



STUDIECENTRUM VOOR KERNENERGIE

S.C.K. Elektronika & Instrumenten

14 -09- 1976

C.E.N. Electronique & Instrumentation

C
E
N
T
R
E

D'
E
T
U
D
E

D
E

L'
E
N
E
R
G
I
E

N
U
C
L
E
A
I
R
E

MESURE ET CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION INDUITE
PAR NEUTRONS THERMIQUES EN-DESSOUS DU SEUIL
POUR QUELQUES NOYAUX LOURDS

C. WAGEMANS, P. D'HONDT, A.J. DERUYTTER,
M. ASGHAR, A. EMSALLEM

Juin 1976

BLG 514

C. WAGEMANS, P. D'HONDT, A.J. DERUYTTER, M. ASGHAR, A. EMSALLEM
BLG 514 (Juin 1976)

MESURE ET CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION INDUITE
PAR NEUTRONS THERMIQUES EN-DESSOUS DU SEUIL
POUR QUELQUES NOYAUX LOURDS

Résumé. - La section efficace de fission induite par neutrons thermiques (σ_f^0) est mesurée pour le ^{231}Pa , le ^{232}Th et le ^{237}Np , qui sont tous les trois des noyaux fissionnant en-dessous du seuil. Ces résultats expérimentaux sont comparés avec des valeurs de σ_f^0 calculées dans l'hypothèse d'une barrière de fission à une et à deux bosses. L'accord expérience-calcul est nettement supérieur pour la barrière à deux bosses.

C. WAGEMANS, P. D'HONDT, A.J. DERUYTTER, M. ASGHAR, A. EMSALLEM
BLG 514 (Juin 1976)

MESURE ET CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION INDUITE
PAR NEUTRONS THERMIQUES EN-DESSOUS DU SEUIL
POUR QUELQUES NOYAUX LOURDS

Samenvatting. - De door termische neutronen geïnduceerde splijtingswerkzame doorsnede (σ_f^0) werd gemeten voor ^{231}Pa , ^{232}Th en ^{237}Np . Deze kernen splitsen via tunneling door de fissiebarrière. Deze meetresultaten worden vergeleken met berekende waarden van σ_f^0 . Bij deze berekeningen werd zowel een enkele als een dubbele fissiebarrière verondersteld. De laatste hypotese levert een duidelijk betere overeenstemming met het experiment.

C. WAGEMANS, P. D'HONDT, A.J. DERUYTTER, M. ASGHAR, A. EMSALLEM
BLG 514 (Juin 1976)

MESURE ET CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION INDUITE
PAR NEUTRONS THERMIQUES EN-DESSOUS DU SEUIL
POUR QUELQUES NOYAUX LOURDS

Summary. - The thermal neutron induced fission cross-section (σ_f^0) of the sub-threshold fissioning nuclei ^{231}Pa , ^{232}Th and ^{237}Np has been measured. These experimental results are compared with σ_f^0 values calculated under the hypothesis of a single-humped and a double-humped fission barrier respectively. A much better agreement between calculation and experiment is obtained for a double-humped barrier.

Journées d'études sur la fission

Aussois, 24-26 mai 1976

MESURE ET CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION INDUITE
PAR NEUTRONS THERMIQUES EN-DESSOUS DU SEUIL
POUR QUELQUES NOYAUX LOURDS

C. WAGEMANS, P. D'HONDT, A.J. DERUYTTER,
M. ASGHAR, A. EMSALLEM

Juin 1976

BLG 514

Collaboration CEN, Mol, Université de Gand (Belgique) -
Université de Lyon - ILL Grenoble (France)

I. INTRODUCTION

Les sections efficaces de fission induite par neutrons thermiques (σ_f^0) ne sont pas très bien connues pour les noyaux dits "non-fissiles". Pour le ^{232}Th par exemple les valeurs publiées varient entre 4 et 95 μbarn ^{1,5)}. La difficulté essentielle pour la mesure d'une section efficace aussi faible est que le faisceau de neutrons thermiques utilisé doit être très pur. Si nous considérons toujours l'exemple du ^{232}Th où $\sigma_f \approx 0.1$ barn pour des neutrons de quelques MeV⁶⁾, la présence de seulement 0,01% de ces neutrons dans le faisceau donne un nombre de fissions rapides qui équivaut au nombre de fissions thermiques. Ce problème n'existe pas au réacteur à haut flux de l'Institut von Laue-Langevin à Grenoble. En effet, à la sortie du guide neutronique courbé de 87 m, le rapport entre neutrons lents et neutrons épithermiques et rapides vaut environ 10^6 . Le nombre de rayons γ directs émis par le réacteur est également réduit d'un facteur d'environ 10^6 . Donc avec ce faisceau thermique très intense ($\approx 10^9$ neutrons/cm².sec) et très pur, les conditions expérimentales pour mesurer des sections efficaces très faibles sont nettement améliorées.

