

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE



DIVISION ETUDES ET DEVELOPPEMENT DES REACTEURS

DEPARTEMENT DES REACTEURS
A NEUTRONS RAPIDES



CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE CADARACHE

B.P. N° 1 13115 SAINT-PAUL-LEZ-DURANCE FRANCE

RAPPORT TECHNIQUE

FRP303460

DRNR/P/N° 241

EVALUATION DES SECTIONS EFFICACES NEUTRONIQUES DE
 ^{237}Np ENTRE 5 MeV ET 16 MeV ETUDE PARTICULIERE
DE LA REACTION (n, 2n) POUR L'APPLICATION AUX CALCULS
DE PRODUCTION DE ^{236}Pu

E. FORT, H. DERRIEN, J.P. DOAT

RESUME :

L'importance de ^{237}Np résulte de la réaction de fission utilisée dans les opérations de dosimétrie et de la réaction (n, 2n) qui conduit à ^{236}Np puis à ^{236}Pu . Ce dernier noyau est le point de départ d'une chaîne de décroissance qui conduit à ^{208}Te émetteur d'une raie α à 2.614 MeV. Le dimensionnement optimisé des protections nécessaires lors du retraitement et du transport du combustible demande un calcul aussi exact que possible de la production de ^{236}Pu lors de l'irradiation.

International conference on nuclear data for science
and technology.
Antwerp (BELGIUM)
1982, 6-10 Sept.
CEA-CONF-- 6737

I - Introduction

L'importance de ^{237}Np résulte de la réaction de fission utilisée dans les opérations de dosimétrie et de la réaction $(n,2n)$ qui conduit à ^{236}Np puis à ^{236}Pu . Ce dernier noyau est le point de départ d'une chaîne de décroissance qui conduit à ^{208}Tl émetteur d'une raie γ à 2.614 MeV. Le dimensionnement optimisé des protections nécessaires lors du retraitement et du transport du combustible demande un calcul aussi exact que possible de la production de ^{236}Pu lors de l'irradiation.

II - Méthode d'évaluation et formalisme

II.1 - Calcul de la section efficace de la réaction $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}$

Aux énergies supérieures à 6.8 MeV l'émission de particules multiples devient possible: $(n,n'\epsilon)$, $(n,2n)$, $(n,2n\epsilon)$, $(n,3n)$, ...).

Dans le cadre du formalisme choisi, la section efficace d'une réaction sur un noyau A, fissile ou fertile, qui donne lieu à x neutrons pour 1 neutron incident, s'exprime par :

$$\sigma_{n,xn_i} = \sigma_c^{A+1}(E_{A+1}^x) \cdot P_{n\epsilon}(E_{A+1}^x) \cdot P(E_{A+1}^x, xn_i) \quad (1)$$

i = γ ou fission avec des notations évidentes.

$$P_{n\epsilon} = \left(\frac{n}{1}\right)^{A+1} = \frac{\sigma_c^{A+1} - (\sigma_{n\gamma} + \sigma_{n,f}^1 + \sigma_{n,n}^{\text{composé}})}{\sigma_c^{A+1} - \sigma_{n,n}^{\text{composé}}}$$

$$P(E_{A+1}^x, xn_i) =$$

$$\frac{\int_0^{E_{A+1}^x} [\epsilon \sigma_{A+1}^{A+1}(\epsilon) \rho_A^A(E_A^x - \epsilon)]^n \left(\frac{n}{1}\right)^{A+1} \cdot P(E_{A+1}^x, (x-1)n_i) d\epsilon}{\int_0^{E_{A+1}^x} [\epsilon \sigma_c^{A+1}(\epsilon) \rho_A^A(E_A^x - \epsilon)] d\epsilon} \quad (3)$$

Dans les quantités entre crochets ne figure pas la composante de prééquilibre. On peut tenir compte de celle-ci d'une façon phénoménologique en suivant l'approche suggérée par CLINE et BLANN /1/, adoptée par JARY /2/ et transformer la quantité

$$\sigma_c^{A+1}(\epsilon) \rho_A^A(E_A^x - \epsilon) \text{ en la suivante :}$$

$$[(1-R(E)) \epsilon \sigma_c^{A+1}(\epsilon) \rho_A^A(E_A^x - \epsilon)] \rightarrow \sigma_c^{A+1}(E_{A+1}^x) \frac{\partial g_{\epsilon}}{\partial E_{A+1}^x} \frac{1}{2\Gamma_c} \sigma_c(\epsilon) \times \frac{A^3}{K^2} \times \frac{5}{h+1} h(h+1) \frac{g_{\epsilon} \cdot (E_A^x - \epsilon)^{2h-1}}{g_c \cdot E_{A+1}^x}$$

où les diverses variables ont la signification donnée en /1/.

