

Physique des cibles de spallation : les codes et leur validation

J. Frehaut

▶ **To cite this version:**

J. Frehaut. Physique des cibles de spallation : les codes et leur validation. École thématique. Ecole Joliot Curie "Production d'énergie nucléaire et traitement des déchets : des filières d'aujourd'hui aux solutions innovantes", Maubuisson, (France), du 9-14 septembre 1996 : 15ème session, 1996. cel-00652665

HAL Id: cel-00652665
https://cel.hal.science/cel-00652665

Submitted on 16 Dec 2011

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.

PHYSIQUE DES CIBLES DE SPALLATION : LES CODES ET LEUR VALIDATION

Joël FRÉHAUT

Service de Physique Nucléaire
CEA/Bruyères-le-Châtel
BP 12, 91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL

RÉSUMÉ

Des systèmes de codes permettent d'étudier les différents aspects du développement et de l'optimisation des cibles de spallation. Après une présentation de la physique de base de ces codes, nous discutons les développements en cours et les perspectives qui s'offrent. Nous montrons ensuite que la base de données actuelles est trop incomplète pour assurer une validation satisfaisante des codes et nous présentons le programme expérimental qui a été mis en place pour répondre aux besoins.

ABSTRACT

Different code system are devoted to development and optimization of spallation targets. The basic physics included in these codes, as well as improvements in progress and new perspectives, are presented. The existing data basis available for code validation is reviewed, as well as the recent experimental programs developed to extend and improve it.

I - INTRODUCTION

La spallation est une interaction entre une particule énergétique et un noyau dans laquelle plusieurs nucléons rapides sont émis, en laissant un noyau résiduel qui se désexcite par évaporation, ou subit éventuellement une fission binaire. Elle a été observée dès la fin des années 40, quand les accélérateurs ont pu fournir des projectiles d'énergie supérieure à la centaine de MeV. Les principes généraux de l'interaction ont été établis par Serber[1], les premiers calculs ont été effectués par Goldberger[2].

La spallation se prête particulièrement bien à des simulations par la méthode de Monte Carlo. Les premiers calculs ont été effectués dès 1958 par l'équipe de Metropolis[3], et ont bien mis en lumière les principales caractéristiques de la spallation. Un programme plus général a été écrit par Bertini en 1963[4] et étendu aux énergies de projectiles inférieures à 2 GeV en 1969[5]. C'est cette dernière version qui a été incluse dans le code HETC (High Energy Transport Code) en 1972[6] qui est encore largement utilisé de nos jours.

La spallation est l'un des mécanismes les plus efficaces pour produire des neutrons. Elle offre aujourd'hui une alternative plus sûre que la fission pour de nouvelles applications telles que l'incinération des déchets radioactifs, la production d'énergie dans des réacteurs hybrides avec le développement de nouvelles filières, la production de tritium, ...

La conception et l'optimisation des cibles de spallation, qui sont très complexes, nécessite des simulations numériques multiples. Il ne s'agit plus maintenant d'étudier un phénomène physique, mais de fournir des réponses quantitatives qui vont guider la conception des cibles et définir les performances ultimes. Dans le passage de la recherche aux applications, il y a un aspect économique important. Les codes doivent être complets et inclure suffisamment de physique pour fournir des résultats quantitatifs fiables ; mais ils doivent aussi être suffisamment simples pour limiter les temps de calcul et permettre ainsi de multiplier les simulations.

En pratique, plusieurs aspects sont à considérer :

- Il faut optimiser la neutronique de la cible, c'est-à-dire :
  - maximiser la production de neutrons ;
  - améliorer le rendement en réduisant les fuites hors cible et les captures stériles de neutrons.

- Il faut prendre en compte les contraintes liées à la réalisation, la fiabilité et la sécurité de la cible. Les codes doivent notamment fournir :
  - les dépôts d'énergie dans les différentes parties de la cible (refroidissement) ;
  - l'évolution temporelle de la population de noyaux résiduels (corrosion, chaleur résiduelle) ;
  - la fluence et le spectre en énergie des particules ainsi que l'énergie de recul des noyaux dans les différentes parties de la cible (évaluation des dommages) ;
  - la fluence et le spectre en énergie des neutrons et photons gamma de fuite (calculs de protection).

Ces contraintes imposent une structuration de la cible qui peut avoir des répercussions importantes sur la neutronique. Optimiser une cible, c'est trouver le meilleur compromis entre la neutronique, c'est-à-dire les performances, et les contraintes liées à la réalisation. Cela ne peut être obtenu qu'avec un ensemble de codes bien validés. Les différents systèmes de codes actuellement développés dans le monde sont tous basés sur les mêmes approches physiques. Dans ce cours, nous prendrons comme exemple, le système TIERCE mis en place au CEA/DAM pour les études préliminaires du programme TRISPAL (production de tritium par spallation).

Après une présentation générale de TIERCE, on passera en revue les modèles de physique sur lesquels reposent les différents codes, en insistant plus particulièrement sur le code HETC. Le chapitre suivant abordera les développements en cours et les perspectives d'amélioration pour les codes. Ensuite, le chapitre consacré à la validation des codes se continuera tout naturellement par la présentation du programme expérimental et l'apport des premiers résultats. Les perspectives d'évolution, à court terme et à plus longue échéance, seront présentées en guise de conclusion.

II - LE SYSTEME DE CODES TIERCE

II.1 - Généralités

Le système de codes TIERCE[7] (Transport des Ions Et du Rayonnement en Cibles Epaisses) a été mis en place au CEA/DAM dans le cadre des études du projet TRISPAL, qui envisage la production de tritium à partir de neutrons de spallation. Il est articulé autour de 2 codes d'usage général : HETC (High Energy Transport Code)[6] et MCNP (Monte Carlo Code for Neutron and Photon transport)[8].

Cette dualité résulte du très large domaine d'énergie à couvrir, du thermique (0,025 eV) à quelques GeV. En dessous de 20 MeV, domaine des réacteurs à fission et de la fusion contrôlée, il existe des jeux de sections efficaces complets pour la plupart des isotopes stables. Des bibliothèques internationales constamment mises à jour et améliorées sont disponibles (ENDF, JEF, JNDL, ...) : MCNP s'appuie sur ces bibliothèques pour traiter le transport. Au-dessus de 20 MeV, les données de sections efficaces sont de plus en plus rares, et en tout cas plus fragmentaires. Les sections efficaces nécessaires pour le transport doivent alors être calculées par des modèles inclus dans le code. HETC est l'un des codes les plus complets dans ce domaine. L'amélioration des performances passe ici par l'amélioration des modèles physiques, qui sera plus particulièrement abordée dans la présente étude.

Le couplage de ces deux codes implique une description géométrique compatible, sinon commune, des cibles complexes qu'on sera amené à modéliser, ainsi que la gestion des interfaces pour la transmission des données. Des traitements complémentaires sont également nécessaires pour obtenir l'ensemble des informations utiles pour la conception et l'optimisation des cibles. La structure du système TIERCE est présentée sur la figure 1.

La géométrie de la cible est définie de façon compatible à partir d'éléments de surface pour MCNP et d'éléments de volume pour HETC, avec gestion de l'interface. La version actuelle de HETC accepte aussi la description par éléments de surface de MCNP pour les cibles ne comprenant pas de motifs répétitifs, ce qui simplifie notablement l'interface. La cible est généralement découpée en blocs pour lesquels on peut obtenir des informations spécifiques (spectres de neutrons, dépôts d'énergie, résiduels, taux de différentes réactions nucléaires ....).

HETC effectue le transport des particules incidentes et de toutes les particules secondaires d'énergie supérieure à 20 MeV. Le libre parcours des particules chargées est alors très court, on admet qu'elles perdent leur énergie sur place, sans transport. Les neutrons sont ensuite transportés par MCNP. Un module spécifique rajouté dans HETC permet, pour chaque interaction nucléaire, d'extraire la fraction de l'énergie de recul des noyaux qui conduit à des déplacements d'atomes (évaluation des dommages).

La désexcitation des noyaux résiduels de HETC (après évaporation de nucléons) et leur décroissance ultérieure est traitée séparément (DESEX et DECROI). Les photons gamma qui en résultent peuvent être transportés par MCNP. Le code MCNP ne fournit pas la population de résiduels créés essentiellement par

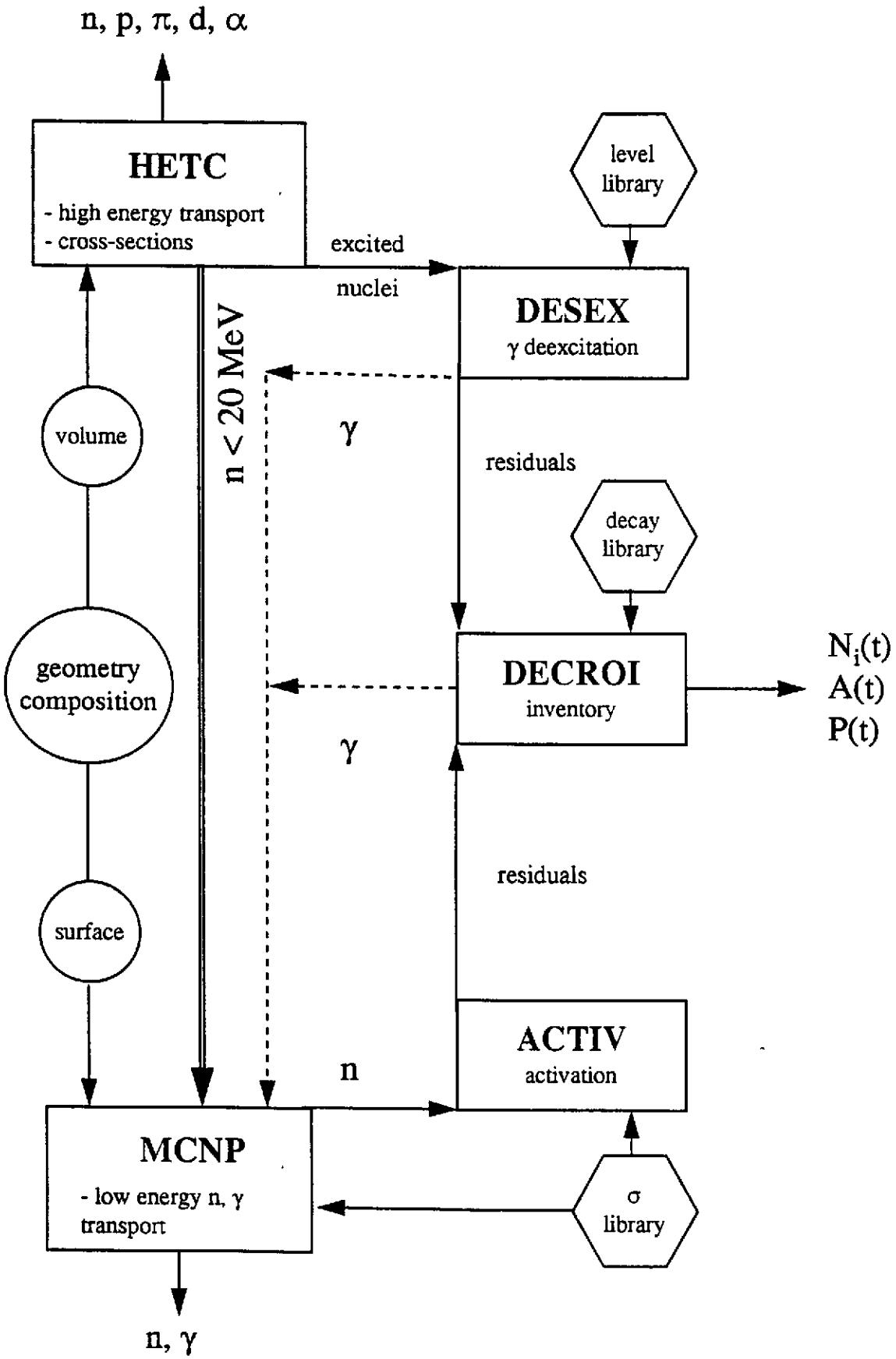


Figure 1 - Organigramme du système de codes TIERCE.

activation (réactions (n, xn) et captures neutroniques). Celle-ci est calculée séparément en utilisant les fluences de neutrons fournies par MCNP et les sections efficaces de réaction correspondantes (ACTIV). Les dommages induits par les neutrons sont déterminés par une prodédure similaire, à partir d'une bibliothèque de sections efficaces de déplacement disponible pour les neutrons d'énergie inférieure à 20 MeV.

Cet ensemble complexe, mais complet, fournit les données nécessaires pour la conception de cibles de spallation opérationnelles, dans lesquelles les contraintes thermiques et la tenue des matériaux jouent un rôle important, à côté des performances nucléaires.

II.2 - Le code MCNP

Le code MCNP est essentiellement un code de transport de neutrons et de photons basé sur la technique de Monte Carlo. Développé récemment, il incorpore toutes les possibilités des techniques de biaisage qui permettent d'améliorer localement la précision statistique. Les probabilités d'interaction et les distributions en angle et en énergie des produits de réaction sont déterminées à partir de sections efficaces tabulées et disponibles dans des banques de données (ENDF, JEF, JENDL ...) qui, pour les neutrons, couvrent la plupart des isotopes stables dans le domaine d'énergie inférieur à 20 MeV. Il est donc particulièrement adapté au domaine des réacteurs à fission et de la fusion. Dans ce domaine d'énergie, les particules chargées ont un libre parcours moyen faible, et en toute logique leur transport n'a pas été prévu. Les améliorations possibles concernent essentiellement les données de base. Celles-ci sont en général d'excellente qualité pour les éléments utilisés dans les réacteurs, mais probablement moins bonnes pour les autres éléments. En tous cas, cet aspect est à regarder pour les matériaux nouveaux utilisés dans le cadre de la spallation.

L'extension du code à plus haute énergie pour les neutrons ne pose d'autre problème que l'extension des bibliothèques de données et quelques aménagements. Mais il deviendra alors nécessaire de prendre en compte le transport des particules chargées. C'est une modification importante, surtout si l'on veut bénéficier des mêmes possibilités que pour les neutrons.

II.3 - Le code HETC

Le code HETC assure le transport et l'interaction dans des cibles complexes des projectiles de haute énergie et des secondaires émis, tant que leur énergie est supérieure à un seuil donné généralement fixé à 20 MeV. De conception ancienne et d'une utilisation limitée jusqu'ici, il n'a pas beaucoup évolué. Ce sont les perspectives nouvelles, liées aux développements techniques, offertes par les sources intenses de neutrons de spallation qui justifient l'intérêt nouveau pour ce code.

Toutes les données nucléaires nécessaires sont calculées dans le code à partir de modèles. Les seules données extérieures concernent les sections efficaces nucléon-nucléon. La physique de HETC n'est pas bien connue, l'information est très dispersée. C'est pourquoi nous la présenterons en détail : la cascade intranucléaire qui traite l'interaction des particules de haute énergie avec le noyau ; la désexcitation du noyau résultant par

évaporation de nucléons en compétition avec la fission ; enfin le transport des particules primaires et secondaires dans une cible épaisse.