Un autre problème dans ce genre de mesures est la qualité et la pureté de l'échantillon utilisé. Dans ce domaine également, la technique a nettement progressé les dernières décennies. L'expérience acquise dans cette matière par les services compétents du BCMN de Geel nous a permis d'obtenir des échantillons de haute qualité.

Ces bonnes conditions de mesures nous ont incité à examiner l'intérêt éventuel de nouvelles mesures de σ_f^0 pour les noyaux non-fissiles. En effet, il y a plusieurs arguments en faveur :

- (i) il y a très peu de données, et, en outre, elles sont très anciennes,
- (ii) ces données sont demandées maintenant pour améliorer le traitement des déchets radio-actifs. Spécialement la section efficace du ^{232}Th est intéressante dans l'optique du réacteur $^{232}\text{Th} - ^{233}\text{U}$, récemment relancé à la conférence de Washington⁷⁾.
- (iii) ces sections efficaces sont intéressantes pour tester la théorie de la fission sous-seuil.

Pour toutes ces raisons nous avons entrepris une série de mesures de σ_f^0 pour le ^{231}Pa , le ^{232}Th et le ^{237}Np . Là où les conditions expérimentales le permettaient, nous avons profité de l'occasion pour déterminer

l'énergie cinétique totale moyenne \bar{E}_K des fragments de fission, ainsi que la probabilité pour la fission ternaire.

II. CONDITIONS EXPERIMENTALES ET RESULTATS

Le dispositif expérimental est très simple. L'échantillon à étudier est regardé par un détecteur à barrière de surface (450 mm²) placé hors du faisceau. Après amplification et codage, les fragments de fission détectés sont enregistrés dans la mémoire d'un analyseur d'amplitude Inter-technique. Les caractéristiques des échantillons utilisés sont données dans le Tableau I.

Pour chaque noyau étudié, trois types de mesures sont effectuées:

- (i) spectre en amplitude des fragments de fission
- (ii) mesure du bruit de fond
- (iii) détermination du flux neutronique

Les figures 1-3 montrent les spectres en amplitude pour les fragments de fission du ²³²Th, ²³⁷Np et ²³⁵U, et ²³¹Pa resp.

La section efficace de fission bien connue de ²³⁵U, $\sigma_f^0 = 587.6 \pm 2.6$ barn⁸⁾, est utilisée comme valeur de référence pour déterminer le flux neutronique utilisé.

Avec ces données nous calculons la section efficace du noyau étudié par la relation

$$\sigma_f^0 = \frac{N_U}{N_X} \frac{C_X}{C_U} 587.6 \text{ barn}$$

où N représente le nombre d'atomes par cm² et C_U et C_X sont resp. les taux de comptages (corrigés pour le bruit de fond) pour les réactions ²³⁵U(n,f) et X(n,f). Les valeurs de σ_f^0 obtenues sont données dans le Tableau II.

III. DISCUSSION

Dans le Tableau II nous comparons nos résultats avec les autres valeurs expérimentales. Une première constatation remarquable est que nos résultats sont en assez bon accord avec les données "pionnières" de Ghiorso et coll.^{4,10)}. La deuxième constatation est une très grande différence entre les résultats obtenus pour le ²³²Th. Ces différences illustrent encore une fois la difficulté de mesurer une section efficace de quelques μ barn.

Essayons maintenant d'obtenir σ_f^0 d'une façon théorique.

