Pu	-	-	5.68	0.32	-	-
^{143}Ce	^{232}Th	-	-	6.49	0.58	4.84	0.47
	^{235}U	5.94	0.43	5.69	0.59	3.87	0.19
	^{236}U	-	-	5.01	0.62	-	-
	^{238}U	-	-	4.82	0.41	3.96	0.55
	^{237}Np	5.05	0.72	4.74	0.32	-	-
	^{242}Pu	-	-	4.61	0.56	-	-

Tab. 130 : rendements de fission cumulés et incertitudes associées (données JEF2.2)

Produit de fission	Isotope fissile	$Y_{thermal}$ ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{thermal})$ ($\times 10^{-2}$)	Y_{fast} ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{fast})$ ($\times 10^{-2}$)	Y_{high} ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{high})$ ($\times 10^{-2}$)
^{88}Kr	^{232}Th	-	-	7.26	0.15	5.33	0.32
	^{235}U	3.55	0.07	3.44	0.07	3.27	0.09
	^{236}U	-	-	2.88	0.17	2.59	0.83
	^{238}U	-	-	2.03	0.06	2.16	0.04
	^{237}Np	2.23	0.18	2.10	0.13	1.49	0.48
	^{242}Pu	0.87	0.39	0.83	0.07	1.17	0.09
^{91}Sr	^{232}Th	-	-	7.36	0.15	5.99	0.24
	^{235}U	5.83	0.06	5.73	0.11	4.81	0.19
	^{236}U	-	-	5.50	0.22	4.25	0.68
	^{238}U	-	-	4.04	0.08	3.87	0.11
	^{237}Np	3.66	0.40	3.93	0.16	2.67	0.29
	^{242}Pu	1.69	0.54	1.80	0.14	2.12	0.17
^{92}Sr	^{232}Th	-	-	6.92	0.19	5.51	0.33
	^{235}U	5.94	0.08	5.84	0.12	5.06	0.56
	^{236}U	-	-	5.61	0.34	4.79	1.10
	^{238}U	-	-	4.31	0.12	3.88	0.11
	^{237}Np	4.17	0.46	4.37	0.17	4.01	0.92
	^{242}Pu	2.05	0.66	2.15	0.13	2.39	0.26
^{103}Ru	^{232}Th	-	-	0.16	0.01	0.89	0.07
	^{235}U	3.03	0.04	3.24	0.05	3.20	0.09
	^{236}U	-	-	4.16	0.96	3.21	0.51
	^{238}U	-	-	6.28	0.09	4.62	0.09
	^{237}Np	5.78	0.46	5.56	0.16	4.33	0.69
	^{242}Pu	6.23	1.00	6.54	1.05	5.68	0.45
^{131}I	^{232}Th	-	-	1.62	0.06	2.82	0.17
	^{235}U	2.89	0.03	3.22	0.05	4.10	0.16
	^{236}U	-	-	2.95	0.12	3.81	0.61
	^{238}U	-	-	3.29	0.05	3.99	0.08
	^{237}Np	3.16	0.25	3.60	0.07	4.09	0.33
	^{242}Pu	2.62	0.42	3.11	0.12	3.78	0.23
^{132}Te	^{232}Th	-	-	2.87	0.06	3.30	0.13
	^{235}U	4.29	0.06	4.66	0.09	4.09	0.16
	^{236}U	-	-	4.37	0.26	4.53	0.50
	^{238}U	-	-	5.13	0.07	4.65	0.07
	^{237}Np	4.53	0.50	4.75	0.19	3.98	0.64
	^{242}Pu	3.96	0.91	4.47	0.27	5.10	0.14
^{133}I	^{232}Th	-	-	5.52	0.15	5.10	0.31
	^{235}U	6.28	0.09	6.30	0.25	4.22	0.34
	^{236}U	-	-	5.97	0.24	4.78	1.10
	^{238}U	-	-	6.94	0.10	5.50	0.11
	^{237}Np	6.90	0.76	6.71	0.19	4.16	0.96
	^{242}Pu	7.39	1.18	6.85	0.41	5.83	0.47
^{135}I	^{232}Th	-	-	5.52	0.15	5.10	0.31
	^{235}U	6.28	0.09	6.30	0.25	4.22	0.34
	^{236}U	-	-	5.97	0.24	4.78	1.10
	^{238}U	-	-	6.94	0.10	5.50	0.11
	^{237}Np	6.90	0.76	6.71	0.19	4.16	0.96
	^{242}Pu	7.39	1.18	6.85	0.41	5.83	0.47
^{140}Ba	^{232}Th	-	-	7.88	0.22	5.99	0.24
	^{235}U	6.21	0.06	5.98	0.06	4.49	0.13
	^{236}U	-	-	5.64	0.11	4.10	0.33
	^{238}U	-	-	5.82	0.04	4.61	0.06
	^{237}Np	6.01	0.48	5.49	0.11	4.81	0.53
	^{242}Pu	6.02	0.96	5.45	0.60	4.87	0.39
^{143}Ce	^{232}Th	-	-	6.65	0.19	5.12	0.31
	^{235}U	5.96	0.08	5.73	0.08	3.81	0.11
	^{236}U	-	-	5.76	0.23	3.94	0.32
	^{238}U	-	-	4.62	0.06	3.91	0.08
	^{237}Np	5.04	0.40	4.65	0.19	3.54	0.57
	^{242}Pu	4.55	0.73	4.55	0.27	3.63	0.29

Tab. 131 : rendements de fission cumulés et incertitudes associées (données ENDF/B-VI.8)