Un chapitre séparé traitera des développements en cours ou en projet pour améliorer ce code à partir de modèles physiques plus performants.

II.3.1 - La cascade intranucléaire

A haute énergie, au-dessus de quelques centaines de MeV, la longeur d'onde associée à un nucléon est du même ordre de grandeur que la dimension des nucléons dans le noyau. Pour le nucléon incident, le noyau devient relativement transparent, et ressemble plutôt à une sphère de gaz dilué, dans laquelle il va interagir avec les nucléons individuels que l'on peut considérer comme indépendants moyennant certaines précautions. Une cascade de collisions va se développer, conduisant à l'émission de nucléons et laissant un noyau résiduel excité : c'est la cascade intranucléaire, dont le temps caractéristique est de l'ordre de 10^{-22}s, tandis que le noyau résiduel va se désexciter par évaporation de nucléons avec un temps caractéristique de l'ordre de 10^{-16}s.

De par sa nature, la cascade intranucléaire se prête bien à une simulation par la méthode de Monte Carlo. HETC incorpore le programme développé par Bertini[4] dont nous présentons ici les principales caractéristiques. Le cours de J. Cugnon développe par ailleurs les aspects plus fondamentaux de la cascade intranucléaire.

Densité de nucléons dans le noyau

Pour les noyaux lourds et de masse moyenne, la densité de charge peut se mettre sous la forme :

$$\rho(r) = \frac{\rho_1}{e^{\frac{r-c}{a}} + 1}$$

avec a = 0.545 fm et $cA^{-1/3}$ = 1.07 fm. A est le nombre de masse et ρ_1 un paramètre de normalisation.

Dans le code, le noyau se compose de 3 sphères concentriques de rayon correspondant à 0.9, 0.2 et 0.01 de la densité maximale. Dans chaque région, la densité est uniforme et définie par la valeur moyenne obtenue à partir de la distribution continue. La normalisation est telle que l'intégrale pour les trois régions donne le nombre de protons du noyau. Le même découpage est adopté pour les neutrons avec une normalisation similaire, c'est-à-dire que le rapport du nombre de neutrons au nombre de protons est identique dans chaque région et égal à N/Z.

Distribution de l'impulsion des nucléons

On néglige l'interaction entre nucléons, la distribution des impulsions est une distribution de Fermi à température nulle, c'est-à-dire que l'on a dans chaque région :

$f(p) = c\,p^2$, avec $\int_0^{p_f} f(p)\,dp = n_p$ ou n_n , nombre de protons ou neutrons dans la région.

P_f est l'impulsion correspondant à l'énergie de Fermi :

$$\left(E_f = \frac{P_f^2}{2m} = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{3\pi^2 n}{v} \right)^{2/3} \right)$$

qui dépend de la densité $\frac{n}{v}$ de particules, et qui est donc différente pour chaque zone et chaque type de particules. La distribution composite qui en résulte pour la totalité du noyau (figure 2) n'est pas une distribution de Fermi à température nulle.

Distribution de l'énergie potentielle dans le noyau

L'énergie de liaison du nucléon le moins lié est prise systématiquement égale à 7 MeV quels que soient le noyau et la zone considérée. En ajoutant l'énergie de Fermi des nucléons de chaque zone à cette quantité, on obtient la distribution de l'énergie potentielle, qui est donc différente pour les protons et les neutrons.

Sections efficaces nucléon - nucléon

La probabilité d'interaction au cours de la cascade est obtenue à partir des sections efficaces nucléon - nucléon libres. Elles ont été introduites sous forme paramétrisée à partir d'ajustements sur les résultats expérimentaux alors existants, notamment pour les distributions angulaires. Les sections efficaces nucléon - nucléon introduites sont la section efficace élastique et les sections efficaces de production de 1 et 2 pions.

L'interaction des pions avec les nucléons est également traitée (diffusion élastique, échange de charge, absorption). Une présentation détaillée des sections efficaces en dessous de 740 MeV et des distributions angulaires correspondantes est donnée dans la référence 4, une extension jusqu'à 2 GeV apparaît dans la référence 5.

Principe d'exclusion de Pauli

Le principe d'exclusion de Pauli interdit toute interaction dans laquelle l'un des produits correspondrait à un état déjà occupé. Pour un gaz de Fermi dégénéré, tous les états jusqu'à l'énergie de Fermi sont occupés. En conséquence, le principe d'exclusion de Pauli est pris en compte dans le calcul en négligeant a posteriori toute collision dans laquelle l'un des produits a une énergie inférieure à l'énergie de Fermi.

Déroulement de la cascade intranucléaire

On peut suivre le déroulement de la cascade à partir de la figure 3 qui correspond à l'interaction d'un proton de 400 MeV avec un noyau ne comportant qu'une seule zone de densité uniforme pour simplifier. Dès qu'il pénètre dans le noyau, le proton a une énergie augmentée de l'énergie potentielle, 31 MeV. La première interaction conduit à 2 nucléons de 131 et 313 MeV et est donc autorisée. La différence (313 + 131 - 431 = 13 MeV) correspond à l'énergie du nucléon rencontré (gaz de Fermi dégénéré). L'un des nucléons s'échappe du noyau en perdant les 31 MeV de l'énergie potentielle.

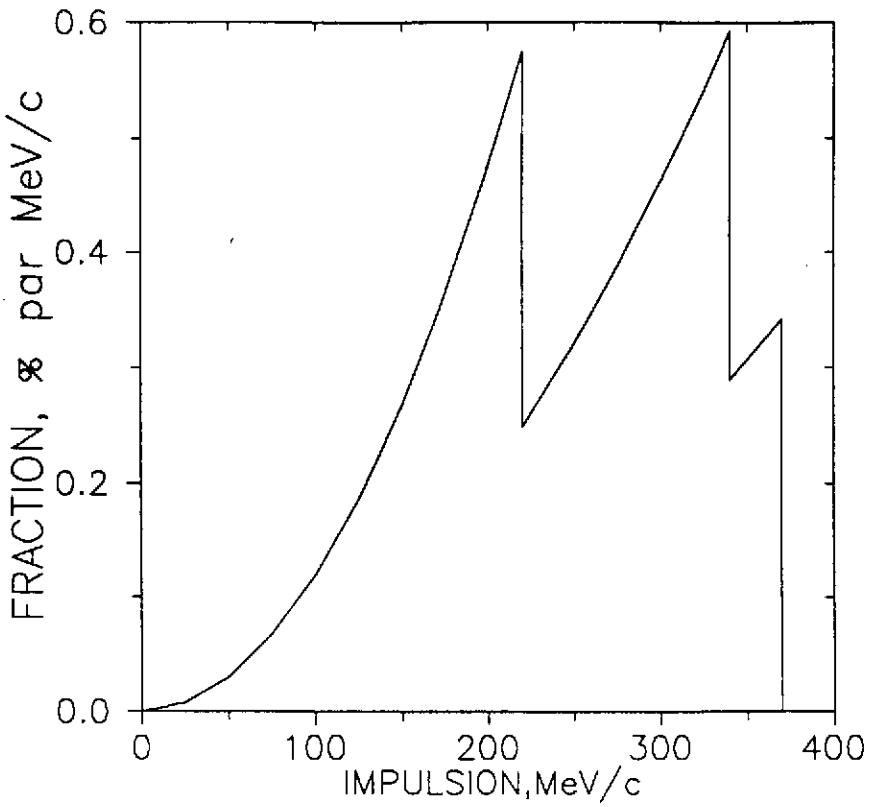


Figure 2 - Distribution de l'impulsion des nucléons à l'intérieur d'un noyau de masse A = 12O, d'après (référence 4)

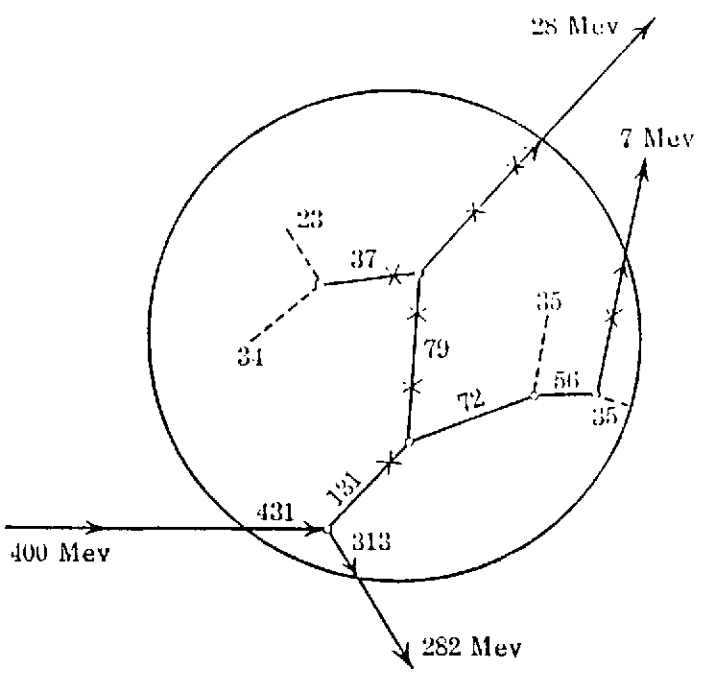


Figure 3 - Projection plane d'une cascade intranuclcéaire simulée par la méthode de Monte Carlo, d'après (référence 9).

L'autre nucléon poursuit sa course par une interaction interdite par le principe d'exclusion (croix) et continue donc en ligne droite jusqu'à l'interaction suivante, autorisée, et ainsi de suite.

Les nucléons d'énergie inférieure à 35 MeV restent dans le noyau. Les 4 MeV au-dessus de l'énergie potentielle correspondent à la prise en compte d'une barrière coulombienne moyenne pour les nucléons. Dans HETC, les neutrons sortent s'ils ont une énergie au moins égale à l'énergie potentielle, et on rajoute pour les protons un seuil égal à la moitié du maximum de la barrière coulombienne pour tenir compte qualitativement de la transmission de celle-ci.

En fin de compte, trois nucléons résultent de la cascade, et le noyau résiduel est excité à 67 MeV, en prenant une énergie de liaison de 8 MeV par nucléon.

De façon générale, le nucléon incident perd peu d'énergie dans une collision. Le transfert d'impulsion est de l'ordre de $\frac{\hbar^2}{R}$ où R est la portée des forces nucléaires, ce qui implique des transferts d'énergie de l'ordre de quelques trentaines de MeV tout au plus.

Les nucléons très rapides issus de la cascade correspondent surtout à des collisions périphériques dans lesquelles le nucléon incident ne subit qu'un très petit nombre de collisions, comme dans l'exemple présenté ici.

II.3.2 - L'évaporation

L'évaporation dans HETC est basée sur la théorie de Weisskopf[10] et utilise pour l'essentiel le code EVAP de Dresner[11], qui s'appuie lui-même sur les travaux de Dostrovsky et al.[12].

La probabilité $P_i(\varepsilon)$ qu'un noyau excité à une énergie U émette une particule de type i, de masse m_i et d'énergie ε est :

$$P_i(\varepsilon) \sim g_i\, m_i\, \varepsilon\, \sigma_{ci}(\varepsilon)\, \rho(E)$$

où g_i est le nombre d'états de spin et E est l'énergie d'excitation du noyau résiduel :

$$E = U - B_i - \varepsilon$$

B_i est l'énergie de liaison de la particule i, que l'on déduit à partir de tables de masses, et ρ est la densité de niveaux dans le noyau résiduel. σ_{ci} est la section efficace de réaction inverse, c'est-à-dire la section efficace de formation du noyau composé à partir du noyau résiduel bombardé par la particule i d'énergie ε.

La densité de niveaux est prise de la forme :

$$\rho(E) \sim e^{2\sqrt{a(E-\delta)}}$$

où δ est l'énergie d'appariement et $a = \frac{A}{8}\left[1 + 1.5\left(1 - \frac{27}{A}\right)^2\right]$.

Les sections efficaces de réaction inverse sont des sections géométriques avec un terme empirique pour la dépendance en énergie et une prise en compte simplifiée de la barrière coulombienne pour les particules chargées.

Pour les neutrons, $\sigma_{cn}(E) = \pi R^2 \alpha \left(1 + \frac{\beta}{E}\right)$

avec $\alpha = 0.76 + 1.93 / A^{1/3}$, $\alpha\beta = 1.66 / A^{1/3} - 0.05$, $R = 1.7\ A^{1/3}$.

Pour les particules chargées, $\sigma_{ci}(E) = \pi R^2 (1 + c_i)\left(1 - \frac{K_i V_i}{E}\right)$ pour $E > K_i V_i$ et $\sigma_{ci} = 0$ pour $E < K_i V_i$.

Cinq particules chargées sont considérées : p, d, t, ^{3}He, α, et les valeurs de c_i et K_i sont les suivantes, en fonction de la charge Z du noyau cible :

Z	K_p	C_p	K_α
10	0.6	0.08	0.77
20	0.51	0.00	0.81
30	0.60	-0.06	0.85
40	0.66	-0.10	0.89
50	0.68	-0.10	0.93
60	0.69	-0.10	0.97
>70	0.69	-0.10	1.00

$K_d = K_p + 0.06$ $\quad C_d = C_p / 2$

$K_t = K_p + 0.12$ $\quad C_t = C_p / 3$

$K_{^3He} = K_\alpha - 0.06$ $\quad C_{^3He}, C_\alpha = 0$

V_i est déterminé par la relation : $V_i = Z_i Z e^2 / (R + R_i)$, avec R_i = 0 pour les protons et 1.2 fm pour les autres particules.

La probabilité d'évaporer la particule i est donnée par : $P_i = \frac{p(i)}{\sum_{i=1}^{6} p(i)}$

avec $p(i) = \int_{K_i V}^{U - B_i - \delta} P_l(\varepsilon)\, d\varepsilon$ (5 particules chargées + neutron).

Le spectre en énergie de la particule évaporée est : $P(\varepsilon_i) = \dfrac{E_i\, e^{-\frac{E_i}{T_i}}}{T_i^2}$

avec $E_i = \varepsilon_i - K_i V_i$ et $<\varepsilon_i> = 2\,T_i = \dfrac{1}{p(i)} \int_{K_i V_i}^{U-B_i-\delta} \varepsilon\, P_i(\varepsilon)\, d\varepsilon$.