Rae¹¹⁾ a indiqué qu'on peut calculer σ_f^0 dans l'hypothèse d'une barrière de fission à une bosse (oscillateur harmonique inversé) par la simple relation:

$$\sigma_f^0 \approx \frac{\bar{\Gamma}_f}{\bar{\Gamma}_f + \bar{\Gamma}_\gamma} \sigma_{\text{abs}}^0 \quad (1)$$

La largeur moyenne de fission $\bar{\Gamma}_f$ est déduite de la formule de Hill et Wheeler pour la pénétrabilité d'une barrière parabolique

$$\bar{\Gamma}_f = \frac{D}{2\pi} \left\{ 1 + \exp \left[- \frac{2\pi(E-E_b)}{\hbar\omega} \right] \right\}^{-1} \quad (2)$$

Ici D représente l'espacement moyen entre les résonances; $\hbar\omega$ est la largeur de la barrière, E et E_b sont resp. l'énergie d'excitation et la hauteur de la barrière. Le Tableau III donne les valeurs de σ_f^0 obtenues de cette façon. Nous constatons que les valeurs de σ_f^0 obtenues avec ces calculs sont beaucoup plus grandes que les résultats expérimentaux. Ce désaccord est probablement dû à une déviation de la barrière de fission de la forme parabolique à des énergies d'excitation faibles. Il en résulte que la relation (2) n'est plus tout à fait valable.

Regardons maintenant si une barrière à deux bosses décrit mieux la fission thermique. Dans le cas d'une barrière de fission à deux bosses, et si le couplage avec la deuxième bosse est faible (donc la première barrière est plus grande que la deuxième et que l'énergie de liaison du neutron), $\bar{\Gamma}_f$ est donné par¹²⁾:

$$\bar{\Gamma}_f \approx \frac{D_I}{2\pi} \cdot \frac{N_A N_B}{N_A + N_B} \quad (3)$$

où D_I représente l'espacement moyen entre les états dans le premier puits, et

$$N_i = \left\{ 1 + \exp \left[\frac{-2\pi(E-E_i)}{\hbar\omega_i} \right] \right\}^{-1} \quad (i = A, B)$$

Dans cette dernière relation, E_i et $\hbar\omega_i$ sont resp. la hauteur et la largeur de la i^{me} barrière; E est l'énergie d'excitation.

Si nous adoptons les paramètres pour les doubles barrières données par Lynn¹³⁾, nous obtenons les valeurs pour σ_f^0 données dans la troisième

colonne du Tableau III. De ce tableau il est clair qu'il y a maintenant un très bon accord entre expérience et théorie pour le ^{232}Pa et le ^{233}Th , et pour les autres noyaux considérés un grand pas dans la bonne direction est fait. Si nous tenons compte des grandes incertitudes qui existent encore sur les paramètres des barrières de fission pour certains noyaux, une meilleure connaissance de ces dernières pourrait encore améliorer cette situation.

APPENDICE :

QUELQUES CARACTERISTIQUES DE LA FISSION SOUS-SEUIL INDUITE PAR NEUTRONS THERMIQUES.

Nous avons pu déterminer l'énergie cinétique totale moyenne \bar{E}_K des fragments de fission pour la réaction $^{237}\text{Np}(n_{th},f)$:

$$\bar{E}_K = 172.8 \pm 2.5 \text{ MeV}$$

Ce résultat est en accord avec la systématique de Unik¹⁴⁾, comme le montre la figure 4. Pour les autres noyaux étudiés les échantillons étaient trop épais pour permettre une telle mesure.

Nous avons aussi mesuré la probabilité pour la fission ternaire dans le cas du ^{231}Pa et du ^{237}Np . Nos résultats préliminaires pour B/LRA (nombre de fissions binaire sur alphas de tripartition) sont compatibles avec une droite du type $\text{LRA/B} = a(4Z-A) + b$, comme proposé par Halpern¹⁵⁾ pour $^{233,235}\text{U}(n,f)$ et $^{239,241}\text{Pu}(n,f)$.

Cette constatation est importante, car elle prouve que la fission ternaire sous-seuil induite par neutrons thermiques semble avoir les mêmes caractéristiques que la fission "normale" induite par n_{th} .

Remerciements

Nous tenons à remercier le Dr. M. Nève de Mévergnies pour son intérêt constant dans ces mesures ainsi que pour une lecture critique de ce manuscrit.