Les largeurs partielles sont calculées de la façon suivante :

$$\Gamma_n^A = C_n \int_0^{E_{A-1}^x} \frac{\epsilon \sigma_c(\epsilon) \rho_{A-1}(E_{A-1}^x - \epsilon) d\epsilon}{\rho_A(E_A^x)}$$

$$\Gamma_{\gamma} = C_{\gamma} \frac{\int_0^{E_A^x} \theta(\epsilon) \rho_A(E_A^x - \epsilon) d\epsilon}{\rho_A(E_A^x)}$$

$$\Gamma_f = C_f \frac{\sum_i T_i^{\text{equi}}(E_A^x) + \int_0^{E_A^x} \rho_{cf} \rho_f T_{fo}^{\text{equi}}(E_A^x - \epsilon) d\epsilon}{\rho_A(E_A^x)}$$

$\theta(\epsilon)$ représente le facteur de forme de BRINCK-AXEL utilisé dans le cadre du modèle dipolaire électrique.

T_f^{equi} représente la pénétrabilité d'une barrière unique équivalente à 2 barrières traitées dans le cadre de l'amortissement total du couplage entre états I et états II.

En s'inspirant des travaux de LYNN /3/ qui montrent que les densités de voies de fission concernant ce type de noyaux pour la barrière "intérieure" 1 sont le double de celles de la barrière "extérieure" 2, on a :

$$T_{fo}^{\text{equi}} = \frac{1}{2} \frac{T_1 T_2}{T_1 + \frac{1}{2} T_2}, \quad T_{1,2}(u) = \frac{1}{1 + \exp \frac{2\pi}{hw} (V_{1,2} - U)}$$

Les différentes constantes permettent de normaliser les largeurs partielles à leurs valeurs à "basse énergie", obtenues par la mesure ou la systématique.

Les sections efficaces composées sont calculées par modèle optique déformé à l'aide du code ECIS /4/. Les autres sections efficaces dans P_{ne} sont calculées par modèle statistique de HAUSER-FELDBACH à l'aide du code FISINGA 75/.

Il est à remarquer que les quantités intervenant dans P ($E_{A+1, xmi}$) sont prises indépendantes du Spin et de la parité. Une comparaison avec des calculs effectués à l'aide de codes tels que GNASH ou STAPRE permettrait de chiffrer l'importance de l'effet "Jn" qui est à comparer avec l'économie de temps de calcul (probablement considérable) que l'approximation effectuée permet de réaliser.

Il est facile de montrer que les vrais paramètres de l'évaluation sont les probabilités de fission.

En effet, à condition de négliger les largeurs γ (ce qui est justifié lorsque l'énergie d'excitation du noyau est supérieure à l'énergie de liaison du dernier neutron), les sections efficaces de fission, de réactions $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ s'expriment en fonction des probabilités de fission $P_{f+1}^A, P_f^A, P_{f-1}^A$, la sensibilité à ces paramètres étant importante.

Quand aux autres quantités intervenant dans le calcul des sections efficaces mentionnées plus haut, elles sont ou bien connues ou à l'origine de faibles sensibilités. C'est le cas des sections efficaces composées et des densités de niveaux.

Pour nos calculs nous nous sommes référés aux valeurs expérimentales de probabilité de fission de ^{236}Np et ^{237}Np obtenues par WILHELMY et al /6/ à LOS ALAMOS par réaction $(^3\text{He}, d)$ sur ^{236}U et ^{237}U respectivement (Fig. 1 et 2).