Les intégrales ont une solution analytique et l'on obtient :

pour les neutrons $p(i) = A^{2/3}\ \alpha\left(I_1(S)+\beta I_0(S)\right)$

pour les particules chargées $p(i) = \dfrac{g_i\, m_i}{2} A^{2/3}(1+Ci)\ I_1(S)$.

$$2\,T_i = \frac{I_2(S)+\beta\ I_1(S)}{I_1(S)+\beta\ I_0(S)}\ ,\ \text{avec } \beta = 0 \text{ pour les particules chargées.}$$

avec : $S = 2\ \sqrt{a\left[U - K_i\, V_i - Bi - \delta\right]}$

$$I_0(S) = \frac{1}{2a}\left[1+(S-1)\ e^S\right]$$

$$I_1(S) = \frac{1}{8a^2}\left[S^2 - 6 + \left(6 - 6S + 2\,S^2\right)e^S\right]$$

$$I_2(S) = \frac{1}{32a^3}\left[S^4 - 12S^2 + 120 + \left(8S^3 - 48S^2 - 120S - 120\right)e^S\right].$$

II.3.3 - <u>La fission</u>

La fission a été introduite dans HETC par F. Atchinson en 1976 dans le but d'optimiser la source pulsée de neutrons ISIS pour laquelle l'uranium naturel était une cible possible pour la production de neutrons de spallation[13].

<u>Probabilité de fission</u>

La fission entre directement en compétition avec l'évaporation de particules. La probabilité de fission peut donc s'écrire : $P_f = \dfrac{\Gamma_f}{\Gamma_f + \Gamma_e}$ où Γ_f est la largeur de fission et Γ_e la largeur pour l'évaporation. La probabilité d'évaporation d'une particule est alors 1 - P_f. En pratique l'évaporation de neutrons est largement prédominante et on remplace généralement Γ_e par Γ_n pour le calcul de P_f. Expérimentalement, on a accès au rapport Γ_n / Γ_f par l'intermédiaire de mesures de sections efficaces de fission et de sections efficaces de réaction (p,x n) ou (α, x n) [14].

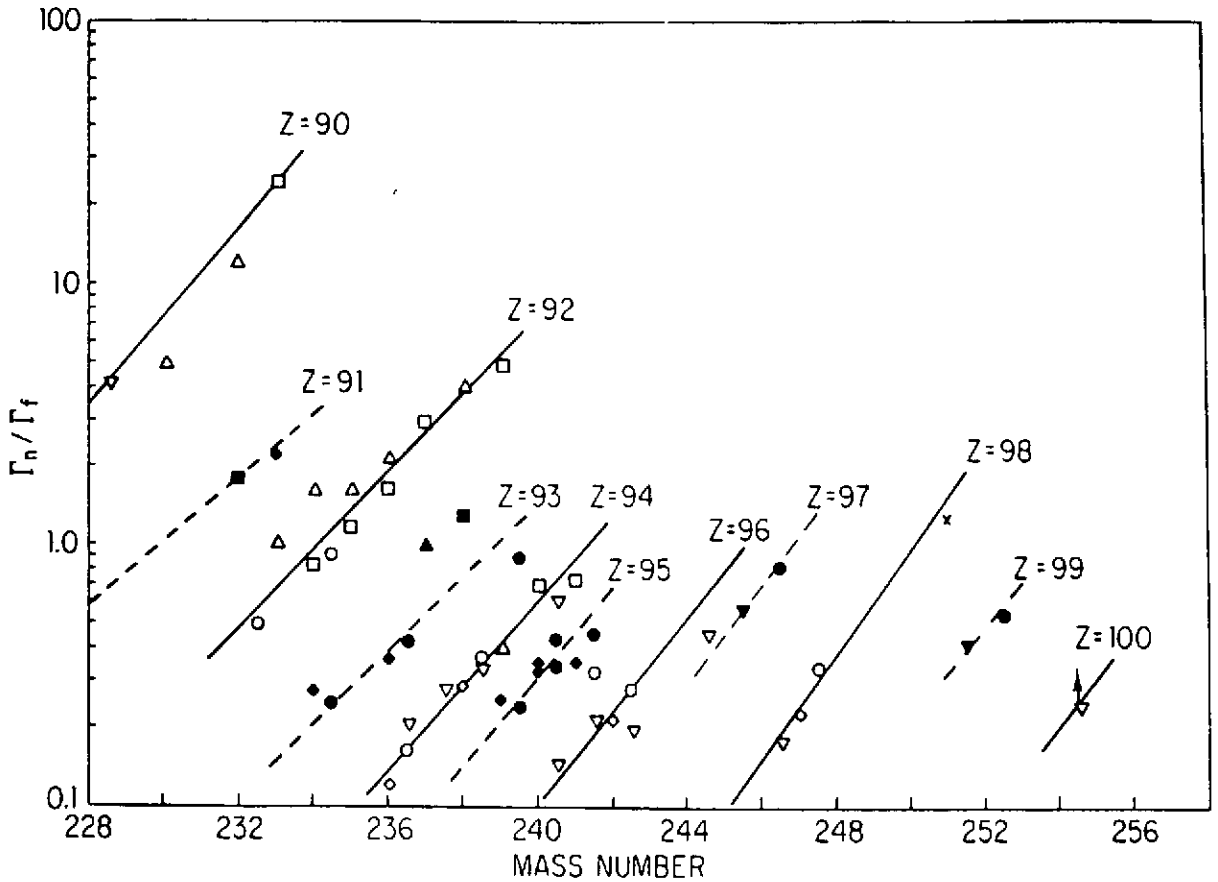


Figure 4 : Rapport de la largeur d'évaporation de neutrons à la largeur de fission en fonction du nombre de masse pour les actinides[15].

Z	89	90	91	92	93	94
Ao	221.6	225.8	230.1	234.4	238.63	241.34
C	0.154	0.175	0.169	0.165	0.165	0.15735

Z	95	96	97	98	99	100
Ao	243.04	245.52	246.84	250.18	254.0	257.8
C	0.16597	0.17589	0.18018	0.19568	0.16313	0.17123

Table I : Constantes Ao et C en fonction de Z pour le lissage de Γ_n/Γ_f par la loi $\log_{10} \dfrac{(\Gamma_n)}{(\Gamma_f)} = C\,(A - A_o)$

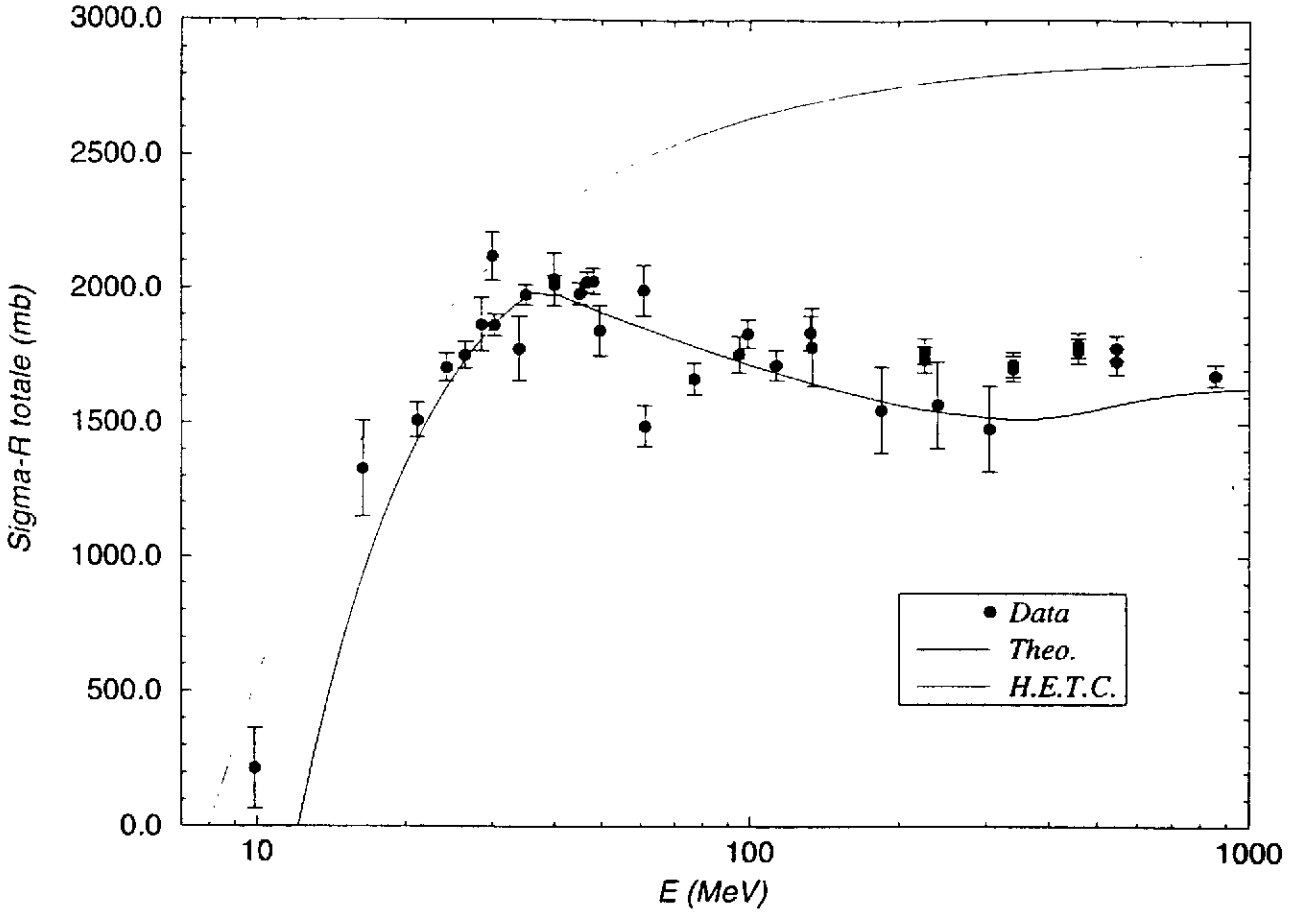


Figure 5 - Section efficace de réaction pour ^{208}Pb.
Comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul basé sur le modèle de Glauber.
La courbe supérieure est la section efficace de la version standard de HETC.

Pour le calcul des sections efficaces de diffusion élastique et d'excitation des niveaux collectifs discrets, le modèle optique et le formalisme des voies couplées sont tout à fait adaptés. Le code ECIS 88 est particulièrement bien adapté pour ces calculs[32].

Le modèle de pré-équilibre quantique permet de traiter l'émission dans le continum et de calculer les sections efficaces doublement différentielles en angle et énergie. Le code MINGUS[33] est un excellent outil dans ce domaine.

Ces deux codes ont été utilisés pour établir la base de données pour le ^{208}Pb. La figure 6 montre l'amélioration qu'apporte MINGUS par rapport à HETC pour les sections efficaces doublement différentielles d'émission de neutrons pour une cible mince de Pb irradiée par des protons de 113 MeV.

Dans le domaine d'énergie considéré, le nombre de voies de sortie possibles est important, et il n'est pas réaliste de fournir des données détaillées pour chacune d'elles.

Lorsqu'on étudie la fission en fonction du paramètre de fissibilité Z^2/A, on constate un comportement très différent selon que Z^2/A est supérieur ou inférieur à 34, ce qui correspond à $Z = 89$. Pour les actinides, la barrière de fission est approximativement constante et égale à 6 MeV. La probabilité de fission est pratiquement indépendante de l'énergie d'excitation au- dessus de la barrière, et la fig.4 montre qu'on peut exprimer Γ_n/Γ_f sous la forme [15] : $\log_{10}\frac{(\Gamma_n)}{(\Gamma_f)} = C(A - A_O)$ où A est le nombre de masse du noyau, et C et A_o des constantes dépendant de Z données dans la table I.

Dans HETC, la probabilité de fission pour les actinides est nulle pour une énergie d'excitation inférieure à 6 MeV et déduite à partir de la formule ci-dessus au-delà de 6 MeV.

Pour les noyaux plus légers, Γ_n/Γ_f dépend fortement de l'énergie d'excitation E et est évalué à partir du modèle statistique[14] :

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{2gm}{\pi\hbar^2}\frac{\int_0^{E-E_n}\varepsilon\sigma(\varepsilon)\ \rho(E-E_n-\varepsilon)\,d\varepsilon}{\int_0^{E-E_F}\rho_s(E-E_f-\varepsilon)\,d\varepsilon}$$

où g est un facteur statistique de spin, m la masse du neutron, E_n l'énergie de liaison du neutron, E_f la barrière de fission, $\sigma(\varepsilon)$ la section efficace de réaction inverse pour le neutron, ρ et ρ_s les densités de niveaux dans le puits et au point selle.

En utilisant les densités de niveaux et la section efficace de réaction inverse pour les neutrons définies pour l'évaporation, la relation est intégrable et l'on obtient, avec les mêmes définitions pour $I_o(a,S)$ et $I_1(a,S)$:

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{2\,g\,m\,r_o^2A^{2/3}}{\hbar^2}\cdot\frac{\beta\,I_o(a_n,S_n)+I_1(a_n,S_n)}{I_o(a_f,S_f)}$$

avec $S_n = 2\sqrt{a_n(E-E_n)}$, $S_f = 2\sqrt{a_f(E-E_f)}$, et $a_n = \frac{A-1}{8}$.

L'énergie E_n de liaison du neutron est connue d'après les tables de masses, la barrière de fission E_f et la densité de niveaux au point selle a_f sont obtenues par ajustement sur les données expérimentales existantes :

$$E_f - E_n = 1.9624 + 0.2185\left(38.222 - \frac{Z^2}{A}\right)^2$$

$$\frac{a_f}{a_n} = 1.0893 + 0.011\left(\frac{Z^2}{A} - 31.086\right)^2$$

L'utilisation de ces résultats pose des problèmes.

Comme $a_f > a_n$, la probabilité de fission tend vers 1 à haute énergie d'excitation, alors qu'il serait plus raisonnable d'utiliser dans cette région $a_f = a_n$ comme le suggèrent les études sur les densités de niveaux[16]. Cela a conduit Atchinson à introduire une limitation arbitraire de la probabilité de fission en la multipliant par le facteur : $\min\left(1, \frac{Q_e}{E}\right)$, où Q_e est la somme de la chaleur de réaction et de l'énergie cinétique des fragments de fission, et E l'énergie d'excitation initiale.

D'autre part, l'émission de particules chargées étant très réduite par l'introduction de la fission, Atchinson a introduit une diminution de la barrière coulombienne avec l'énergie d'excitation. De plus, les particules chargées ne sont en compétition qu'avec les neutrons dans le modèle d'évaporation, la compétition de la fission ne jouant qu'avec l'émission de neutrons dans une étape ultérieure.

Fragments de fission

Pour les actinides, la fission est asymétrique à faible énergie d'excitation. En accord avec les résultats expérimentaux, le fragment lourd est choisi sur une gaussienne de variance 6,5 centrée sur A = 140.

A plus haute énergie d'excitation E, une composante asymétrique apparaît avec une proportion :

$$\frac{\Gamma_f^{sym}}{\Gamma_f^{asym}} = 2.05\ 10^{-4}\ e^{0.36E}$$

La distribution en masse est alors une gaussienne centrée sur $\frac{A}{2}$ et de variance.

$$\sigma = 0.397 + 0.425\ (E - E_f) - 0.0021\ (E - E_f)^2$$

avec $E_f = 18.1 - 0.36\frac{Z^2}{A} + \varepsilon$.