REFERENCES

- (1) R.BLOCK et coll., Lowell Conference (Juillet 1976)
- (2) M.NEVE de MEVERGNIES et P. del MARMOL, Conf.on neutron cross-sections and techn., Washington 1968, NBS Special Publ.299, vol.2, p.611
- (3) E. KORNEEV et coll., JETP 10 (1960) 29
- (4) A. GHIORSO et Q. VAN WINKLE, TID 5223 II (1952) 593
- (5) C. WAGEMANS et coll., Nucl. Phys. A259 (1976) 423
- (6) J.BLONS et coll., Conf. on nucl. cross-sections and techn., Washington 1975, NBS Special Publ. 425, vol.2, p.642
- (7) S.RAMAN et coll., id. , vol.1, p.222
- (8) A.DERUYTTER et coll., J.Nucl.En. 27 (1973) 645
- (9) P. del MARMOL et coll., J.Inorg. Nucl.Chem.35 (1973) 4323
- (10) A. GHIORSO et coll., The transuranium elements II, Research papers (Ed.G.Seaborg et coll.), McGraw-Hill (N.Y.) 1949, p. 1639
- (11) E.RAE, Physics and Chemistry of Fission, IAEA, Salzburg 1965, p.187
- (12) R. VANDENBOSCH et J.HUIZENGA, Nuclear Fission, Academic Press, N.Y. (1973)
- (13) E.LYNN, Rapport AERE-R-7468 (1974)
- (14) J.UNIK et coll., Physics and Chemistry of Fission, AIEA , Rochester 1973, p.19
- (15) I.HALPERN, Ann.Rev. of Nucl. Sc., 21 (1971) 245

TABLEAU I: Caractéristiques des échantillons

Elément	Isotope	Forme chimique	Méthode de préparation	Composition isotopique	Epaisseur
U	235	UF ₄	évaporation	U naturel	36.4 /ug/cm ²
U	235	UF ₄	évaporation	NBS 970 97.663 at. % ²³⁵ U	3.66 /ug/cm ²
Pa	231	Pa ₂ O ₅	électrodéposition	ultra pure	(360 /ug/cm ²)
Th	232	ThO ₂	électrodéposition	ultra pure < 10 ⁻⁸ ²³⁵ U	360 /ug/cm ²
Np	237	Np-hydroxyde	électrodéposition	ultra pure < 4 ppm ²³⁸ Pu	{ 43 /ug/cm ² 55 /ug/cm ²

TABLEAU II: Valeurs expérimentales pour σ_f^0

Réaction	Auteur(s)	Année	σ_f^0 (barn)	Détecteur
$^{231}\text{Pa}(n, f)$	GHIORSO et coll. ⁴⁾	1949	0.010 ± 0.005	chambre à fission
$^{231}\text{Pa}(n, f)$	Nos mesures	1976	$0.019 \pm 0.003^{\text{a)}$	Si-Au(barr. de surf.)
$^{232}\text{Th}(n, f)$	GHIORSO et coll. ⁴⁾	1949	$< 20 \cdot 10^{-6}$	chambre à fission
$^{232}\text{Th}(n, f)$	KORNEEV et coll. ³⁾	1960	$(60 \pm 20) \cdot 10^{-6}$	chambre à fission
$^{232}\text{Th}(n, f)$	NEVE DE M. et coll. ²⁾⁹⁾	1968	$(48 \pm 6) \cdot 10^{-6}$	macrofol
$^{232}\text{Th}(n, f)$	Nos mesures ⁵⁾	1976	$\leq 4 \cdot 10^{-6}$	Si-Au (barr. de surf.)
$^{232}\text{Th}(n, f)$	BLOCK et coll. ¹⁾	1976	$(95 \pm 30) \cdot 10^{-6}$	extrapolation $1/v$
$^{237}\text{Np}(n, f)$	GHIORSO et coll. ¹⁰⁾	1949	$0.020 \pm 0.003^{\text{b)}$	chambre à fission
$^{237}\text{Np}(n, f)$	Nos mesures	1976	0.020 ± 0.004	Si-Au(barr. de surf.)

a) résultat préliminaire

b) renormalisé

TABLEAU III: Comparaison des valeurs expérimentales et calculées de σ_f^0

Noyau composé	σ_f^0 (exp) (barn)	σ_f^0 (double barr.) (barn)	σ_f^0 (osc. harm. inv.) (barn)
^{232}Pa	0.019 ^{a)}	0.02	2.5
^{233}Th	$\leq 4 \times 10^{-6}$ a)	$\left\{ \begin{array}{l} 4.5 \times 10^{-6} \\ 1 \times 10^{-6} \end{array} \right.$	0.002
^{235}U	< 0.65 b)	3.96	25
^{238}Np	0.02 ^{a)}	0.215	1.3
^{241}Pu	0.03 ^{b)}	1.61	50

a) Nos mesures

b) BNL 325, 3^{ème} éd. (1973)