Produit de fission	Isotope fissile	$Y_{thermal}$ ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{thermal})$ ($\times 10^{-2}$)	Y_{fast} ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{fast})$ ($\times 10^{-2}$)	Y_{high} ($\times 10^{-2}$)	$u(Y_{high})$ ($\times 10^{-2}$)
^{88}Kr	^{232}Th	-	-	7.05	0.40	5.07	0.25
	^{235}U	3.54	0.06	3.72	0.26	3.50	0.34
	^{236}U	-	-	3.12	0.54	-	-
	^{238}U	-	-	2.32	0.09	2.22	0.16
	^{237}Np	2.26	0.20	2.20	0.05	-	-
	^{242}Pu	-	-	0.87	0.04	-	-
^{91}Sr	^{232}Th	-	-	7.12	1.35	5.85	0.28
	^{235}U	5.85	0.05	5.37	0.12	4.58	0.14
	^{236}U	-	-	5.20	0.28	-	-
	^{238}U	-	-	4.16	0.14	3.63	0.08
	^{237}Np	3.74	0.33	3.84	0.08	-	-
	^{242}Pu	-	-	1.77	0.08	-	-
^{92}Sr	^{232}Th	-	-	7.07	0.28	5.39	0.20
	^{235}U	6.03	0.07	5.86	0.16	4.94	0.75
	^{236}U	-	-	6.08	1.37	-	-
	^{238}U	-	-	4.37	0.16	3.82	0.06
	^{237}Np	4.28	0.31	4.48	0.13	-	-
	^{242}Pu	-	-	2.19	0.10	-	-
^{103}Ru	^{232}Th	-	-	0.15	0.01	0.88	0.06
	^{235}U	3.10	0.08	3.25	0.04	3.14	0.11
	^{236}U	-	-	3.84	0.50	-	-
	^{238}U	-	-	6.03	0.10	4.49	0.09
	^{237}Np	5.96	0.51	5.43	0.69	-	-
	^{242}Pu	-	-	5.91	2.33	-	-
^{131}I	^{232}Th	-	-	1.51	0.08	2.31	0.14
	^{235}U	2.88	0.03	3.36	0.05	4.11	0.14
	^{236}U	-	-	2.99	0.31	-	-
	^{238}U	-	-	3.32	0.08	3.62	0.17
	^{237}Np	3.45	0.68	3.74	0.10	-	-
	^{242}Pu	-	-	3.10	0.09	-	-
^{132}Te	^{232}Th	-	-	2.60	0.10	2.98	0.15
	^{235}U	4.28	0.04	4.64	0.07	3.85	0.16
	^{236}U	-	-	4.04	0.23	-	-
	^{238}U	-	-	4.76	0.17	4.68	0.07
	^{237}Np	4.26	0.32	4.57	0.16	-	-
	^{242}Pu	-	-	4.47	0.13	-	-
^{133}I	^{232}Th	-	-	4.53	0.19	4.12	0.21
	^{235}U	6.59	0.11	6.61	0.13	5.42	0.40
	^{236}U	-	-	6.65	0.59	-	-
	^{238}U	-	-	6.71	0.23	5.74	0.17
	^{237}Np	6.55	0.36	6.68	0.19	-	-
	^{242}Pu	-	-	6.83	0.20	-	-
^{135}I	^{232}Th	-	-	5.45	0.26	5.08	0.35
	^{235}U	6.39	0.22	6.01	0.18	4.75	1.35
	^{236}U	-	-	6.02	0.25	-	-
	^{238}U	-	-	6.42	0.27	5.32	0.12
	^{237}Np	7.32	0.39	6.87	0.21	-	-
	^{242}Pu	-	-	6.77	0.16	-	-
^{140}Ba	^{232}Th	-	-	7.71	0.25	5.69	0.20
	^{235}U	6.31	0.09	5.96	0.05	4.47	0.08
	^{236}U	-	-	5.85	0.65	-	-
	^{238}U	-	-	5.97	0.08	4.62	0.04
	^{237}Np	6.08	0.41	5.74	0.13	-	-
	^{242}Pu	-	-	5.66	0.19	-	-
^{143}Ce	^{232}Th	-	-	6.49	0.30	4.96	0.24
	^{235}U	5.95	0.08	5.53	0.06	4.02	0.54
	^{236}U	-	-	5.10	1.41	-	-
	^{238}U	-	-	4.68	0.11	3.85	0.06
	^{237}Np	4.93	0.52	4.71	0.11	-	-
	^{242}Pu	-	-	4.58	0.12	-	-

Tab. 132 : rendements de fission cumulés et incertitudes associées (données JEFF3.1)

ANNEXE C :
CODES ET SCHEMAS DE CALCUL

1 EQUATION DE BOLTZMANN

La neutronique est une branche de la physique qui possède la particularité d'être intermédiaire entre le domaine macroscopique et microscopique. Fondamentalement, elle décrit le cheminement et l'interaction des neutrons avec les atomes de la matière. Cependant, la population des neutrons étant très nombreuse (de l'ordre de 100 millions par cm^3 dans le cas d'un REP), elle peut être décrite par un traitement statistique, en l'assimilant à un « fluide » continu **[6]**.

Cette approche conduit à utiliser une équation, issue des travaux de Ludwig Boltzmann sur la cinétique des gaz en 1872, pour décrire les propriétés de cette population de neutrons. En particulier, l'équation de Boltzmann vise à déterminer le flux angulaire des neutrons $\Psi(\vec{r},E,\vec{\Omega},t)$ qui sont positionnés, à l'instant t, au point de coordonnées $\vec{r}$, avec une énergie *E,* et qui se déplacent selon la direction $\vec{\Omega}$. Ce flux angulaire est relié au flux scalaire $\Phi(\vec{r},E,t)$ par l'expression :

$$\Phi(\vec{r},E,t)=\int_{4\pi}\Psi(\vec{r},E,\vec{\Omega},t)d\vec{\Omega}$$

On trouve dans cette équation, deux opérateurs mathématiques qui traduisant les deux facettes de la migration des neutrons. Il s'agit des opérateurs de transport et de collision, qui décrivent respectivement le parcours en ligne droite des neutrons et leur interaction avec un noyau atomique.