ε = 0.4 : fragments pair - pair

0.7 : fragments impair - impair

0 : fragments pair - impair

En dessous des actinides, la fission est toujours symétrique, avec la variance définie ci-dessus, mais les valeurs de E_f utilisées sont celles des calculs de probabilité de fission.

La charge des fragments est définie en assurant une distance égale par rapport à la vallée de stabilité définie par :

$$Z_s(A) = \frac{A}{2 + 0.0153\ A^{2/3}}$$

La charge du premier fragment est alors :

$$Z_1 = Z_s(A_1) + \frac{1}{2}\left[Z - Z_s(A_1) - Z_s(A_2)\right]$$

avec un lissage par une gaussienne de largeur à mi-hauteur 2 centrée sur Z_1.

Dans tous les cas, la masse et la charge du deuxième fragment sont déterminées par les lois de conservation. L'énergie d'excitation est répartie proportionnellement à la masse des fragments.

L'énergie cinétique totale des 2 fragments résulte de la répulsion coulombienne après la scission et est donnée par la relation[14] :

$$E_{Kt} = 0.1065 \frac{Z_1 Z_2}{A_1^{1/3} + A_2^{1/3}} + 20.1 \text{ MeV.}$$

En accord avec les résultats expérimentaux, la distribution est gaussienne, avec une largeur à mi-hauteur de 15 %. La répartition entre les 2 fragments résulte de l'application de la conservation de l'énergie et de l'impulsion dans le référentiel du centre de masse. La désexcitation des fragments est alors traitée de façon standard par évaporation de particules.

II.3.4 - Transport dans une cible épaisse

HETC assure le transport des particules dans des cibles à géométrie complexe. L'aspect géométrique ne sera pas détaillé. Disons simplement que la cible est divisée en un certain nombre de blocs, de composition homogène (qui peut être un mélange), qui constituent les volumes élémentaires pour lesquels on peut avoir accès à une information particulière.

Toutes les particules du faisceau incident sont transportées, ainsi que toutes les particules secondaires issues des cascades intranucléaires. Les particules sont suivies jusqu'au moment où elles atteignent une énergie seuil, généralement fixée à 20 MeV, si elles n'ont pas quitté la cible.

Le transport d'une particule commence par déterminer à quelle distance aura lieu la prochaine interaction avec un noyau, en utilisant une section efficace géométrique moyenne déterminée pour le bloc où se trouve cette particule. La géométrie intervient à ce niveau. La particule change - t'elle de bloc ? Si oui on la place à l'interface entre les 2 blocs, on détermine sa perte d'énergie sur le trajet et on boucle le processus. La particule sort-elle de la cible ? Si oui on détermine son énergie à la sortie et ses coordonnées sont entrées dans le fichier adéquat. On passe alors à la particule suivante.

Dans les autres cas, la particule interagit dans le bloc considéré et on détermine sa perte d'énergie sur le parcours. Dans le cas d'un mélange, on détermine le noyau cible en fonction de la composition. L'interaction est traitée par la cascade intranucléaire : ce sont donc en définitive les sections efficaces nucléon - nucléon qui déterminent la probabilité d'interaction dans le transport ; la section efficace géométrique ne détermine que la probabilité de rencontre de la particule avec le noyau cible. HETC fournit en fait la section efficace de réaction à

partir des sections efficaces nucléon - nucléon. Toutes les particules issues de la cascade et de la désexcitation par évaporation ou fission du noyau résiduel sont transportées de la même façon.

La perte d'énergie des particules chargées par diffusion inélastique est traitée par le formalisme classique avec prise en compte de la dispersion angulaire. Si l'énergie de la particule descend en dessous de 20 MeV, on considère qu'elle est arrêtée dans la cible et le point d'arrêt est déterminé en tenant compte de la fluctuation de parcours ("straggling"). Pour les neutrons d'énergie inférieure à 100 MeV, la diffusion élastique peut être traitée à condition d'entrer les données de base correspondantes. A défaut, et pour les neutrons de plus haute énergie, le transport a lieu sans perte d'énergie entre les cascades. Tout neutron émis avec une énergie inférieure à 20 MeV, ou qui passe en dessous de cette énergie au cours du transport, est abandonné. Ses coordonnées spatiales et son énergie sont stockées dans un fichier ad hoc pour traitement ultérieur.

A chaque étape, l'énergie déposée est comptabilisée par bloc. On établit la table des noyaux résiduels, avec leur énergie d'excitation après émission de particules. L'énergie de recul de tous les noyaux est systématiquement déterminée et peut être utilisée pour les calculs de dommages (d p a, déplacements par atome).

II.4 - Désexcitation gamma des noyaux résiduels

HETC ne traite pas la désexcitation des noyaux résiduels après évaporation de nucléons. L'énergie disponible est néanmoins comptabilisée et on peut considérer qu'elle est déposée sur place dans une première approche. Cependant la désexcitation se produit essentiellement par émission de photons gamma dont le libre parcours n'est pas négligeable.

L'énergie peut donc être déposée assez loin du lieu de production des résiduels, et cet aspect doit être traité plus correctement si l'on s'intéresse au dépôt d'énergie dans la cible. Le programme DESEX a été développé pour traiter la désexcitation gamma des noyaux. Le transport de ces photons est ensuite assuré par le code MCNP. A basse énergie d'excitation, les transitions sont déterminées à partir d'un fichier de niveaux répertoriés. A plus haute énergie les probabilités de transition sont évaluées à partir de distributions continues classiques de densités de niveaux dépendant du moment angulaire, et l'énergie des photons est obtenue par la méthode de Monte-Carlo. Cela conduit à une allure générale typique d'exponentielle négative pour le spectre en énergie des photons émis, sur lequel se superposent quelques raies discrètes à basse énergie.

II.5 - Décroissance des noyaux résiduels

HETC fournit la distribution des résiduels de spallation et de fission, MCNP les produits d'activation. Une partie de ces résiduels sont des noyaux radioactifs dont il faut suivre l'évolution au cours du temps pour déterminer l'activité de la cible et la chaleur résiduelle. Cet aspect est traité dans le code DECROI. Il fait appel à des bibliothèques de données de décroissance : la bibliothèque américaine ENSDF,complétée par la bibliothèque locale NUBASE[17], qui contient des informations pour 2923 nucléides et prend en compte les états isomériques de période supérieure à la milliseconde.

On aboutit à un système d'équations différentielles linéaires couplées, les équations de Bateman généralisées, qui incluent à la fois des termes de décroissance et des termes d'alimentation. Ce système est résolu par une approche matricielle très générale qui donne la population de noyaux radioactifs en fonction du temps. On peut en déduire l'activité radioactive de la source et la chaleur correspondante déposée en fonction du temps. Pour l'instant, le traitement des produits de fission issus de MCNP n'est pas inclus (cas de cibles fissiles ou fissibles). Il pourrait être traité au même niveau que les produits d'activation.

II.6 - Evaluation des dommages d'irradiation

Toute modification du réseau cristallin d'un matériau peut être considérée comme un dommage. A ce titre, les noyaux résiduels participent aux dommages. La production de gaz (réactions (n,p) et (n,α) en particulier) est particulièrement néfaste. Nous aborderons ici le déplacement d'atomes de façon succincte, car les données de base doivent être fournies par les codes. Dans toute réaction nucléaire, le noyau recule, des particules chargées peuvent être émises. Un ion perd essentiellement son énergie par ionisation le long de sa trajectoire.

Toutefois, ce mécanisme est beaucoup moins efficace à basse énergie, et en dessous d'une énergie de l'ordre du KeV par nucléon, c'est la diffusion élastique sur les noyaux qui devient prépondérante. Si l'énergie cédée est supérieure à l'énergie de liaison dans le réseau (de 10 eV pour Al à 90 eV pour W) on a de nouveaux noyaux de recul en cascade et en fin de compte un ensemble de noyaux interstitiels et de lacunes complémentaires.

Les sections efficaces de diffusion élastique et d'ionisation sont calculables. A partir de l'énergie de recul T d'un noyau initial, on peut donc en déduire la fraction $E_o = \xi\ T$ cédée par diffusion élastique et le nombre moyen d'atomes déplacés, $n = \frac{0.4\ E_o}{\varepsilon_o}$, où ε_o est l'énergie de liaison des atomes dans le réseau. Le facteur 0.4 résulte des interactions pour lesquelles l'énergie transférée est inférieur à ε_o.C'est l'énergie E_O qui est calculée pour chaque réaction nucléaire dans HETC en utilisant le code TRIM[18] comme intermédiaire.

Une autre façon de procéder est de calculer la section efficace d'énergie de dommage (barn KeV) :

$$\sigma_E = \sum_i \int \sigma_i(E, E_o) E_o\, dE_o$$

qui prend en compte les différentes réactions i possibles pour un projectile d'énergie E et les distributions d'énergies de dommages E_o correspondantes. Ces dernières sont établies à partir du formalisme précédent et des sections efficaces de réaction tirées des bibliothèques.

On peut en déduire la section efficace de déplacement : $\sigma_d = \frac{0.4}{\varepsilon_0} \sigma_E$ et le nombre de déplacements par atome (dpa), dans une fluence de particules ϕ (E), est alors : $dpa = \int \sigma_d\ \phi\ (E)\ dE$. C'est cette dernière procédure qui est utilisée dans le cadre de MCNP.

Les neutrons sont une source importante de déplacements, car ils ne perdent leur énergie que par réactions nucléaires, diffusion élastique et inélastique pour l'essentiel.

Le nombre de dpa est la référence pour l'évaluation des dommages. Typiquement le nombre de dpa par an est de 1 pour la source de spallation LANSCE de Los Alamos (80 μA de p sur W) de 10 pour la cible Trispal (40 mA de p de 600 MeV) et de 50 pour un réacteur rapide.

III - DEVELOPPEMENTS EN COURS ET PERSPECTIVES

Le code HETC a été conçu il y a plus de trente ans, à une époque où les moyens de calcul étaient encore limités, notamment la mémoire disponible. Le formalisme mathématique a été simplifié, dans l'évaporation par exemple, pour éviter le calcul d'intégrales qui augmentait les temps de calcul. Il y a peu de tableaux explicites pour les données de base, celles-ci apparaissent le plus souvent dans des constantes numériques où elles ne sont plus explicites, ou sous la forme d'expressions analytiques paramétrisées.

Il est toujours difficile de reconnaître le formalisme physique à travers la programmation Fortran compacte, évidemment sans commentaires. Dès lors l'intervention directe, pour changer une donnée de base ou améliorer le formalisme, est délicate, surtout dans le module de cascade intranucléaire. Cela explique en grande partie l'évolution lente de ce code et les multiples versions existantes, résultant de petites modifications successives dans chaque laboratoire, dont il est difficile de faire la synthèse.

III.1 - Données de base

La spallation, puis l'évaporation et la fission, font apparaître un nombre important de nucléides intermédiaires, souvent loin de la vallée de stabilité. De bonnes tables de masses sont indispensables pour évaluer correctement les énergies de liaison. Nous avons adopté l'évaluation expérimentale de Audi[19] complétée par l'évaluation théorique de Duflo[20]. L'extrapolation semi-empirique d'origine a été abandonnée. D'autre part, la limite de stabilité (drip line) est prise en compte en interdisant toute émission de particule qui conduirait à la dépasser.

Dans la version d'origine, le bilan en énergie était déplorable, avec des écarts pouvant atteindre 20%. Une comptabilisation plus rigoureuse des bilans d'énergie à chaque étape, sans changer le formalisme des interactions, a permis de résoudre ce problème. L'énergie est maintenant conservée à 10^{-6} près.

III.2 - Cascade intranucléaire

Il a été décidé de ne pas intervenir sur la cascade de Bertini telle qu'elle existe actuellement, mais de la remplacer en bloc par des versions plus modernes que l'on pourra éventuellement faire évoluer par la suite :

- La cascade du code CEM 95[21,22] dont le formalisme est très proche de la cascade de Bertini.
- La cascade développée par J. Cugnon[23] décrite comme une succession de collisions binaires bien séparées dans l'espace et dans le temps. Les nucléons se déplacent dans un puits de potentiel sphérique et ont une certaine probabilité de transmission lorsqu'ils heurtent sa surface.

L'introduction d'un mécanisme intermédiaire de pré-équilibre entre la cascade et l'évaporation, pour traiter l'émission de nucléons par le noyau non complètement en équilibre thermique, a souvent été évoquée. En pratique, sa nécessité n'est pas prouvée, son introduction n'est pas toujours bénéfique quand on essaie de reproduire les spectres en énergie de neutrons émis par des cibles minces à différents angles par rapport à la particule incidente[24]. Le pré-équilibre est inclus dans le code CEM 95.

Les cascades de Bertini et de CEM 95 utilisent les sections efficaces nucléon - nucléon libres, tandis que la cascade de J. Cugnon utilise les sections efficaces nucléon - nucléon dans la matière, notablement inférieures aux précédentes en dessous de 400 MeV, et qui semblent plus justifiées. Ces dernières sections efficaces ont été introduites dans une version de HETC[25] et conduisent à des effets similaires à l'introduction du pré-équilibre sur la forme des spectres en énergie de neutrons. Il paraît donc logique de faire porter les efforts à court terme sur la cascade intranucléaire et sur l'évaporation et de ne revenir au pré-équilibre que dans une étape ultérieure si cela s'avère nécessaire.

III.3 - Les noyaux légers après la cascade :

Pour les noyaux légers, le modèle statistique de l'évaporation n'est pas du tout adapté. Le modèle plus réaliste du « Fermi break-up » a été introduit[26] pour les noyaux de masse $A \leq 21$. Si on considère une fragmentation du noyau initial énergétiquement possible en m corps de masse M_j et spin I_j, qui peuvent être éventuellement dans un état excité, le poids statistique de la voie est :

$$w_k = \frac{\left(\frac{V}{\hbar^3}\right)^{m-1}\left(\prod_{j=1}^{m} M_j\right)^{3/2}\prod_{j=1}^{m}(2I_j+1)}{(2\pi)^{\frac{3(m-1)}{2}}\left(\sum_{j=1}^{m} M_j\right)^{3/2}\prod_{s=1}^{g} m_s!\;\Gamma\left(\frac{3(m-1)}{2}\right)} . T^{\frac{3m-5}{2}}$$

où V est le volume nucléaire du noyau initial et T est l'énergie cinétique disponible.

Seules les fragmentations à 2 ou 3 corps ont un poids statistique important. Le choix de la voie est déterminé aléatoirement avec une probabilité proportionnelle à son poids.

A titre d'exemple, la table II montre l'amélioration obtenue pour la production d'isotopes de Be par l'oxygène irradié par des protons de 800 et 1200 MeV.

Isotope	E_p, MeV	σ_{evap}, mb	σ_{bu}, mb	σ_{exp}, mb	$\frac{\sigma_{evap}}{\sigma_{exp}}$	$\frac{\sigma_{bu}}{\sigma_{exp}}$
^{7}Be	800	1.27	7.64	11.64 ± 1.0	0.11	0.66
	1200	1.59	7.28	12.6 ± 1.0	0.13	0.58
^{10}Be	800	0.36	2.65	2.87 ± 0.27	0.12	0.92
	1200	0.45	2.22	3.64 ± 0.34	0.12	0.61

Table II - Production de ^{7}Be et ^{10}Be par l'oxygène irradié par des protons de 800 et 1200 MeV. Comparaison des résultats expérimentaux avec un calcul d'évaporation et un calcul de "Fermi break-up".