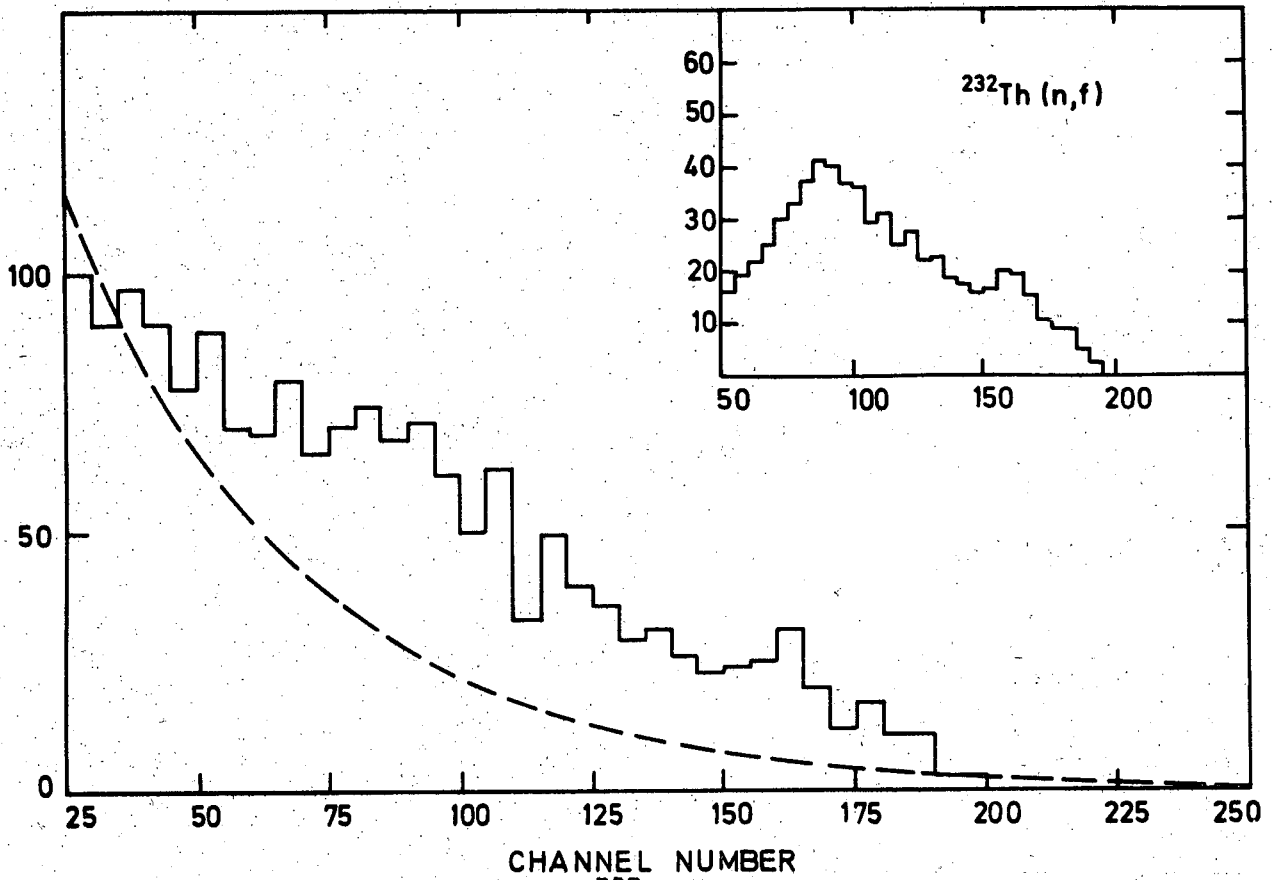


Fig. 1 : Spectre et amplitude pour $^{232}\text{Th}(n, f)$ avant et après correction pour bruit de fond