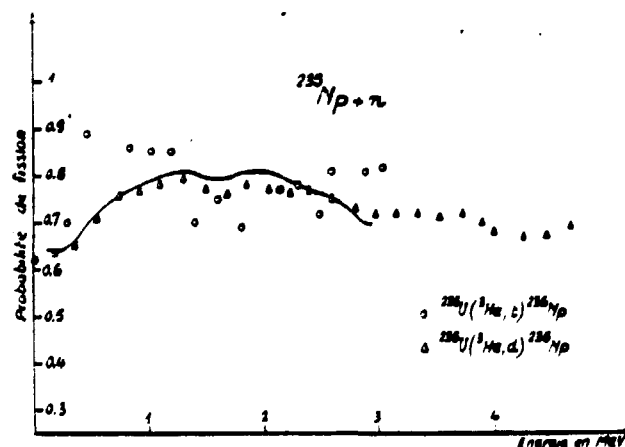
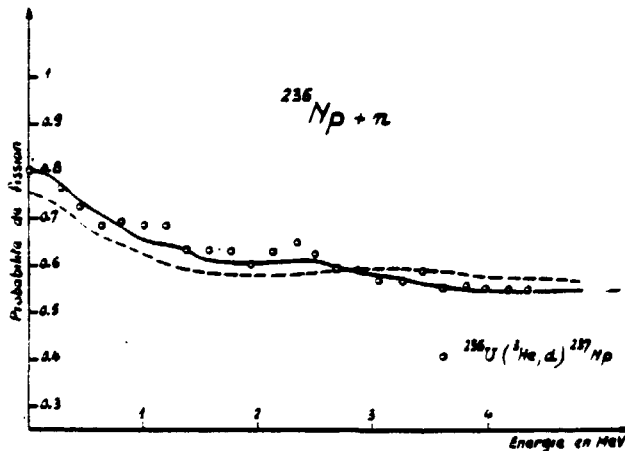


Fig.1. et Fig.2. Valeurs expérimentales de probabilité de fission, de ^{236}Np et de ^{235}Np comparés aux valeurs

calculées. La courbe (-) représente une interprétation théorique des valeurs expérimentales tandis que l'interprétation des valeurs de section efficace de fission de ^{237}Np jugées les meilleures conduit à la courbe (—).

Dans le cadre de la méthodologie utilisée la comparaison de la section efficace calculée avec les valeurs expérimentales de section efficace de réaction de fission est un test de cohérence des diverses sections efficaces entre elles pour ^{237}Np . (Fig.3).

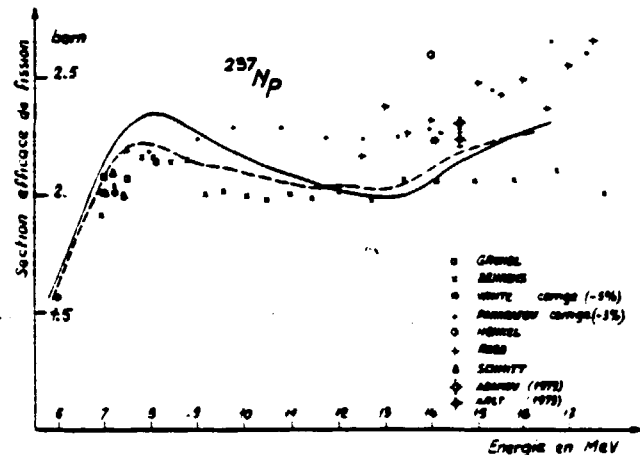


Fig.3. La courbe (-) représente la section efficace de fission de ^{237}Np calculée suivant la méthode proposée. La courbe (—) correspond aux valeurs jugées les meilleures.

La figure 5 montre la section efficace calculée pour la réaction $(n, 2n)$ ainsi que, en tirets, celle qui est obtenue en imposant à la section efficace de fission calculée d'être strictement égale aux valeurs expérimentales. La comparaison de ces deux courbes illustre bien la sensibilité importante de $\sigma_{n, 2n}$ de ^{237}Np à la probabilité de fission de ^{236}Np .