Sous sa forme générale, l'équation de Boltzmann est extrêmement complexe à résoudre. Dans la plupart des cas, on a recours à un traitement numérique, moyennant des approximations physiques et des simplifications appropriées. En pratique, elle peut être écrite sous deux formes :

- **La forme intégro-différentielle :**

$$\frac{1}{v}\frac{\partial\Psi(\vec{r},E,\vec{\Omega},t)}{\partial t}+\vec{\Omega}.\nabla\Psi(\vec{r},E,\vec{\Omega},t)+\Sigma_t(\vec{r},E,\vec{\Omega}).\Psi(\vec{r},E,\vec{\Omega},t)=$$
$$S_a+\chi(E)\int_{E'=0}^{\infty}\int_{4\pi}\nu(E')\Sigma_f(E')\Psi(\vec{r},E',\vec{\Omega}',t)dE'd\vec{\Omega}'+\int_{E'=0}^{\infty}\int_{4\pi}\Sigma_s(\vec{r},E'\to E,\vec{\Omega}'\to\vec{\Omega})\Psi(\vec{r},E',\vec{\Omega}',t)dE'd\vec{\Omega}' \quad \textbf{(98)}$$

v est la vitesse scalaire des neutrons,

S_a est un terme correspondant à la présence éventuelle d'une source externe de neutrons,

ν(E) est le nombre de neutrons libérés par fission à l'énergie *E*,

χ(E) est le spectre de fission : $\chi(E)dE=k\sqrt{E}\exp(-E/T)dE$ avec $k=2\pi/(\pi T)^{3/2}$,

Σ_t est la section efficace macroscopique totale,

Σ_s est la section efficace macroscopique de fission,

Σ_s est la section efficace macroscopique de diffusion.

- **La forme intégrale :**

$$\Phi(\vec{r},E,t)=\int_0^{\infty}\exp(-\tau)Q(\vec{r}-s\vec{\Omega},E,\vec{\Omega})ds \qquad \textbf{(99)}$$

s est la distance entre le point d' émission ou de ré-émission des neutrons dans la direction $\vec{\Omega}$, et le point où ils sont observés sans collision avec la matière,

τ est le parcours optique, défini par l' intégrale suivante :

$$\tau=\int_0^{s}\Sigma_t(\vec{r}-s'\vec{\Omega},E,\vec{\Omega})ds'$$

Mathématiquement, les deux formes sont équivalentes : on passe de l' une à l' autre par intégration ou dérivation. Numériquement en revanche, elles conduisent à des méthodes de traitement différentes et complémentaires.

2 CODES DE CALCUL

2.1 Code APOLLO2

APOLLO2 est un code de calcul neutronique modulaire, développé en langage FORTRAN 77. Il résout l' équation de Boltzmann, soit sous sa forme intégrale,par la méthode des probabilités de collision (P_{ij}), soit sous sa forme intégro-différentielle, par la méthode des ordonnées discrètes (S_N).

Pour cela, il utilise une bibliothèque de sections efficaces multigroupes (exemple : CEA93), obtenue par **condensation d' évaluations continues**(exemple : JEF2.2), selon des découpages à 99, 172 et 281 groupes. Ces sections σ_i sont déterminées de la façon suivante :

$$\sigma_i=\frac{\int_{groupe\ i}\sigma(E)\varphi(E)dE}{\int_{groupe\ i}\varphi(E)dE}$$

où $\varphi(E)$ est le flux de pondération de la section qui conditionne la précision du traitement multigroupe.

Pour un réacteur de type REP, on adopte un flux conventionnel, supposé proche du spectre réel, constitué d' une composante thermique (spectre de Maxwell), d' une composante de ralentissement (proportionnelle à la léthargie) et d' une composante rapide (spectre de Watt).

A partir de cette bibliothèque de sections microscopiques, le code utilise les compositions isotopiques initiales et les caractéristiques de chaque milieu, décrites par l' utilisateur, pour constituer une bibliothèque de sections macroscopiques. Lors de sa constitution, le code distingue deux familles de noyaux :

- *les noyaux non résonnants*, pour lesquels quel que soit le domaine d' énergie, les sections efficaces varient lentement et de façon régulière avec la léthargie,

- *les noyaux résonnants*, pour lesquels les sections efficaces présentent des variations locales de plusieurs décades avec la léthargie (phénomène de résonance). Lorsque la section efficace d'un noyau présente un pic de résonance à une énergie donnée, les neutrons présents à cette énergie ont une probabilité plus grande d'interagir avec le noyau. Le creusement local du flux qui en résulte et qui modifie le taux de réaction, est appelé « phénomène d'autoprotection ».

La résolution « exacte » de l'équation du transport des neutrons nécessiterait un nombre très important d'informations sur les sections efficaces, pour décrire leur dépendance énergétique. Par exemple, le calcul de flux pour des noyaux lourds à résonances étroites impose un traitement à plusieurs dizaines de milliers de groupes d'énergie. La discrétisation à 99 ou 172 groupes n'est donc pas suffisante pour décrire finement ce phénomène. En effet, dans un groupe d'énergie donné, il peut se présenter une ou plusieurs résonances. Dans ce cas, le flux de ralentissement n'est pas représentatif du flux réel puisqu'il ne prend en compte ni le creusement de fluxqui s'opère pour chaque résonance (dépendance énergétique), ni la présence d'autres noyaux résonnants dans les régions voisines (dépendance en espace). Il faut donc définir un formalisme permettant de réévaluer la valeur de ces section résonnantes, appelées « **sections autoprotégées** », pour que les taux de réaction soient conservés avec un flux multigroupe non modifié. Pour cela le code réalise alors :

- le traitement de l'*autoprotection spatiale*, par le formalisme de la matrice de dilution qui prend en compte la variation spatiale du flux et les effets d'interaction entre mélanges similaires,
- le traitement de l'*autoprotection énergétique*, par le modèle de résonance étroite, le modèle de résonance large ou le modèle statistique.

Une fois le traitement de l'autoprotection réalisé, le code résout l'équation de Boltzmann par la méthode de calcul adaptée. Pour des structures hétérogènes avec des cellules de plusieurs types, telles que rencontrées pour des géométries d'assemblage de typeREP, la méthode des probabilités de collision, avec un découpage en petits volumes s'appuyant sur la structure réelle du réseau, est la plus appropriée. Le code est en mesure de traiter deux types de **représentation géométrique** :

- soit *une cellule* plane, sphérique ou cylindrique,
- soit *un réseau de cellules*, avec plusieurs couplages possibles entre les cellules du motif.