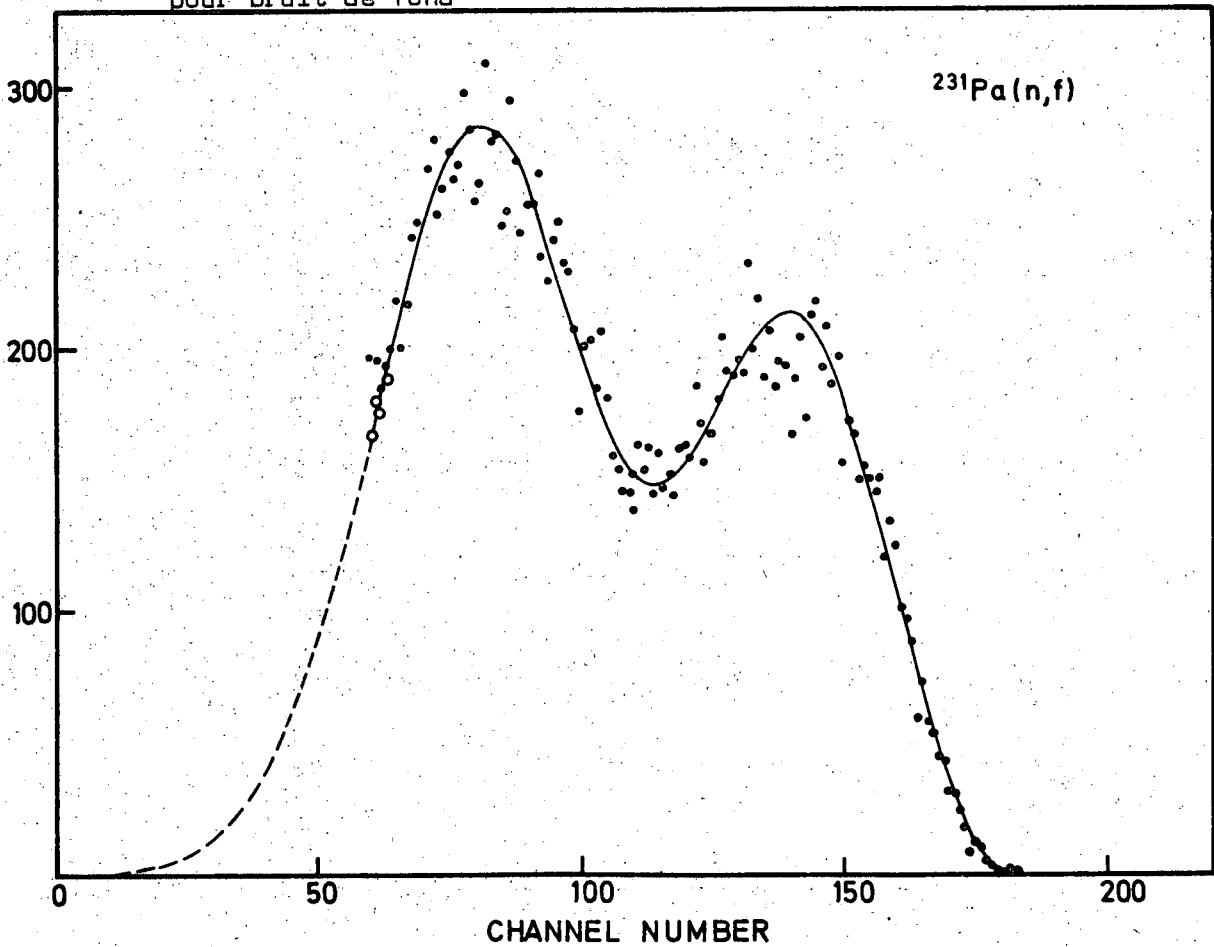
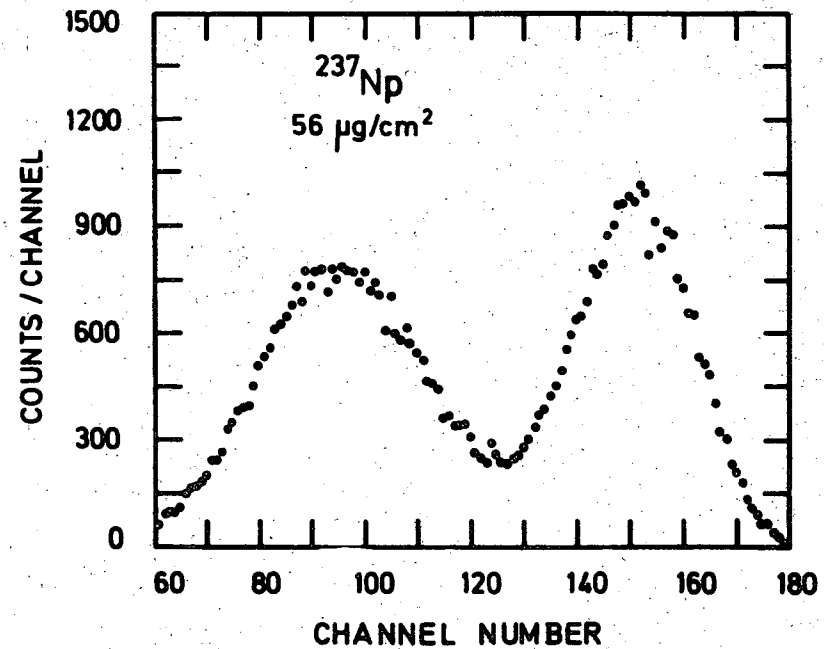
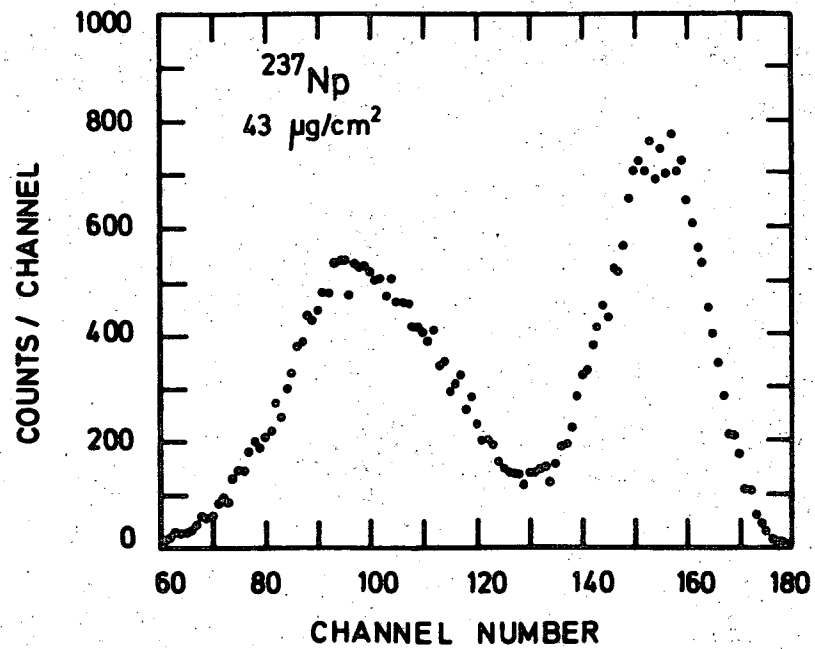