II.2 - Calcul de la section efficace de production de ^{236}Pu

Dans la production de ^{236}Pu par décroissance β^- de ^{236}Np deux états sont concernés : l'état fondamental (6^-) à vie longue ($1.15.10^5$ a) (contribution 9.9%) et un état (1^-) à vie courte (22H5) (contribution 48%) à une énergie d'excitation de 0.0446 MeV selon la version récente de ENSDF. La section efficace de production de ^{236}Pu , $^{237}\text{Np}(n, 2n) ^{236}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$, et que nous noterons $\sigma^{236}\text{Pu}x$ est une fraction de la section efficace $(n, 2n)$. Soient $R(E)$ cette fraction et $r(E)$ le rapport isométrique de ^{236}Np pour la réaction $(n, 2n)$.

$$\frac{\sigma^{236}\text{Pu}x}{\sigma_{n, 2n}} = R(E) = \frac{0.48 \times r(E)}{1 + r(E)}, \text{ où } E \text{ est l'énergie}$$

d'excitation de ^{236}Np liée à l'énergie incidente E_{inc} par : $E = E_{inc} - 6.8$.

En principe $R(E)$ peut être évalué :

- par le calcul théorique de $r(E)$, très imprécis compte-tenu du manque d'informations sur la densité et la spectroscopie des niveaux des noyaux de la famille des Np.

- à partir de données expérimentales. Celles-ci sont rares, puisque seule une valeur à $E_{inc} = 14,8$ MeV a été mesurée par LANDRUM et al /8/.

$$R(E=8) = \frac{1}{2.76} = 0.362.$$

Face à la pauvreté des informations disponibles, il n'est possible que d'estimer à l'oeil une courbe R(E) à partir de principes de continuité et de monotonie et des considérations supplémentaires suivantes :

- au seuil de la réaction n,2n, $6.8 < E_{inc} < 6.8 + 0.0446$, $R = 0$

Pour des énergies E comprises entre 0.0446 et 0.1 MeV (énergie prévisible pour le niveau suivant), le rapport isomérique varie comme le rapport de la section efficace inélastique du 1^{er} niveau à la section efficace élastique. Le calcul effectué à l'aide de FISINGA montre que R(E) reste faible sur cette plage d'énergie.

- La donnée de NISHI /9/ à $E_{inc} = 9.6$ MeV ($E = 2.8$ MeV) permet d'évaluer R en supposant que la valeur calculée pour $\sigma_{n,2n}$ est correcte. $R(2.8) = 0.312$.

Cette valeur est confortée par les résultats obtenus en 1972 par LECOQ et VEYSSIERE /11/ qui, par des mesures de sections efficaces photonucléaires sur ^{237}Np ont montré que pour des énergies de photons supérieures à 9 MeV la section efficace de formation de l'état (1⁻) était deux fois plus grande que celle de l'état (6⁻) $r(2.7) = 2.33$, $R(2.7) = 0.336$.

- Le rapport isomérique et par suite R(E) (fig.4) doit vraisemblablement varier lentement pour des énergies incidentes comprises entre 10 et 15 MeV.

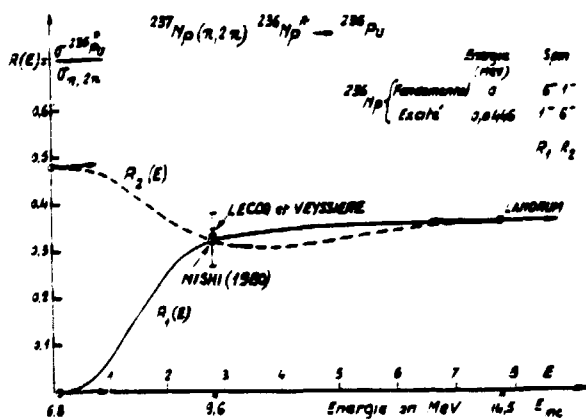


Fig.4. Evolution avec l'énergie du rapport de la section efficace productrice de ^{236}Pu à la section efficace totale (n,2n) de ^{237}Np .

II.3 - Estimation des incertitudes

Compte tenu des incertitudes expérimentales ($\approx 10\%$) et de la procédure utilisée pour l'évaluation, les incertitudes estimées sur les valeurs évaluées sont les suivantes :

- Section efficace (n,2n) : $\pm 10\%$ sur tout le domaine
- Section efficace de production de ^{236}Pu
 - $\pm 10\%$, intervalle d'énergie 6.8 MeV - 7 MeV
 - $\pm 20\%$, " " 7 MeV - 9 MeV
 - $\pm 30\%$, " " 9 MeV - 11 MeV
 - $\pm 20\%$, " " 11 MeV - 13 MeV
 - $\pm 15\%$, " " 13 MeV - 16 MeV