III.4 - Evaporation et fission

L'amélioration la plus immédiate a concerné le paramètre de la densité de niveaux qui était pris égal à A/8. A faible énergie d'excitation, on a adopté les paramètres a_b de Baba[27] qui prennent en compte les effets de couches. A plus haute énergie d'excitation, on a adopté le formalisme d'Ignatyuk[28] qui introduit la disparition progressive des effets de couches. La synthèse de cette approche donne :

$$a = (0.154\ A - 6.310^{-5}\ A^2)\ (1 - x) + a_b\ x \quad \text{avec} \quad x = \frac{1 - e^{-0.054E}}{0.054\ E},$$

où E est l'énergie d'excitation en MeV.

D'autre part, une étude est en cours, en préparation d'une thèse[29], pour déterminer la densité de niveaux des noyaux loin de la vallée de stabilité.

Au niveau de la fission, Atchinson avait éprouvé quelques difficultés pour les noyaux ayant $Z < 89$, ce qui l'avait conduit à introduire des remèdes peu justifiés. L'adoption des barrières de fission récemment évaluées dans cette région[30] nous a conduits à revenir sur les choix d'Atchinson :

- Adoption provisoire d'une valeur constante $a_f/a_n = 1.05$ pour le rapport des paramètres de densité de niveaux au point selle et dans le puits principal. Une étude plus approfondie est en cours.

- Rétablissement de la compétition évaporation de neutrons, évaporation de particules chargées et fission au même niveau.

- Suppression de la réduction de la barrière coulombienne pour les noyaux excités.

Comme nous le verrons par la suite, cela permet d'obtenir un bien meilleur accord avec nos récents résultats expérimentaux sur les distributions en masse des noyaux résiduels de spallation. Par contre l'incidence est totalement négligeable en ce qui concerne le nombre et la distribution en énergie des neutrons émis.

III.5 - Sections efficaces de réaction inverse

Les sections efficaces de réaction inverse de la version d'origine pour l'évaporation et la fission ont été simplifiées à l'extrême de façon à pouvoir résoudre analytiquement les intégrales. Un ensemble de sections efficaces plus réalistes est en cours de mise au point, mais cela nécessite un remaniement en profondeur de la programmation.

Le formalisme repose sur le modèle microscopique de Glauber, développé par Devries et al[31] pour être étendu à basse énergie. L'interaction projectile - noyau est considérée comme une somme d'interactions nucléon - nucléon à l'intérieur du volume de recouvrement. Les potentiels nucléaires et coulombiens sont pris en compte, ainsi que le mouvement de Fermi des nucléons et le principe d'exclusion de Pauli. Les distributions de densité de matière nucléaire ont été calculées pour 400 noyaux pair - pair, allant de ^{4}He à ^{240}Pu, à l'aide du code Hartree-Fock-Bogolyubov avec contraintes de M. Girod et J.F.Berger.

Pour les autres noyaux, la distribution de densité est obtenue par interpolation entre les noyaux pair -pair voisins. Au-dessous de 10 MeV, le formalisme de Glauber n'est plus applicable. Il est remplacé par un modèle géométrique de pénétration coulombienne pour les particules chargées, et par le formalisme du modèle optique pour les neutrons.

Les sections efficaces de réaction inverse peuvent être obtenues pour les projectiles p, n, d, t,^{3}He,^{4}He dans une gamme d'énergie de 0 à 2 GeV/A. La figure 5 montre le bon accord que l'on obtient avec l'expérience pour ^{208}Pb, par comparaison avec la section efficace d'origine.

III.6 - Cascade internucléaire et transport

Lorsque l'énergie du projectile diminue, le modèle de cascade intranucléaire se justifie de moins en moins. Il n'y a pas de limite nette, mais on peut qualitativement la fixer vers 150 MeV. Une grande partie des nucléons émis au cours de la cascade intranucléaire et la quasi totalité des nucléons évaporés se situent précisément en dessous de cette limite de 150 MeV.

Dans la version actuelle de HETC, ils sont cependant transportés et induisent dans les cibles épaisses des cascades intranucléaires tant que leur énergie est supérieure à 20 MeV. Dans ce domaine d'énergie, le modèle de pré-équilibre est beaucoup mieux adapté. Plusieurs codes sont disponibles, mais leur mise en oeuvre est trop lourde pour qu'on puisse raisonnablement envisager de les utiliser comme modules de calcul au sein de HETC. Une solution plus réaliste est d'utiliser ces codes pour étendre la base de données actuelle entre 20 MeV et 200 MeV. On pourrait alors utiliser le code MCNP pour effectuer le transport en dessous de 200 MeV. Pour les neutrons, c'est une simple extension des possibilités actuelles de MCNP qui ne demande que quelques aménagements techniques.

Par contre, le transport des particules chargées n'existe pas dans MCNP, il faut l'inclure et traiter en particulier le ralentissement par interaction avec les électrons du milieu.

Pour l'émission de neutrons, par exemple, on peut donner les sections efficaces doublement différentielles en angle et en énergie, ainsi que la distribution de multiplité des neutrons (probabilité d'émission de i neutrons, $1 \leq i \leq i_{max}$). Ces données, utilisées dans un code Monte-Carlo comme MCNP, permettront de conserver l'énergie en moyenne, et non plus pour chaque interaction. C'est déjà le cas d'ailleurs pour les réactions (n, xn) en dessous de 20 MeV dans ce code.

IV - VALIDATION DES CODES

IV.1 - Introduction

Le code MCNP, développé pour les réacteurs et largement utilisé, peut être considéré comme bien validé. Il fait appel à des sections efficaces microscopiques qui sont issues d'évaluations internationales et sont disponibles en dessous de 20 MeV pour un grand nombre d'isotopes.

Pour HETC par contre, les sections efficaces nécessaires sont calculées en interne. Le renouveau d'intérêt pour ce code est récent et lié aux perspectives de sources intenses de neutrons par spallation basées sur des accélérateurs à fort courant. La crédibilité des simulations numériques repose avant tout sur la fiabilité du code HETC, compte tenu des améliorations qui lui sont apportées. Cette fiabilité peut être démontrée par des validations sur des résultats expérimentaux incontestables et suffisamment diversifiés pour pouvoir tester sans ambiguïté les différentes possibilités du code.

Des mesures de sections efficaces doublement différentielles, en angle et en énergie, pour la production de neutrons et de particules chargées de spallation sont un bon moyen de tester la cascade intranucléaire. Des résultats similaires en neutrons pour des cibles épaisses (capables d'arrêter le faisceau incident) de différents diamètres permettent ensuite de tester le transport dans la cible. Des informations complémentaires sur le transport peuvent être obtenues en mesurant la distribution spatiale de l'énergie déposée dans des cibles épaisses .

Des mesures globales du nombre de neutrons par proton sortant de cibles épaisses permettent de contrôler le bilan en énergie, tout en étant sensibles au transport également. Des mesures de noyaux résiduels sur cibles minces permettent de s'assurer que l'on maîtrise bien la désexcitation des noyaux, après la cascade intranucléaire, par évaporation de neutrons et de particules chargées, en compétition avec la fission. Des distributions de résiduels dans des cibles épaisses sont une autre façon d'aborder le transport, tout en fournissant des données utiles pour évaluer l'activation des cibles.

Après avoir fait le point des données actuelles qui nous paraissent suffisamment fiables, nous présenterons le programme de mesures mis en place au Laboratoire National Saturne.

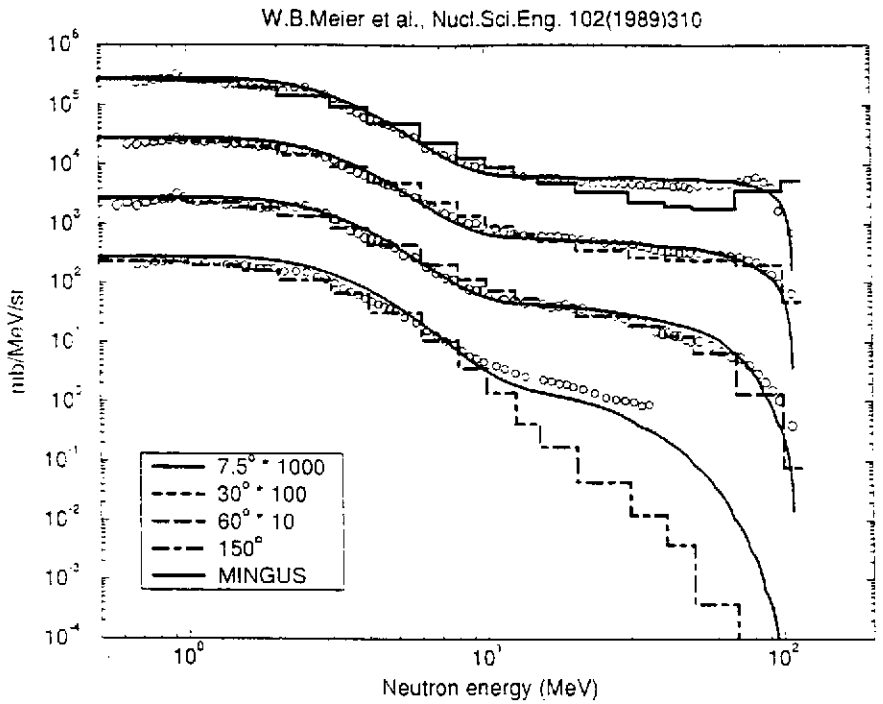


Figure 6 - Section efficace différentielle pour la production de neutrons pour une cible mince de Pb bombardée par des protons de 113 MeV. Comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul standard de HETC (histogramme) et avec le calcul du code MINGUS (courbe continue).

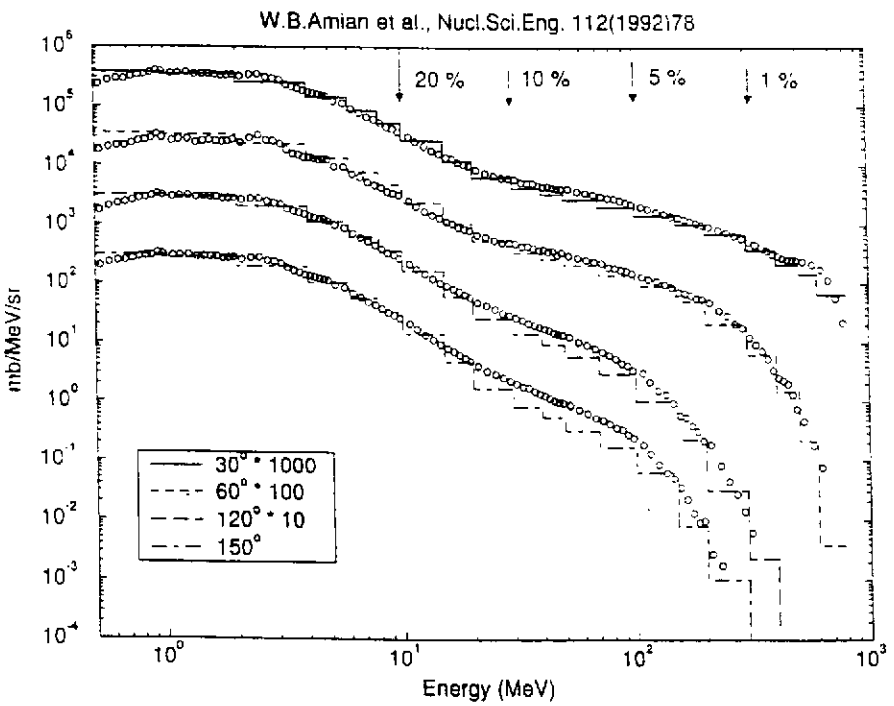


Figure 7 - Section efficace différentielle pour la production de neutrons pour une cible mince de Pb bombardée par des protons de 800 MeV - Comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul de HETC.

IV.2 - Base de données expérimentales

IV.2.1 - Neutrons de spallation sur cibles minces

L'ensemble le plus cohérent de données pour les mesures différentielles en angle et en énergie a été obtenu en protons incidents au LAMPF et est détaillé dans la table III.

E_p, MeV	Angles	Cibles	Référence
113	7.5°, 30°, 60°, 150°	Be, C, O, Al, Fe, W, Pb, U	NSE102 (1989) 310
256	7.5°, 30°, 60°, 150°,	Be, C, O, Al, Fe, U	NSE 110 (1992) 289
597	30°, 60°, 120°, 150°	Be, B, C, N,, O, Al, Fe, Pb, U	NSE 115 (1993) 1
800	30° 60°, 120°, 150°	Be, B, C, N, O, Al, Fe, Cd, W, Pb, U	NSE 112 (1992) 78

Table III - Mesures de sections efficaces différentielles de production de neutrons de spallation à Los Alamos.

C'est l'oeuvre d'une seule équipe, qui a utilisé la méthode du temps de vol. La base de vol est importante (quelques dizaines de mètres), ce qui garantit une bonne résolution en énergie, contrairement à d'autres mesures que nous avons écartées.

Des mesures de la partie haute énergie du spectre de neutrons émis à 0° pour différentes cibles, basées sur l'analyse par spectrométrie magnétique des protons de recul après diffusion quasi élastique des neutrons sur l'hydrogène[35] ont servi entre autres de référence pour déterminer l'efficacité de détection des neutrons.

Cette efficacité peut poser problème à haute énergie : des résultats récents obtenus par une autre équipe[34] utilisant la même technique , mais des détecteurs différents avec des bases de vol identiques, également au LAMPF, présentent à haute énergie des écarts d'un facteur 2 pour une cible de plomb. Il n'y a pas de mesures pour des protons incidents d'énergie supérieure à 800 MeV.

Les figures 6 et 7 présentent des résultats typiques. Aux angles arrière, les simulations sous-estiment systématiquement l'expérience pour la partie haute énergie du spectre.

IV.2.2 - Protons de spallation

Le spectre en énergie des protons a été mesuré[36] au-dessus de 120 MeV à plusieurs angles (20°, 30°, 45°, 60°) dans l'interaction de protons incidents de 450 MeV avec des cibles minces et épaisses de Be, C, Al, Cu, Co, Pb et Bi.