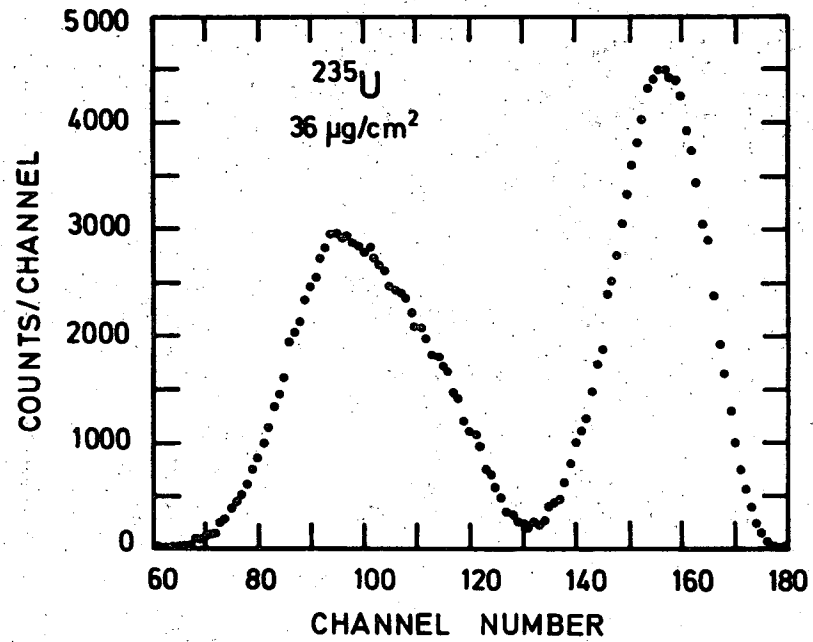
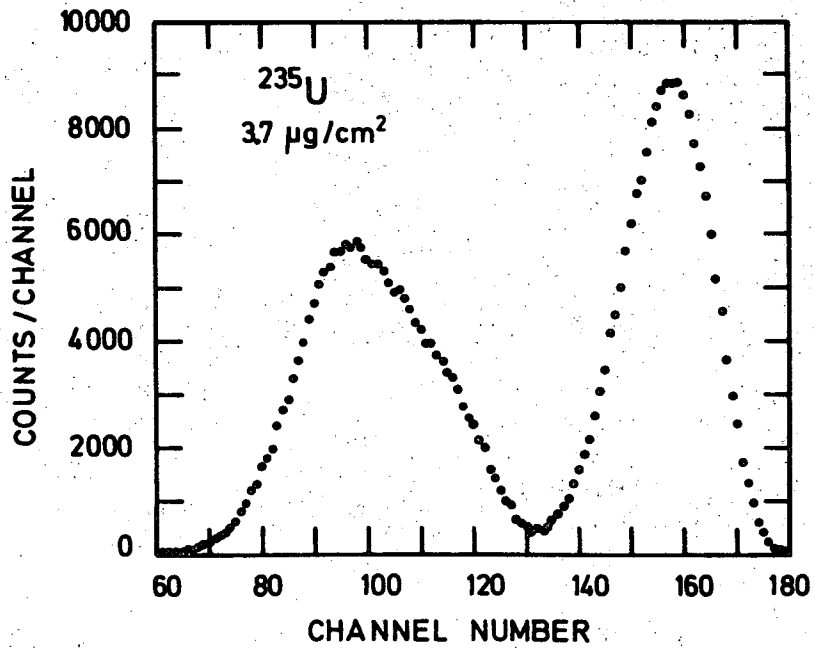