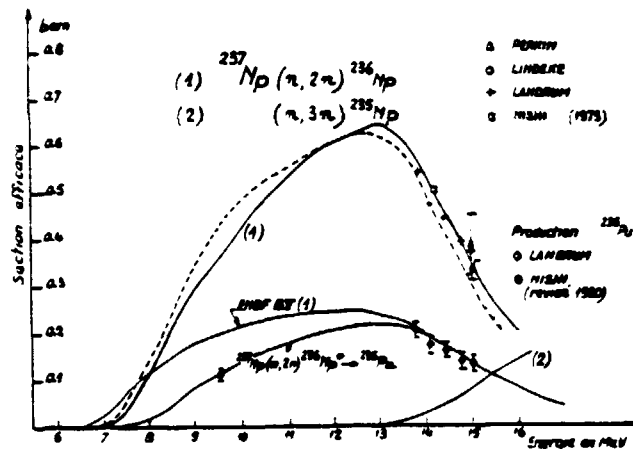


Fig.5. La section efficace de production de ^{236}Pu résulte de l'application de R(E) à la section efficace totale de réaction (n,2n) recommandée (-).

A noter pour cette dernière l'influence de l'utilisation de probabilités de fission différentes pour ^{236}Np (-).

III - Cohérence avec les données intégrales

L'expérience de PAULSON et HENNELY /10/ est une expérience d'irradiation de ^{235}U pour laquelle ^{237}Np est un sous produit. La quantité de ^{236}Pu formée et analysée provient des réactions $^{237}\text{Np}(\gamma, n) ^{236}\text{Np} \xrightarrow{\beta^-} ^{236}\text{Pu}$ et $^{237}\text{Np}(n, 2n) ^{236}\text{Np} \xrightarrow{\beta^-} ^{236}\text{Pu}$. Compte tenu des faibles concentrations d'isotopes autres que ^{235}U ($< 1\%$) le spectre énergétique de la population neutronique a été assimilé à un spectre de fission de ^{235}U . Dans un tel spectre la section efficace ^{237}Np a été mesurée égale à 0.063 barn et la section efficace de production de ^{236}Pu à 0.0315 = 0.03.

Pour les mêmes conditions spectrales, la section efficace de production de ^{236}Pu calculée est égale à :

$$\langle \sigma^{236}\text{Pu} \rangle = \frac{\int_{6.8}^{20} R(E) \times \sigma_{n,2n}(E) \times \phi(E) dE}{\int_{6.8}^{20} \chi(E) dE} = 0.0345 \text{ b}$$

IV - Conclusion

L'accord acceptable entre valeur calculée et valeur expérimentale montre que la cohérence des données intégrales et microscopiques peut être assurée aux conditions suivantes :

- 1) Le niveau à vie courte est le niveau (1⁻) à une énergie d'excitation de 0.0446 MeV.
- 2) Le rapport de la section efficace productrice de ^{236}Pu et de la réaction (n,2n) totale ainsi que le rapport isomérique sont des fonctions appropriées de l'énergie.

Il convient de souligner le caractère spéculatif attaché à la fonction R(E). Pour le faire disparaître de nouvelles mesures sont nécessaires, intégrales et microscopiques mais en remarquant pour ces dernières que le domaine de plus grande sensibilité correspond aux énergies inférieures à 10-11 MeV.

Références

1. C.K. Gline, M. Blann
Nucl. Phys. A 172 (1971), 225.
2. J. Jary
INDC(FR) IOL, NEANDC(E) 175 "L".
3. J.E. Lynn
AERE - R 7468.
4. J. Raynal
Equations couplées et DWBA, Aussois (1968),
Rapport Lycen -6804.
5. E. Fort, D. Lafond
Le code de modèle statistique FISINGA, non
publié.
6. Wisbelmy
L.A.S.L. Communication privée.
7. Nuclear data sheets 20, 192.
8. T. Landrum et al
Phys. Rev. 8, 5, 1938 (1973)
9. T. Nishi et al
NEANDC (J) 42 L (1975), valeur révisée d'après
INDC discrepancy file. 19 juin 1980.
10. C.K. Paulson et E.J. Hennely
N.S.E 55, 24-27 (1974)
11. G. Lecoq et A. Veyssiere
Communication privée.