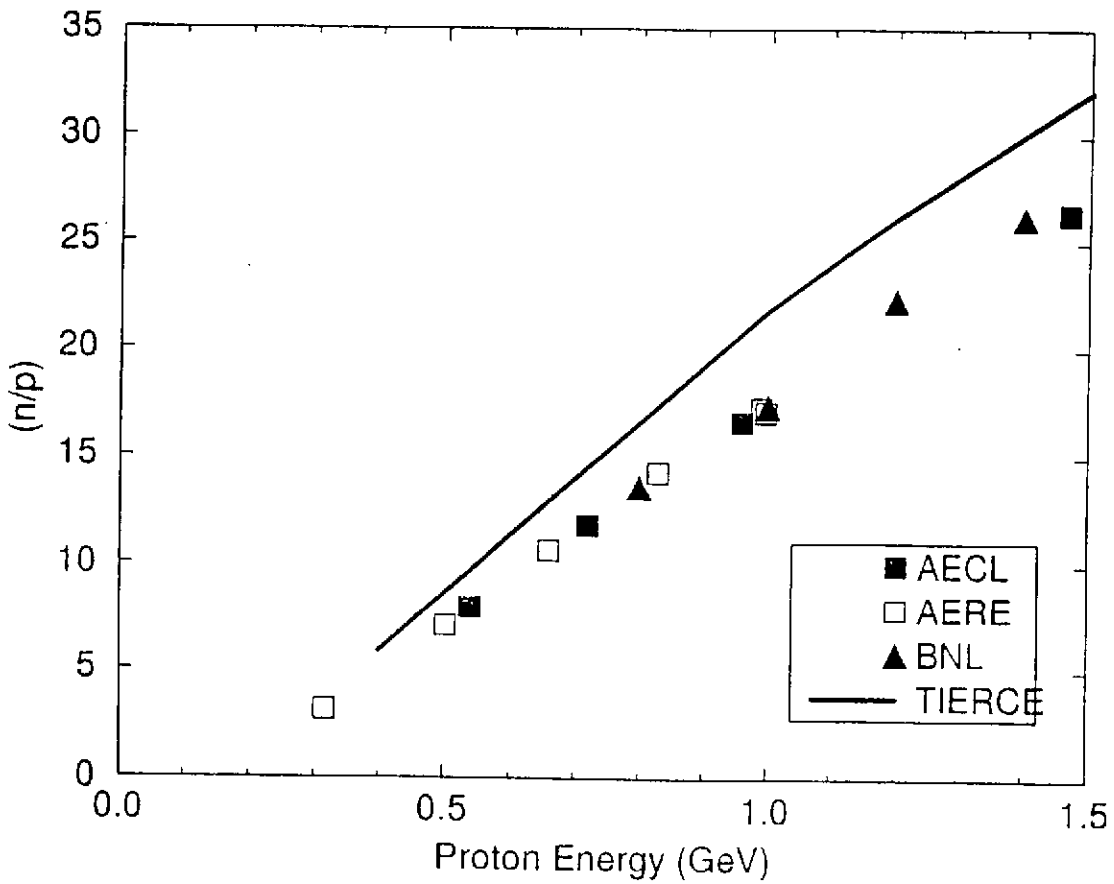


Figure 8 - Nombre de neutrons par proton en fonction de l'énergie des protons incidents pour une cible de plomb de 10 cm de diamètre et 61 cm de longueur - Comparaison du calcul TIERCE avec les résultats expérimentaux.

IV.2.3. - Neutrons de spallation sur cibles épaisses

Des mesures différentielles en angle et en énergie ont été réalisées à 113 et 256 MeV en même temps que les mesures sur cibles minces déjà présentées.

Des mesures intégrales du nombre de neutrons émis par proton ont été réalisées pour une cible de plomb de 10 cm de diamètre et 60 cm de longueur [37, 38, 39].

La figure 8 montre que les calculs surestiment de 15% ces mesures. Par contre, pour une cible de 20 cm de diamètre l'accord est bon[40] mais les calculs sous-estiment la partie haute énergie du spectre[41].

IV.2.4 - Données intégrales

- Expérience FERFICON, mesure de la distribution axiale dans des cibles épaisses de Th et U de la fission et de la conversion pour des protons incidents de 800 MeV[42].

- Mesure de la distribution du dépôt d'énergie pour des protons de 0.8 à 1.2 GeV sur différentes cibles épaisses[43]. L'interprétation de ces réusltats montre un problème sur le pourvoir d'arrêt des protons dans Fe, Cu et U[44].

IV.2.5 - Noyaux résiduels de spallation

Un programme important de mesures de noyaux résiduels de spallation sur une trentaine de cibles minces pour des protons incidents d'énergie comprise entre 150 MeV et 2,6 GeV est en cours sous l'impulsion de Pr. R. Michel. La technique de l'activation limite la mesure aux seuls noyaux radioactifs de période supérieure à quelques heures. Les mesures sur cibles légères sont publiées[45], des mesures plus récentes sur cibles lourdes sont en cours de dépouillement.

Des mesures en cinématique inverse sur des cibles d'H, He et C bombardées par une série d'ions de masse inférieure à 58 et d'énergie comprise entre 300 et 1700 MeV/A ont été réalisées par Weber et al[46] et permettent d'identifier une plus grande variété de noyaux résiduels. Des mesures de la distribution spatiale des résiduels par activation ont été réalisées sur des cibles épaisses de plomb et de tungstène, à 800 Mev à Los Alamos, à 0.84, 1.00 et 1.42 GeV à Brookhaven. Les résultats préliminaires sont disponibles sous forme de rapports techniques[47,48].

V - PROGRAMME EXPERIMENTAL

Les intercomparaisons des codes de calculs en cibles minces et épaisses[49, 50] réalisées par OCDE/AEN, conduisent à des résultats peu concordants. Cette situation est due en grande partie à un manque de données expérimentales, surtout au-dessus de 800 MeV, sur lesquelles pourraient être validés les modèles physiques entrant dans ces codes.

C'est pourquoi un important programme expérimental a été mis en place au Laboratoire National Saturne pour améliorer la base de données et l'étendre au-delà de 800 MeV aussi bien sur cibles minces que sur cibles épaisses.

V.1 - Mesures différentielles en angle et en énergie de production de neutrons

Cette expérience est le fruit d'une collaboration entre LNS, DPTA/PN Bruyères-le-Châtel, DPNIA/SPhN, et Université d'Uppsala pour les mesures sur cibles minces à 0°, à laquelle se sont associés la collaboration DEMON et l'IPN Orsay pour les distributions angulaires sur cibles minces et épaisses.

SATURNE n'est pas une machine pulsée, la méthode classique du temps de vol n'est pas utilisable pour mesurer l'énergie des neutrons. Deux méthodes différentes ont été mises en place : temps de vol avec protons incidents étiquetés pour la partie basse énergie du spectre (2 - 400 MeV), spectrométrie magnétique des protons de recul après diffusion (n, p) sur une cible d'hydrogène liquide pour la partie haute énergie du spectre (200 MeV à l'énergie faisceau). La possibilité d'accélérer des deutérons et des ions ^{3}He permet d'obtenir des neutrons quasi

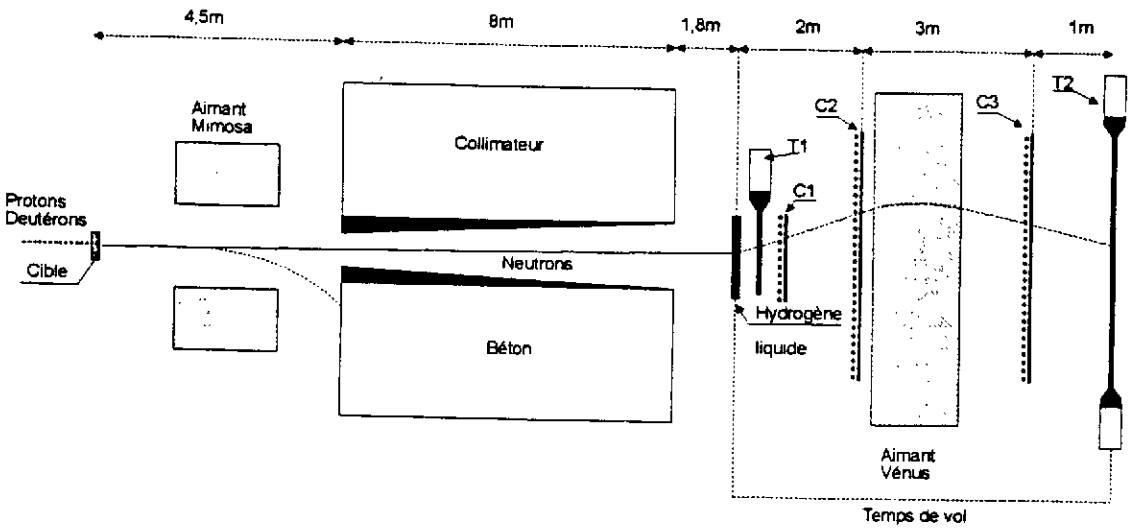


FIGURE 9 : Dispositif expérimental pour la mesure du spectre en énergie des neutrons de spallation d'énergie supérieure à 200 MEV.

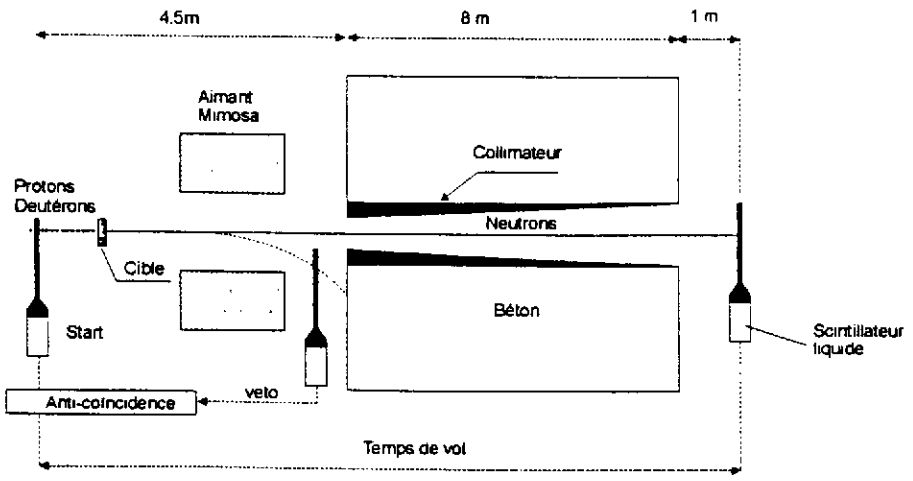


FIGURE 10 - Dispositif expérimental pour la mesure de spectre en énergie des neutrons de spallation d'énergie inférieure à 400 MeV.

monoénergétiques par cassure dans une cible de Be. Les sections efficaces de production de neutrons étant bien connues, cela permet de mesurer la fonction de réponse et l'efficacité des systèmes de détection in situ. C'est un avantage essentiel par rapport aux autres mesures.

V.1.1 - Détection haute énergie[51)]

Le principe de la mesure à haute énergie est schématisé sur la figure 9. Après interaction dans la cible, le faisceau incident (pour les mesures à 0°) et les particules chargées de spallation sont éliminés par la déviation du dipôle MIMOSA. Après collimation, les neutrons diffusent sur une cible d'hydrogène liquide. La trajectoire et l'impulsion du proton diffusé sont obtenues à l'aide de 3 compteurs à fils proportionnels C_1 , C_2 , C_3 et d'une déflexion magnétique dans le dipôle VENUS, ce qui permet de remonter à l'énergie du neutron. Un temps de vol entre les scintillateurs S_1 et S_2 permet une discrimination entre les protons et les autres particules chargées de même impulsion, essentiellement des deutérons et des pions.

Les fonctions de réponse mesurées à l'aide de neutrons monocinétiques permettent de tenir compte de la composante de protons de diffusion inélastique pour la déconvolution des spectres expérimentaux. Les pertes d'énergie des protons dans l'air et les détecteurs limitent cette technique aux énergies supérieures à 200 MeV.

V.1.2 - Détection à basse énergie[52)]

Le dispositif utilisé est schématisé sur la figure 10. Un scintillateur plastique mince placé devant la cible permet d'étiqueter les protons du faisceau incident, les neutrons sont détectés à l'aide d'un scintillateur liquide après collimation. Le temps de vol entre les deux détecteurs permet d'obtenir l'énergie des neutrons. Cette technique impose de limiter l'intensité du faisceau incident à environ 10^6 protons/seconde. Le faisceau incident est dévié par le dipôle MIMOSA après interaction avec la cible.

V.1.3 - Mesures à 0°

Les mesures à 0° ont été réalisées pour des protons de 800 MeV sur une cible de Pb, de 1600 MeV sur des cibles de Pb et Fe, et de 1200 MeV sur des cibles de Al, Fe, Zr, W, Pb et Th. Les résultats préliminaires à 1200 MeV sont présentés sur la figure 11. On constate un excellent recoupement entre 200 et 400 MeV entre deux techniques utilisées, qui sont complètement indépendantes. A haute énergie, l'ensemble des résultats est en assez bon accord avec le code de cascade intranucléaire de J. Cugnon[23)]. L'évaporation n'étant pas traitée dans ce code, la comparaison en dessous de $\approx$ 30 MeV est sans objet.

V.1.4 - Distribution angulaire

La figure 12 présente le nouveau dispositif expérimental mis en place pour la mesure de la distribution angulaire. La partie haute énergie du spectre peut être obtenue entre 0 et 85° par rotation du dispositif de spectrométrie. La partie basse énergie peut être mesurée simultanément à 6 angles grâce aux détecteurs de la collaboration DEMON (LPC Caen, CRN Strasbourg, Universités de Louvain et de Bruxelles). La cible est entourée d'un mur de béton semi cylindrique percé de collimateurs permettant des mesures tous les 15° à partir de 10°. Les premières prises de données auront lieu en Octobre 1996. Elles sont prévues sur les mêmes cibles et aux mêmes énergies qu'à 0°.

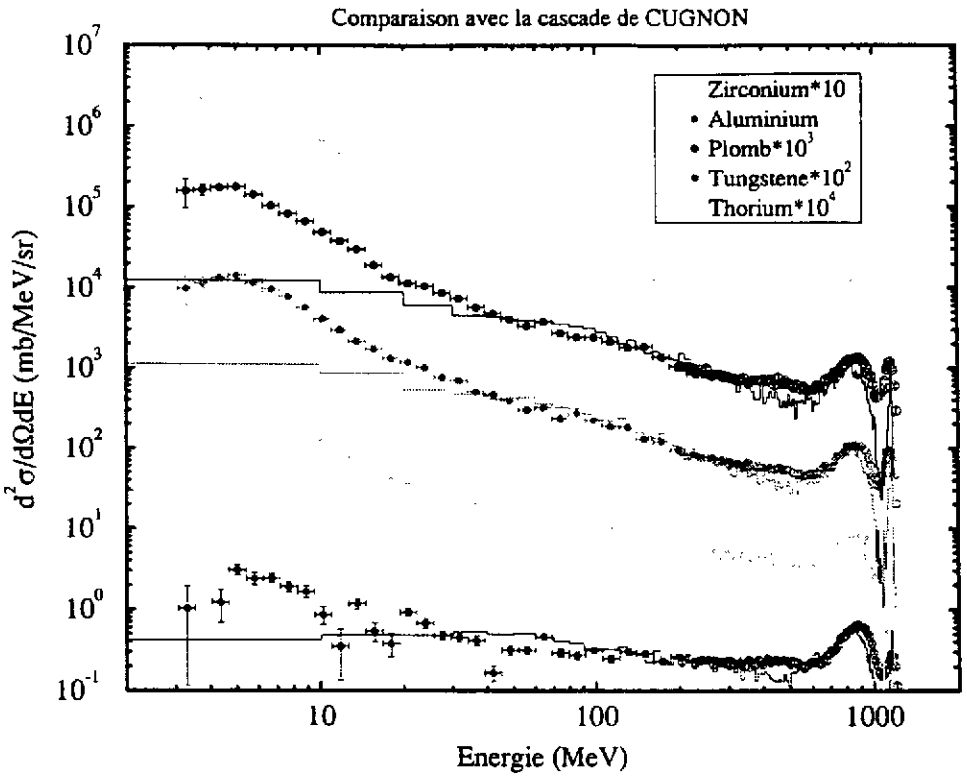


Figure 11 - Spectre en énergie des neutrons de spallation mesuré à 0° sur différentes cibles minces pour des protons incidents de 1.2 GeV - Comparaison avec la cascade de Cugnon[23].