Pour déterminer les caractéristiques neutroniques en espace et en énergie, le motif décrivant le cœur (assemblage ou cellule) est répété par symétrie en milieu infini. Cette modélisation suffit pour obtenir les caractéristiques du spectre. Le **traitement de l'équation de Boltzmann** sous sa forme intégrale se fait ensuite :

- soit en P_{ij} *2D exacte*, où l'on calcul les matrices de probabilité de collision des neutrons dans toutes les zones de la géométrie étudiée, des probabilités de fuite de neutrons par les différentes surfaces de la géométrie et des probabilités de transmission des neutrons.
- soit en *approximation multicellule*, selon laquelle les probabilités de collision sont évaluées au sein de chaque cellule et couplées par un modèle de courants d'interface, après définition d'une géométrie équivalente, à base de cellules cylindrisées.

La première méthode étant particulièrement coûteuse en durée de calcul, les modèles de type multicellule sont souvent préférés pour des géométries complexes.

2.2 Code MCNP

MCNP (*Monte-Carlo N-Particle*) est un code de calcul de transport multi-particules (neutrons, photons et électrons), tridimensionnel et polycinétique, fondé sur la méthode de Monte-Carlo. Il a pour but de traiter deux grandes catégories de problème :

- *les problèmes de radioprotection* : propagation de particules sur de longues distances et avec de fortes atténuations de flux, en milieu non multiplicateur, en régime stationnaire ou dépendant du temps,
- *les problèmes de neutronique* : comportement des neutrons dans un système fissile critique ou sous-critique à source, en régime stationnaire.

Le code s' appuie sur une méthode probabiliste qui permet la résolution de l' équations de transport par des tirages aléatoires. Chaque particule émise est suivie depuis sa naissance jusqu' à sa disparition, en tenant compte des probabilités d' interaction avec les différents matériaux rencontrés. Ces probabilités sont représentées par les sections efficaces, extraites des bibliothèques de données associées au code. La constitution d' un schéma de calcul se fait étape par étape, en précisant la géométrie, les matériaux, la source, et le type de résultat souhaité.

La **géométrie du dispositif modélisé** doit être la plus précise possible et idéalement, représenter le cas réel. Il est parfois trop compliqué de décrire certains éléments, notamment ceux de petite dimension (exemples : motorisation, vis, câbles). On procède alors à des approximations ou à des homogénéisations, tout en essayant de respecter les quantités de chaque matériau. La géométrie est décrite suivant deux phases successives. Dans un premier temps, il s' agit de déterminer toutes les surfaces (plans, cylindres et sphères) et leurs axes associés. Dans un second temps, on construit la géométrie cellule par cellule, à partir d' unions, d' intersections ou d' exclusions de ces surfaces.

Il s' agit ensuite de définir les **matériaux** de chaque cellule et les **bibliothèques de données nucléaires** associées. MCNP utilise des sections efficaces continues en énergie, à partir des librairies JEF(F), ENDF ou JENDL. La plupart des évaluations est également disponible sous forme discrète, ce qui réduit sensiblement la taille de stockage mémoire.

Les caractéristiques de la source de particules sont ensuite décrites en fonction de sa nature (neutron, photon, électron), sa position (la ou les cellules où elle se situe), son intensité (nombre de particules émises), sa répartition énergétique, et si besoin est, par sa direction d' émission. Pour des calculs critiques, des sources de neutrons doivent être placées dans des zones fissiles. Le code réalise le tirage d' un nombre donné de neutrons et leur vie est suivie jusqu' à disparition complète. Ces neutrons sont multipliés par un coefficient K_{eff} au départ et ré-évalué après chaque cycle de particules.

Enfin, **le type de résultat souhaité** ou « tally » est calculé par MCNP. Le code permet d' évaluer des grandeurs telles que des flux, des courants, des taux de réaction ou des doses, en différents points, surfaces ou volumes, et selon tout type de maillage énergétique et/ou temporel. Au cours de la thèse, les tally de type « F4 » et « F8 » on été essentiellement utilisés.

- *le tally de type F4* permet de déterminer le flux moyen de particules traversant une cellule donnée. Le résultat est exprimé en cm^{-2}. Il est également possible d' obtenir les taux de réaction de différents isotopes ou combinaisons d' isotopes rassemblés sous forme de matériaux en y adjoignant un tally de type « FM » qui permet de convoluer le flux à une n' importe quelle section efficace.

- *le tally de type F8* permet de déterminer le dépôt d' énergie dans une cellule donnée. Le résultat est exprimé en $MeV.cm^{-2}$. Au premier ordre, le résultat est proportionnel à l' amplitude du signal généré en sortie de préamplificateur et permet donc d' estimer le rendement de détection à une énergie donnée.

Des options particulières destinées à améliorer la précision statistique peuvent aussi être imposées pour améliorer les temps de calcul, en favorisant les événements qui contribuent au résultat demandé. Il est par exemple possible de biaiser le calcul en privilégiant certaines régions de l' espace, certaines directions d' émission de la source ou certaines énergies. Ces méthodes peuvent s' avérer indispensables quand le temps de calcul nécessaire à l' obtention d' un résultat significatif, en terme de précision statistique, est trop long. Cependant, l' utilisation de ces techniques requiert beaucoup de prudence et la bonne compréhension du biais utilisé. Il est recommandé, avant d' utiliser une technique de biais, de la valider sur des « cas tests » parfaitement connus.

3 SCHEMAS DE CALCUL MCNP DE TRANSFERT DE RENDEMENT

A titre d' exemple, on donne dans cette partie les schémas de calcul développées à partir du code MCNP4C2 pour le calcul du transfert de rendement d' une source de photons de 277.6 keV (raie γ principale du neptunium 239, produit par capture (n,γ) sur l' uranium 238), entre l' étalonnage par une source ponctuelle équivalente aux étalons utilisés (section §3.1) et la mesure de l' échantillon combustible H2 (section §3.2).