Fig. 2 : Spectre en amplitude pour $^{231}\text{Pa}(n, f)$

Fig. 3 Spectres en amplitude pour $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ et $^{237}\text{Np}(n_{th}, f)$



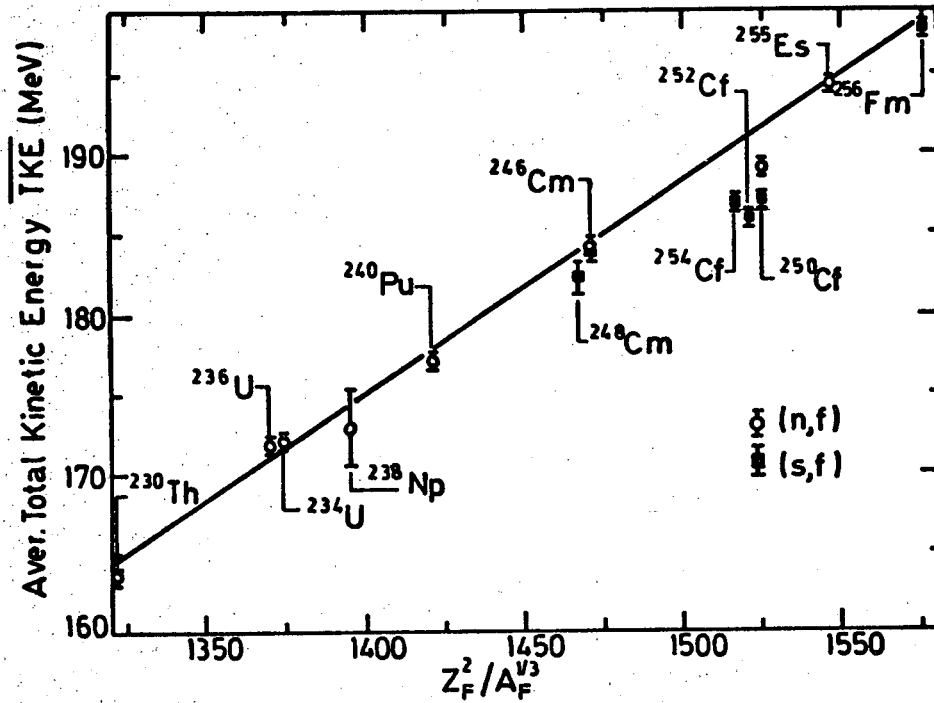


Fig. 4 Energie cinétique totale moyenne \overline{E}_k des fragments de fission pour différents noyaux lourds en fonction de $Z_F^2/A_F^{1/3}$

2