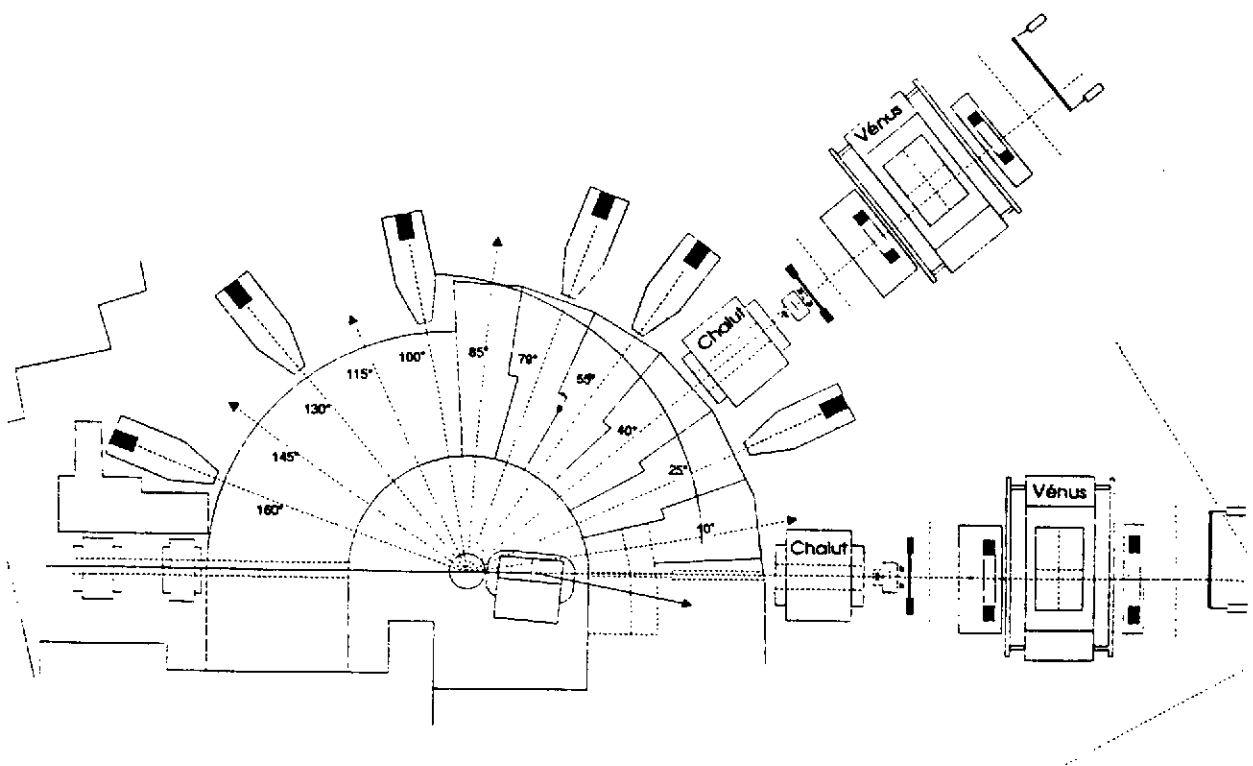


Figure 12 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution angulaire des neutrons de spallation. Le dipôle CHALUT permet d'éliminer les particules chargées de haute énergie.

V.1.5 - Mesures sur cibles épaisses

Le dispositif précédent peut aussi être utilisé pour des mesures sur cibles épaisses de différents diamètres. Des cibles de Pb et Fe de 10 et 20 cm de diamètre et une cible de W de 15 cm de diamètre sont prévues. En déplaçant les cibles longitudinalement, on pourra mesurer les neutrons émis par différentes parties des cibles, qui seront suffisamment épaisses pour arrêter le faisceau incident. Pour limiter l'activation des cibles, et compte tenu du ralentissement des neutrons dans celles-ci, on n'utilisera que la méthode du temps de vol avec protons étiquetés. Les mesures débuteront en Novembre 1996 et sont prévues pour des protons incidents de 800, 1200 et 1600 MeV.

V.2 - Mesures du nombre de neutrons par proton

Bien qu'effectuées dans un autre cadre, il faut mentionner les mesures de multiplicités de neutrons réalisées à Saturne à l'aide du détecteur 4π de grande efficacité ORION[53].

Ces multiplicités, obtenues pour des cibles minces de Ag, Au, Bi et U bombardées par des protons de 475 MeV et 2 GeV et par des ^{3}He de 2 GeV, donnent la distribution de l'énergie d'excitation des noyaux après la cascade intranucléaire.

La mesure "Sunnyside" du nombre de neutrons par proton, réalisée en 1993 à 800 MeV sur des cibles épaisses de Pb, W et Li à Los Alamos[40], a été transportée auprès de Saturne pour élargir la plage de mesure aux énergies de protons comprises entre 400 MeV et 2 GeV. Le détecteur est schématisé sur la figure 13.

La cible de plomb de 20 cm de diamètre et 120 cm de longueur est entourée d'un manchon de plomb de 60 cm de diamètre et 200 cm de longueur. L'ensemble est placé dans un réservoir cylindrique de ϕ 250 x 300 cm rempli d'une solution d'eau à 1% en poids de sulfate de manganèse.

Les neutrons émis dans la cible et multipliés dans le manchon sont thermalisés dans l'eau, une fraction est capturée par $^{55}M_n$. Le suivi, après une irradiation d'environ 10^{14} protons, de l'évolution temporelle de l'activité gamma du $^{56}M_n$ (période 2,6 heures) d'un échantillon de solution permet de remonter à la fluence de neutrons capturés. La fluence de protons étant mesurée par ailleurs par activation de l'aluminium (formation de ^{24}Na), on détermine de cette façon le nombre de captures dans le $^{55}M_n$ par proton, ce qui permet de remonter au nombre de neutrons par proton en utilisant le résultat des simulations.

Une cible de W de 80 cm de longueur, complétée par un culot de Pb de 40 cm de longueur a aussi été étudiée. Les mesures ont été réalisées en Juin 1996 pour des protons incidents de 400, 800, 1600 et 2000 MeV.
Les résultats préliminaires indiquent un accord satisfaisant entre calcul et expérience (nombre de captures par proton) pour la cible de plomb, tandis que les calculs surestiment l'expérience de 10 à 15% pour le tungstène. Contrairement au Pb, le W a une section efficace de capture importante pour les neutrons thermiques.

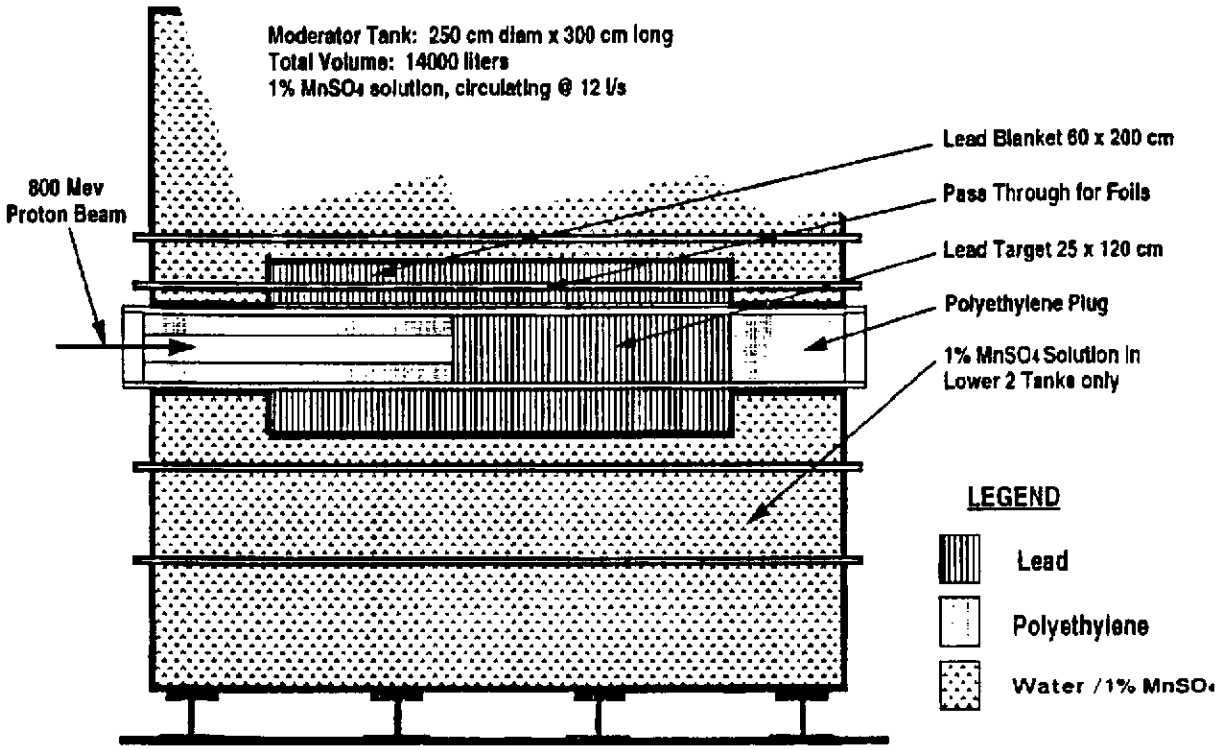


Figure 13 - Dispositif expérimental pour la mesure du nombre de neutrons par proton par la technique du bain de sulfate de manganèse.

V.3 - Résiduels de spallation

Le programme déjà en cours à Saturne[45] a été étendu aux cibles de spallation potentielles et aux matériaux de structure. Une vingtaine de cibles minces, montées sur un support léger en aluminium et séparées de 20 cm pour limiter les interactions, sont irradiées en même temps. Chaque cible est accompagnée d'échantillons d'Al pour déterminer la fluence de protons incidents par l'intermédiaire de la production de ^{22}Na. Les éléments C, N, O, Na, Cr, Zn, Cu, Y, Zr, Nb, Rh, Ba, Ta, W, Re, Os, Ir, Au, Pb, Bi, Th, U ont été étudiés pour des protons incidents d'énergie comprise entre 150 MeV et 2,6 GeV. La section efficace de production de noyaux radioactifs est obtenue par spectrométrie gamma quantitative.

Typiquement, une irradiation dure une dizaine d'heures et la décroissance radioactive des cibles est suivie pendant plusieurs mois. Les mesures ne concernent donc que les noyaux radioactifs de période supérieure à quelques heures, directement produits par spallation ou descendant de résiduels de période plus courte. Les sections efficaces données correspondent à la production cumulée des isotopes considérés à la fin de l'irradiation. Les simulations doivent donc tenir compte de la durée d'irradiation et traiter la décroissance de tous les nucléides à courte période pour déterminer la population en fin d'irradiation.

La plupart des dépouillements sont effectués en Allemagne. Les cibles de W, Pb, Th et U sont mesurées à Bruyères-le-Châtel[54]. Quelques mesures de résiduels à vie courte sur Pb et W ont été réalisées pour des

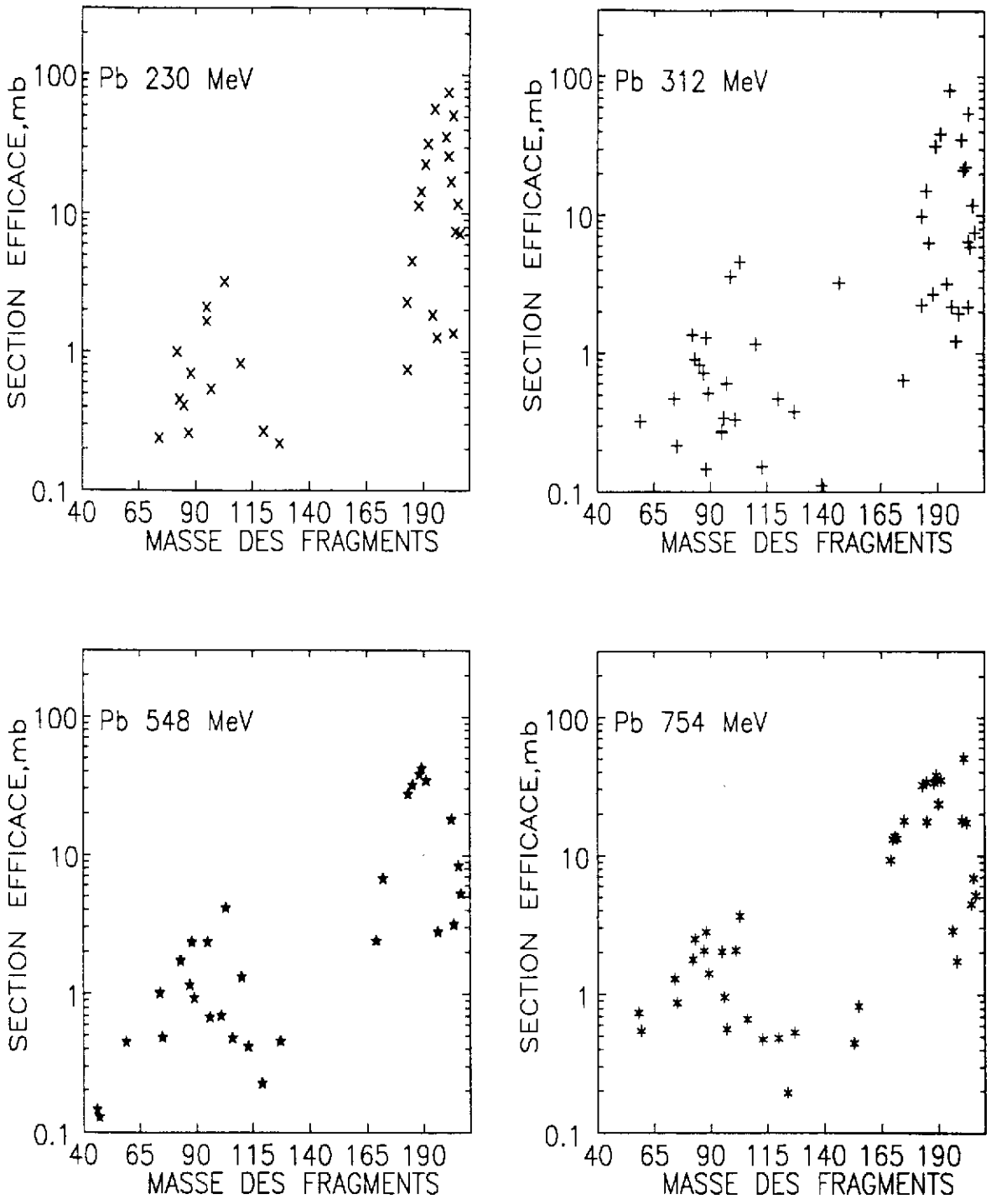


Figure 14 - Section efficace en fonction du nombre de masse pour la production de noyaux résiduels radioactifs pour la spallation induite dans une cible de plomb par des protons de 230, 312, 548 et 754 MeV.

protons de 1,2 GeV dans une expérience séparée. L'irradiation durait typiquement 1 mn, les comptages commençaient 2 mn après l'irradiation, et les cibles ont été suivies pendant plusieurs jours.