3.1 Calcul avec source ponctuelle

```
C CALCUL DU TRANSFERT DE RENDEMENT
C -----------------------------------------------------
C SOURCE : PONCTUELLE
C BANC CAPTURE U8
C DETECTEUR LEGe(N)
C -----------------------------------------------------
C
C DEFINITION DES CELLULES
C
C ------------------------
C DETECTEUR
C ------------------------
1  2  -2.7    -1                    IMP:P=1 $ FENETRE ENTREE DETECT EN ALU
2  2  -2.7    (1 -2):(-3 4):-13     IMP:P=1 $ CAPOT PROTECTION DETECT EN ALU
3  3  -5.35   -5 #4 #5 #6           IMP:P=1 $ PARTIE ACTIVE DETECT EN GERMANIUM
4  8  -0.53   -6                    IMP:P=1 $ CONTACT N+ LITHIUM
5  7  -2.34   5 -8 #6               IMP:P=1 $ CONTACT P+ BORE LAT
6  7  -2.34   -7                    IMP:P=1 $ CONTACT P+ BORE SUP
7  2  -2.7    (-9 8):(10 -11):-12   IMP:P=1 $ SUPPORT PARTIE ACTIVE EN ALU
8  4  -1.2e-3 -10 6                 IMP:P=1 $ VIDE SOUS PARTIE ACTIVE DETECT
9  5  -8.92   14 -15                IMP:P=1 $ ECRAN CU
10 6  -8.65   16 -17                IMP:P=1 $ ECRAN CD
11 1  -18.0   18 -19                IMP:P=1 $ COURONNE COLLIMATION DENAL
C
C ------------------------
C VIDE
C ------------------------
30 0  99                            IMP:P=0 $ VIDE A L'EXTERIEUR DE LA SALLE
31 4  -1.2e-3 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7
      #8 #9 #10 #11 #30           IMP:P=1 $ VIDE BANC DE MESURE
```

```
C
C DEFINITION DES SURFACES
C
C -----------------------
C DETECTEUR
C -----------------------
1  RCC 0 0 0 0 0 -0.05 2.95        $ FENETRE D'ENTREE EN ALUMINIUM 0.5 MM
2  RCC 0 0 0 0 0 -0.05 3.81        $ COURONNE ENTOURANT LA FENETRE D'ENTREE
3  RCC 0 0 -0.05 0 0 -20 3.81      $ DIAMETRE EXTERNE DU CAPOT
4  RCC 0 0 -0.05 0 0 -20 3.66      $ DIAMETRE INTERNE DU CAPOT
5  RCC 0 0 -0.55 0 0 -2 2.52497    $ PARTIE ACTIVE EN GERMANIUM
6  RCC 0 0 -2.55 0 0 0.05 2        $ CONTACT N+ LITHIUM DIFFUSE 0.5 MM
7  RCC 0 0 -0.55 0 0 -3e-5 2.525   $ CONTACT P+ BORE SURFACE D'ENTREE 300 NM
8  RCC 0 0 -0.55 0 0 -2 2.525      $ CONTACT P+ BORE SURFACE LATERALE 300 NM
9  RCC 0 0 -0.55 0 0 -2 2.95       $ SUPPORT AUTOUR DE LA PARTIE ACTIVE
10 RCC 0 0 -2.55 0 0 -4.6 2.6      $ VIDE SOUS LA PARTIE ACTIVE
11 RCC 0 0 -2.55 0 0 -4.9 2.7      $ DIAMETRE EXTERNE DU SUPPORT
12 RCC 0 0 -7.45 0 0 -2.6 0.75     $ SOUTIEN DU SUPPORT
13 RCC 0 0 -20.05 0 0 -0.15 3.81   $ PARTIE INF CAPOT
14 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 3.85     $ DIAM INT CUIVRE
15 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 3.9      $ DIAM EXT CUIVRE
16 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 3.95     $ DIAM INT CADMIUM
17 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 4.05     $ DIAM EXT CADMIUM
18 RCC 0 0 5.9  0 0 -17   4.25     $ DIAM INT COURONNE
19 RCC 0 0 5.9  0 0 -17   9.25     $ DIAM EXT COURONNE
99 SPH 0 0 0 50                    $ PIECE D'EXPERIMENTATION

C
C DEFINITION DES MATERIAUX
C
C DENAL
M1     74000 0.95
       26000 0.025
       28000 0.025
C
C ALUMINIUM
M2     13000 1.
C
C GERMANIUM
M3     32000 1.
C
C AIR
M4     8000 0.2
       7000 0.8
C

C CUIVRE
M5     29000 1.
C
C CADMIUM
M6     48000 1.
C
C BORE
M7     5000  1.
C
C LITHIUM
M8     3000  1.
C
C TUNGSTENE PUR
M9     74000 1.
C
C
C DEFINITION DE LA SOURCE DE PHOTONS
C
MODE P
NPS 1E9
SDEF PAR=2 ERG=0.2776 POS=0 0 20 VEC=0 0 -1 DIR=D1
```

```
SI1 0.9 1
SP1 -21 0
C
C DEFINITION DES SORTIES DU CALCUL : DEPOT D'ENERGIE F8
C
e18 0.2775 0.2777
F18:P  3
```

3.2 Calcul avec échantillon combustible

```
C CALCUL DU FACTEUR CORRECTIF DE TRANSFERT DE RENDEMENT
C -----------------------------------------------------
C SOURCE : ECHANTILLON H2 (0.5%)
C BANC CAPTURE U8
C DETECTEUR LEGe(N)
C -----------------------------------------------------
C
C DEFINITION DES CELLULES
C
C ------------------------
C DETECTEUR
C ------------------------
1  2  -2.7    -1                    IMP:P=1 $ FENETRE ENTREE DETECT EN ALU
2  2  -2.7    (1 -2):(-3 4):-13     IMP:P=1 $ CAPOT PROTECTION DETECT EN ALU
3  3  -5.35   -5 #4 #5 #6           IMP:P=1 $ PARTIE ACTIVE DETECT EN GERMANIUM
4  8  -0.53   -6                    IMP:P=1 $ CONTACT N+ LITHIUM
5  7  -2.34   5 -8 #6               IMP:P=1 $ CONTACT P+ BORE LAT
6  7  -2.34   -7                    IMP:P=1 $ CONTACT P+ BORE SUP
7  2  -2.7    (-9 8):(10 -11):-12   IMP:P=1 $ SUPPORT PARTIE ACTIVE EN ALU
8  4  -1.2e-3 -10 6                 IMP:P=1 $ VIDE SOUS PARTIE ACTIVE DETECT
9  5  -8.92   14 -15                IMP:P=1 $ ECRAN CU
10 6  -8.65   16 -17                IMP:P=1 $ ECRAN CD
11 1  -18.0   18 -19                IMP:P=1 $ COURONNE COLLIMATION DENAL
C
C ------------------------
C ECHANTILLON
C ------------------------
20 9  -10.464  -20                  IMP:P=1 $ COMBUSTIBLE
21 0          20 -21                IMP:P=1 $ VIDE
22 10 -6.56   21 -22                IMP:P=1 $ GAINE
23 0          22 -23                IMP:P=1 $ VIDE
24 11 -6.56   23 -24                IMP:P=1 $ SURGAINE
C
C
C ------------------------
C VIDE
C ------------------------
30 0  99                            IMP:P=0 $ VIDE A L'EXTERIEUR DE LA SALLE
31 4  -1.2e-3 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7
      #8 #9 #10 #11 #30 24 IMP:P=1 $ VIDE BANC DE MESURE

C
C DEFINITION DES SURFACES
C
C ------------------------
C DETECTEUR
C ------------------------
1  RCC 0 0 0 0 0 -0.05 2.95         $ FENETRE D'ENTREE EN ALUMINIUM 0.5 MM
2  RCC 0 0 0 0 0 -0.05 3.81         $ COURONNE ENTOURANT LA FENETRE D'ENTREE
3  RCC 0 0 -0.05 0 0 -20 3.81       $ DIAMETRE EXTERNE DU CAPOT
4  RCC 0 0 -0.05 0 0 -20 3.66       $ DIAMETRE INTERNE DU CAPOT
5  RCC 0 0 -0.55 0 0 -2 2.52497     $ PARTIE ACTIVE EN GERMANIUM
6  RCC 0 0 -2.55 0 0 0.05 2         $ CONTACT N+ LITHIUM DIFFUSE 0.5 MM
7  RCC 0 0 -0.55 0 0 -3e-5 2.525    $ CONTACT P+ BORE SURFACE D'ENTREE 300 NM
8  RCC 0 0 -0.55 0 0 -2 2.525       $ CONTACT P+ BORE SURFACE LATERALE 300 NM
```

```
9  RCC 0 0 -0.55 0 0 -2 2.95       $ SUPPORT AUTOUR DE LA PARTIE ACTIVE
10 RCC 0 0 -2.55 0 0 -4.6 2.6      $ VIDE SOUS LA PARTIE ACTIVE
11 RCC 0 0 -2.55 0 0 -4.9 2.7      $ DIAMETRE EXTERNE DU SUPPORT
12 RCC 0 0 -7.45 0 0 -2.6 0.75     $ SOUTIEN DU SUPPORT
13 RCC 0 0 -20.05 0 0 -0.15 3.81   $ PARTIE INF CAPOT
14 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 3.85     $ DIAM INT CUIVRE
15 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 3.9      $ DIAM EXT CUIVRE
16 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 3.95     $ DIAM INT CADMIUM
17 RCC 0 0 7.1  0 0 -18.2 4.05     $ DIAM EXT CADMIUM
18 RCC 0 0 5.9  0 0 -17   4.25     $ DIAM INT COURONNE
19 RCC 0 0 5.9  0 0 -17   9.25     $ DIAM EXT COURONNE
99 SPH 0 0 0 50                    $ PIECE D'EXPERIMENTATION
C
C -----------------------
C ECHANTILLON
C -----------------------
20 RCC -4.7040 0 20 9.408 0 0    0.4047   $ PLEIN COMBUSTIBLE
21 RCC -4.8355 0 20 9.671 0 0    0.4175   $ GAINE INT
22 RCC -4.9665 0 20 9.933 0 0    0.4780   $ GAINE EXT
23 RCC -5.0500 0 20 10.10 0 0    0.5110   $ SURGAINE INT
24 RCC -5.1850 0 20 10.37 0 0    0.5300   $ SURGAINE EXT
C

C
C DEFINITION DES MATERIAUX
C
C DENAL
M1     74000 0.95
       26000 0.025
       28000 0.025
C
C ALUMINIUM
M2     13000 1.
C
C GERMANIUM
M3     32000 1.
C
C AIR
M4     8000 0.2
       7000 0.8
C
C CUIVRE
M5     29000 1.
C
C CADMIUM
M6     48000 1.
C
C BORE
M7     5000  1.
C
C LITHIUM
M8     3000  1.
C
c COMBUSTIBLE H2
m9     92234 7.9332e-7
       92235 1.1538e-4
       92236 6.9999e-8
       92238 2.3217e-2
        8016 4.6722e-2
C
C GAINAGE ZY4 INTERNE
m10    24052 8.3575e-5 $ Cr
       26056 1.6270e-4 $ Fe
       8016  4.3951e-4 $ O
       50000 5.0259e-4 $ Sn
       40000 4.2422e-2 $ Zr
       29065 2.4867e-6 $ Cu
       72000 8.8532e-7 $ Hf
```

```
       7014  7.0511e-6 $ N
       1001  4.7031e-5 $ H
       28064 3.3644e-6 $ Ni
C
C GAINAGE ZY4 EXTERNE
m11    24052 7.5977e-5 $ Cr
       26056 1.4855e-4 $ Fe
       8016  3.9754e-4 $ O
       50000 5.5585e-4 $ Sn
       40000 4.2367e-2 $ Zr
       29065 1.2434e-6 $ Cu
       72000 1.1067e-6 $ Hf
       7014  9.5895e-6 $ N
       1001  1.0190e-4 $ H
       28064 2.0187e-6 $ Ni
       6000  5.2625e-5 $ C
C
C DEFINITION DE LA SOURCE DE PHOTONS
C
MODE P
NPS 1E9
SDEF PAR=2 ERG=0.2776 AXS=1 0 0 POS=0 0 20 RAD=D1 VEC=0 0 -1 DIR=D2 EXT=D3
SI1 S 11       12       13       14       15       16       17
      18       19       20       21       22       23       24
      25       26       27       28       29       30
SP1   7.836    7.878    7.924    7.973    8.026    8.083    8.148
      8.218    8.296    8.384    8.485    8.603    8.743    8.912
      9.124    9.407    9.819    10.53    12.19    19.23
SI2 0.9 1
SP2 -21 0
SI3 -4.7 4.7
SP3 -21 0
SI11 0.         9.050e-2
SI12 9.050e-2   1.280e-1
SI13 1.280e-1   1.568e-1
SI14 1.568e-1   1.810e-1
SI15 1.810e-1   2.024e-1
SI16 2.024e-1   2.217e-1
SI17 2.217e-1   2.394e-1
SI18 2.394e-1   2.560e-1
SI19 2.560e-1   2.715e-1
SI20 2.715e-1   2.862e-1
SI21 2.862e-1   3.002e-1
SI22 3.002e-1   3.135e-1
SI23 3.135e-1   3.263e-1
SI24 3.263e-1   3.386e-1
SI25 3.386e-1   3.505e-1
SI26 3.505e-1   3.620e-1
SI27 3.620e-1   3.731e-1
SI28 3.731e-1   3.840e-1
SI29 3.840e-1   3.945e-1
SI30 3.945e-1   4.047e-1
C
C DEFINITION DES SORTIES DU CALCUL : DEPOT D'ENERGIE F8
C
e18 0.2775 0.2777
F18:P  3
C
C DEFINITION DES SORTIES DU CALCUL : TALLY DE PERTURBATION DE LA DENSITE
C
e24 0.2775 0.2777
F24:P  3
PERT:P CELL=20 RHO=-10.36
C
```