La figure 14 montre la distribution en masse de la production de résiduels pour une cible de Pb irradiée par des protons de 230, 312, 512 et 754 MeV. On observe un pic de spallation pour des masses proches de la cible, qui s'élargit quand l'énergie des protons augmente. Quelques noyaux protégés (non alimentés par la décroissance de résiduels à vie courte) apparaissent avec une section efficace faible dans ce pic. Un pic de fission symétrique apparaît, son intensité croît avec l'énergie des protons incidents.

La figure 15 compare calcul et expérience pour des protons de 754 MeV sur des cibles de W et Pb, et des protons de 548 MeV sur une cible d'uranium naturel.

Les modifications apportées dans le traitement de la fission ont des effets importants. Le nouveau jeu de barrières de fission améliore en moyenne les sections efficaces de fission, mais les résultats sont plus dispersés. Une analyse détaillée montre que cette dispersion résulte d'une sous-estimation de la production de fragments de fission riches en neutron, déjà présente auparavant mais accentuée maintenant pour W et Pb.

Le rétablissement de la compétition de l'évaporation de particules chargées avec la fission et l'évaporation de neutrons, ainsi que le rétablissement de la barrière coulombienne à haute énergie d'excitation, permettent de mieux reproduire le pic de spallation pour Pb et U. Celui-ci reste encore trop large pour W.

Une mesure de la distribution radiale et axiale des résiduels de spallation dans une cible de plomb de 20 cm de diamètre et de 80 cm de longueur à également été réalisée pour des protons incidents de 800 MeV. La cible est composée de tronçons de 15 cm d'épaisseur entre lesquels on a intercalé des cibles minces de Pb sur lesquelles sont effectués les comptages. Le dépouillement est en cours.

Enfin une mesure de résiduels de spallation par cinématique inverse est prévue à GSI, en bombardant une cible d'hydrogène liquide par des ions Pb ou ^{238}U d'énergie 1 GeV/A (collaboration GSI, CEA/DAPNIA, CENBG). La détection en ligne de tous les résiduels, qui sont émis dans un petit cône (effet relativiste), devrait fournir des données directement comparables aux calculs.

VI - CONCLUSION

La modélisation de la spallation dans le code HETC d'origine, quoique simplifiée, permet néanmoins de comprendre les processus physiques mis en jeu et leur imbrication. Il n'y a pas de contradictions flagrantes entre les calculs et les résultats expérimentaux, même si localement l'accord n'est que qualitatif. Dans ce sens, le code remplit parfaitement son rôle d'aide aux études de physique.

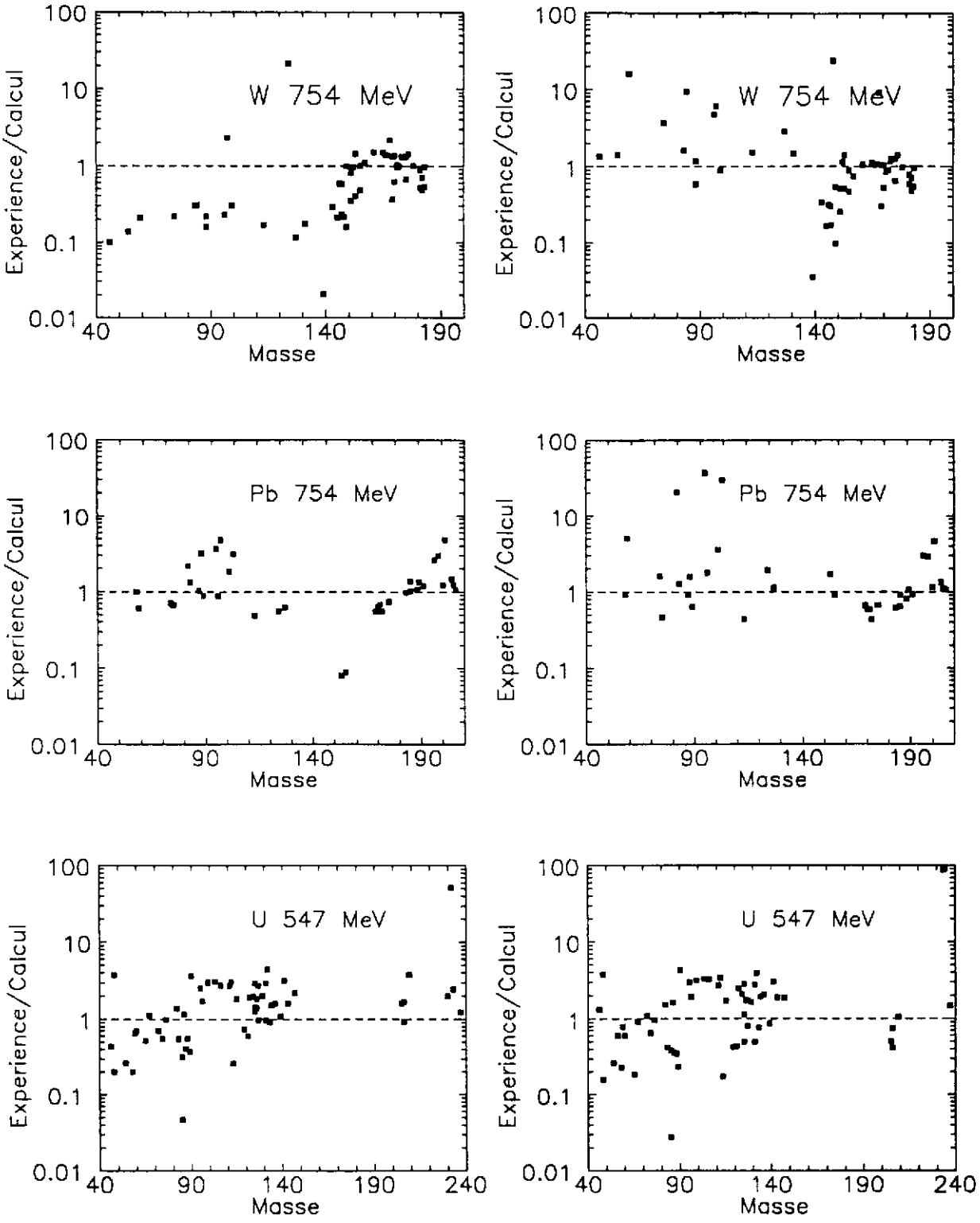


Figure 15 - Rapport expérience / calcul pour la production de résiduels de spallation sur des cibles de W et Pb irradiées par des protons de 754 MeV et une cible de U irradiée par des protons de 547 MeV. A gauche, version initiale de HETC, à droite version modifiée.

L'étape actuelle est tout autre. Elle vise à poursuivre l'amélioration des codes de façon à ce qu'ils fournissent des données quantitatives suffisamment fiables pour qu'ils deviennent prédictifs et puissent être utilisés avec confiance pour la mise au point de cibles complexes.

Deux axes d'études sont en cours. D'abord, l'extension, la modernisation et un affinement des modèles de base. Ensuite, la limitation de HETC au domaine d'énergie supérieur à 150 MeV pour lequel il est bien adapté, et l'extension du transport à l'aide de codes classiques, tels MCNP ou TRIPOLI, de leur limite actuelle de 20 MeV jusqu'à 150 MeV. Cela implique l'extension des bibliothèques de données dans cette gamme d'énergie : des codes performants, comportant une description fine de la physique concernée sont disponibles.

En parallèle, il faut disposer d'une base de données expérimentales fiable et variée pour valider ces améliorations et développements. Un programme expérimental important est en cours auprès de l'accélérateur SATURNE. Il comprend des mesures différentielles en angle et en énergie des neutrons émis par différentes cibles minces et épaisses, des mesures de résiduels de spallation, des mesures intégrales de neutrons sur cibles épaisses. Il couvre le domaine utile d'énergie pour la spallation, de 400 MeV à 2 GeV, essentiellement pour des protons incidents, et complète la base déjà existante mais surtout limitée aux énergies inférieures à 800 MeV. Les données concernant les particules chargées émises restent cependant fragmentaires, et pour l'instant aucun programme expérimental n'est prévu.

L'effort actuel, qui a déjà conduit à des améliorations importantes, devrait déboucher sur la démonstration graduelle de la prédictibilité du code au cours des prochaines années.

REFERENCES

1) R. Serber, Phys. Rev. **72** (1947) 1114.
2) M.L. Golderberger, Phys. Rev. **74** (1948) 1269.
3) N. Metroprolis et al., Phys. Rev. **110**, (1958) 185 ; **110** (1958) 204.
4) - H.W. Bertini, Rapport ORNL - **3383**
   Monte Carlo Calculations on Nuclear Cascades (1963).
5) H.W. Bertini, Phys. Rev. **188** (1969) 1711.
6) T.W. Armstrong, K.C. Chandler, Nucl. Sci. Eng. **49** (1972) 110.
7) O. Bersillon et al., Contribution to 2nd International Conference on Accelerator - Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Suède (1996).
8) J.F. Briesmeister Ed, LANL manual LA-**7396- M** (1986).
9) G. Bernardini, E. Booth, S. Lindenbaum, Phys.Rev. **80** (1950) 905.
10) V. Weisskopf, Phys. Rev. **52** (1937) 295.
11) L. Dresner, ORNL - TM - **196** (1961).
12) I. Dostrovsky et al., Phys. Rev.**111** (1958) 1659 ; Phys. Rev. **116** (1959) 683 ; Phys. Rev. **118** (1960) 781.

13) F. Atchinson, OCDE Specialist's Meeting, Issy-les-Moulineaux, 30 May - 15 June (1994), et Jul - Conf - 34 (1980) 17.
14) R. Vandenbosch, J.R. Huizenga, Nuclear fission, Academic Press (1973).
15) R. Vandenbosch, J.R. Huizzenga,Proc. Int.conf. Peaceful Uses At. Energy, **Vol 15** (1958) 284.
16) L.G. Moretto, S.G. Thompson, J. Routti, R.C. Gatti, Phys. Lett **36**, (1972) 471.
17) G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, A.H. Wapstra, Nucl. Inst. Meth. **A 369** (1996) 511.
18) J.F. Ziegler, J.P. Bersack, V. Littmark, "The stopping and Range of Ions in Solids", Pergamon Press, New-York (1985).
19) G. Audi, A.H. Wapstra, Nucl. Phys. **A 565** (1993) 1 - 389.
20) J. Dufflo, Nucl. Phys. **A 576** (1996) 29.
21) S.G. Mashik, K.K. Gudima, V.D. Toneev, Nucl. Phys. **A 401** (1983) 329.
22) S.G. Mashnik, Nucl. Phys. **A 568** (1994) 703.
23) J. Cugnon, Nucl. Phys. **A 462** (1987) 751.
24) R.E. Prael, rapport **LA-UR-89-3347** (1989).
25) E. Suetomi, N. Nishida, M. Kadotani, Phys. Lett. **B 333** (1994) 22.
26) J.V. Lepore, R.N. Stuart, Phys. Rev. **94** (1954) 1724.
27) H. Baba, Nucl. Phys. **A 159** (1970) 625.
28) A.V. Ignatyuk, G.N. Smirenkin, A.S. Tishin, Sov. J. Nucl. Phys. **21** (1975) 255.
29) S. Hilaire. communication privée (1995).
30) W.D. Myers, W.J.Swiatecky, Nucl. Phys. **A 601** (1996) 141.
31) R.M. Devries, J.C. Peng, Phys. Rev **C22** (1980) 1055.
32) J. Raynal, Applied nuclear theory and nuclear model calculations for nuclear technology applications, Trieste, 15 Fev - 19 Mars (1988), 506.
33) A.J. Koning et al., Proc. NEA Specialist Meeting on Intermediate Energy Nuclear Data, 30 mai - 1er Juin, Issy-les-Moulineaux, p. 87.
34) S. Stamer et al., Phys. Rev. **C 47** (1993) 1647.
35) B.E. Bonner et al., Phys. Rev. **C 18** (1978) 1418.
36) J.W. Watcher, W.A. Gibson, W.R. Burrus, Phys. Rev. **C6** (1972).1496.
37) J.S. Fraser et al., Physics in Canada 21 (1965) 17.
38) D. West, E. Ward, Can. J. Phys **49** (1971) 2061.
39) M.S. Zucker et al., BNL communication privée, proposition d'expérience LNS 297 (1994).
40) G. Morgan et al., Proc.Conf. on Accelerator - Driven Transmutation Technologies and Apllications, Las-Vegas, AIP Conf. Proc. 346 (1994) 682.
41) R. Vassikov et al., ICANS-XI, KEK, Japon (1990).
42) J.S. Gilmore et al., Nucl. Sci. Eng.**99** (1988) 41.
43) V.I. Belyakov - Bodin et al., Nucl. Inst. Meth. **A 295** (1990) 140 ; Nucl. Inst. Meth. **A 314** (1992) 508.
44) C.A. Beard et al., Nucl. Sci. Eng. **119** (1995) 87.
45) R. Michel et al., Nucl. Inst. Meth. **B 103** (1995) 183.
46) W.R. Weber, J.C. Kish, D.A. Schrier, Phys. Rev.**C 41**, (1990) 520, 533, 547, 566.

47) JL. Ulmann, Rapport LA-UR-95-3327 (1995).

48) C.E. Laird, Final Technical Report, BNL contract 554387, communication privée (1994).

49) International Code Comparison for Intermediate Energy Nuclear Data, OECD/NEA (1994).

50) D. Filges et al., Report NSC/DOC (95)2, (1995).

51) E. Martinez et al., accepté pour publication dans Nucl. Inst. Meth. (1996).

52) F. Borne et al., accepté pour publication dans Nucl. Inst. Meth. (1996).

53) L. Penkowski et al., Phys. Lett. **B 336** (1994) 147.

54) Y. Blanchard et al., Contribution to 2nd International Conference on Accelerator - Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Suède (1996).