ANNEXE D :

DONNEES EXPERIMENTALES

Le tableau suivant donne les rendements d'absorption totale absolus, obtenus pour une source ponctuelle placée à 100 mm du détecteur coaxial de 65% d'efficacité relative :

E	$R^P(E)$ ($\times 10^{-2}$)	$\left.\frac{u(R^P(E))}{R^P(E)}\right\|_{total}$	s_{mod}
228.2	1.669	0.70%	0.43%
293.3	1.434	0.52%	0.16%
364.5	1.244	0.50%	0.10%
487.0	1.026	0.50%	0.12%
497.1	1.012	0.51%	0.14%
522.7	0.9798	0.52%	0.19%
529.9	0.9711	0.53%	0.21%
555.6	0.9417	0.55%	0.25%
630.2	0.8685	0.57%	0.31%
954.6	0.6678	0.48%	0.08%
1260.4	0.5579	0.51%	0.15%
1383.9	0.5240	0.52%	0.14%
1596.2	0.4747	0.74%	0.54%
1678.0	0.4581	0.75%	0.54%
1706.5	0.4526	0.74%	0.52%
1791.2	0.4370	0.69%	0.38%
1836.0	0.4291	0.63%	0.13%

Tab. 133 : rendements d'absorption totale absolus et incertitudes associées (détecteur coaxial d'efficacité relative 65%)

Le tableau suivant donne les rapports des rendements d'absorption totale, obtenus pour une source ponctuelle à 250 mm du détecteur planaire et pour toutes les énergies étudiées :

E_c (keV)	E_f (keV)	$\frac{R^P(E_f)}{R^P(E_c)}$	$\left.\frac{u(r_{R^P})}{r_{R^P}}\right\|_{total}$	s_{mod}
84.0	293.3	0.319	0.57%	0.33%
84.0	555.6	0.135	1.07%	0.96%
84.0	1260.4	0.052	0.96%	0.85%
84.0	1383.9	0.047	0.77%	0.63%
208.0	293.3	0.614	0.50%	0.46%
277.6	293.3	0.924	0.04%	0.03%
277.6	487.0	0.458	0.48%	0.41%
277.6	497.1	0.446	0.49%	0.42%
277.6	555.6	0.387	0.48%	0.39%
277.6	954.6	0.205	0.30%	0.15%
277.6	1260.4	0.150	0.41%	0.34%
277.6	1596.2	0.116	0.39%	0.29%
279.8	293.3	0.934	0.04%	0.03%
279.8	555.6	0.392	0.48%	0.39%
279.8	1260.4	0.152	0.41%	0.34%
279.8	1383.9	0.137	0.30%	0.17%
279.8	1836.0	0.101	0.45%	0.15%
295.9	293.3	1.013	0.01%	0.01%
295.9	555.6	0.425	0.46%	0.37%
295.9	749.8	0.296	0.31%	0.11%
295.9	954.6	0.225	0.29%	0.14%
295.9	1260.4	0.165	0.39%	0.32%
295.9	1596.2	0.127	0.37%	0.28%
300.1	293.3	1.034	0.02%	0.02%
300.1	487.0	0.513	0.44%	0.39%
300.1	555.6	0.433	0.45%	0.36%
300.1	954.6	0.229	0.29%	0.14%
300.1	1383.9	0.152	0.28%	0.16%
300.1	1596.2	0.130	0.37%	0.28%
308.3	293.3	1.075	0.05%	0.04%
308.3	555.6	0.450	0.42%	0.34%
308.3	749.8	0.314	0.30%	0.10%
308.3	1260.4	0.175	0.37%	0.30%
308.3	954.6	0.238	0.28%	0.13%
308.3	1596.2	0.135	0.37%	0.28%
312.0	293.3	1.093	0.06%	0.05%
312.0	487.0	0.542	0.41%	0.35%
312.0	555.6	0.458	0.41%	0.33%
312.0	954.6	0.242	0.27%	0.12%
312.0	1383.9	0.160	0,26%	0,13%
312.0	1596.2	0.137	0.37%	0.29%
344.3	487.0	0.624	0.30%	0.25%
344.3	497.1	0.607	0.31%	0.26%
344.3	1596.2	0.158	0.41%	0.34%
345.9	293.3	1.267	0.18%	0.16%
345.9	487.0	0.628	0.29%	0.25%
345.9	497.1	0.611	0.30%	0.25%
345.9	954.6	0.281	0.24%	0.08%
345.9	1596.2	0.159	0.41%	0.34%
361.7	293.3	1.348	0.23%	0.21%
361.7	555.6	0.565	0.26%	0.18%
361.7	1260.4	0.220	0.25%	0.13%
361.7	1383.9	0.198	0.23%	0.08%
361.7	1836.0	0.145	0.39%	0.09%
381.7	293.3	1.454	0.29%	0.26%
381.7	555.6	0.609	0.22%	0.14%
381.7	749.8	0.424	0.32%	0.23%
381.7	1260.4	0.237	0.23%	0.07%
381.7	1383.9	0.214	0.25%	0.11%
482.2	293.3	1.991	0.46%	0.40%
482.2	487.0	0.987	0.01%	<0.01%
482.2	497.1	0.961	0.02%	0.01%
482.2	954.6	0.441	0.31%	0.26%
482.2	1596.2	0.250	0.51%	0.45%
964.1	487.0	2.261	0.30%	0.25%
964.1	497.1	2.202	0.30%	0.25%
964.1	1596.2	0.572	0.40%	0.35%
984.5	487.0	2.315	0.28%	0.22%
984.5	497.1	2.254	0.28%	0.22%
984.5	954.6	1.035	0.05%	0.04%
984.5	1596.2	0.586	0.40%	0.36%
1004.7	487.0	2.368	0.27%	0.20%
1004.7	497.1	2.306	0.27%	0.20%
1004.7	1596.2	0.599	0.41%	0.37%
1028.5	487.0	2.431	0.25%	0.17%
1028.5	497.1	2.367	0.25%	0.17%
1028.5	954.6	1.087	0.11%	0.11%
1028.5	1596.2	0.615	0.41%	0.37%
1274.4	487.0	3.082	0.28%	0.12%
1274.4	497.1	3.002	0.28%	0.12%
1274.4	1596.2	0.780	0.34%	0.31%
1408.0	487.0	3.440	0.38%	0.28%
1408.0	497.1	3.350	0.39%	0.28%
1408.0	1596.2	0.871	0.23%	0.21%

Tab. 134 : rapports des rendements d'absorption totale et incertitudes associées (détecteur planaire)

RESUME

Dans le cadre de l'amélioration et de la qualification des formulaires de calcul neutronique, ce travail de thèse consiste en la conception, l'optimisation et le développement de techniques de mesures par spectrométrie γ de paramètres intégraux, dans les réacteurs EOLE et MINERVE. L'objectif est d'aboutir à des résultats de mesure maîtrisés et d'incertitude réduite. In fine, les progrès réalisés visent à progresser sur l'interprétation des écarts calcul / expérience et à améliorer la connaissance de données nucléaires de base et en particulier de sections efficaces intégrales de capture et de fission.

Tout d'abord, il s'agissait de caractériser l'instrumentation utilisée par le passé afin d'identifier et de quantifier les erreurs commises sur les mesures de paramètres neutroniques. La thèse met en évidence l'existence d'un biais systématique allant jusqu'à 12% sur les mesures de recalage de taux de fission et jusqu'à 3% sur les mesures de laplacien géométrique axial, en raison d'une mauvaise prise en compte du phénomène de temps mort sur les anciennes chaînes de mesure (amplificateur 2026 et codeur / analyseur PCA3). Grâce à une étude comparative aboutissant à leur remplacement par des systèmes numériques DSP 2060, ces biais systématiques ont été supprimés. La mise en place d'une méthodologie d'optimisation de ses réglages permet désormais un fonctionnement précis à mieux que 0.5% jusqu'à un taux de comptage de 1.5×10^5 s^{-1}. Ce travail offre de nouvelles perspectives d'expériences qui n'auraient pu être réalisées auparavant avec un niveau d'incertitude suffisant.

Ensuite, une analyse critique des méthodes de traitement des données brutes de mesure et de propagation des incertitudes a été menée. Des sources d'erreurs systématiques, qui n'étaient pas prises en compte par le passé, sont désormais corrigées. Elles concernent l'influence de la décroissance d'activité sur la correction du temps mort (environ 2%), le phénomène de coïncidences vraies (environ 5%) et les effets d'angle solide sur l'autoabsorption γ (environ 8%). Par ailleurs, la mise en place de méthodes rigoureuses de propagation des incertitudes permet la réduction au moins d'un facteur 3 de l'incertitude sur la mesure de paramètres fondamentaux de la neutronique - recalage de taux de fission (environ 0.6%) et laplacien géométrique axial (environ 0.7%) - et au moins d'un facteur 2 sur la mesure du taux de conversion de l'uranium 238 (environ 1.5%).

Ces progrès sont mis à profit pour la conception et la réalisation de mesures participant à la qualification de sections efficaces d'actinides (^{232}Th, ^{236}U, ^{237}Np, ^{242}Pu) et d'absorbants neutroniques (^{151}Eu, ^{153}Eu, ^{164}Dy, ^{170}Er, ^{180}Hf). La comparaison des mesures de rapports cadmium et d'indices de capture, par rapport à des calculs déterministes APOLLO2 et probabilistes MCNP4C2 avec les bibliothèques JEF2.2 , ENDF/B-VI.8 ou JEFF3.1, met en évidence des biais systématiques atteignant jusqu'à 50% sur certaines sections de capture, avec une incertitude expérimentale meilleure que 2%.

Enfin, des expériences dédiées à la qualification de données de décroissance ont été mises au point pour la toute première fois au LPE. Une erreur de 5% sur l'évaluation JEFF3.1 de la période radioactive du strontium 92 a été identifiée. Cette donnée nucléaire a été réévaluée par des expériences spécifiques, conduisant à une incertitude diminuée d'un facteur 2. Par ailleurs, des fluctuations des rendements de fission de la réaction ^{235}U(n,f) ont été observées entre des spectres neutroniques thermique et épithermique, allant de –0.8% à +2%. L'étude aboutit à l'émission de recommandations sur les méthodes d'évaluation du rendement effectif de fission pour des réacteurs de type sous-modéré.

Mots-clés : Spectrométrie γ, Mesures intégrales, Incertitudes, Formulaire de calcul, Taux de réaction, Sections efficaces, Actinides, Absorbants neutroniques, Période radioactive, Rendements de fission.