

UNIVERSITÉ BORDEAUX I

École doctorale

ASTROPHYSIQUE - PLASMAS - CORPUSCULAIRE

THÈSE DE DOCTORAT

présentée par

ADELINE BAIL

**MESURES DE RENDEMENTS
ISOBARIQUES
ET ISOTOPIQUES
DES PRODUITS DE FISSION LOURDS
SUR LE SPECTROMÈTRE DE MASSE
LOHENGRIN**

CEA Cadarache DEN/DER/SPRC/LEPh

MM.	G. BARREAU	Directeur de Thèse
	O. SÉROT	Directeur de Thèse
	R. BRISSOT	Rapporteur
	C. WAGEMANS	Rapporteur
	B. HAAS	Examineur-Membre invité
	U. KÖSTER	Examineur-Membre invité
	P. MORETTO	Examineur-Membre invité

Table des matières

Introduction	1
1 Motivations	3
1.1 Importance des mesures de rendements de fission	3
1.2 Les différentes bases de données	4
1.3 Le spectromètre Lohengrin et les mesures de rendements	7
2 La fission nucléaire, état de l’art	9
2.1 Rappel sur quelques termes de fission	9
2.2 Modèles de fission	10
2.2.1 Modèle de la goutte liquide	10
2.2.2 Modèle de Strutinsky	13
2.2.3 Modèle de Wilkins	14
2.2.4 Microscopique	16
2.2.4.1 “Finite range liquid-drop model”	16
2.2.4.2 Modèle de Bruyères-le-Châtel	17
2.2.5 Modèle de Brosa	19
2.2.6 Modèle de Wahl	21
2.3 Méthode de mesures de rendements	24
2.3.1 Mesures de radiochimie	24
2.3.2 Mesures par activation	24
2.3.3 Mesures par chambre à fission	25
2.3.4 Mesures par spectrométrie de masse	26
2.3.5 Mesures de fission induite par cinématique inverse	26
3 Dispositif expérimental	27
3.1 L’Institut Laue-Langevin	27
3.2 Les cibles	28
3.2.1 Introduction	28
3.2.2 Fabrication de cibles	29
3.2.2.1 La matière première	29
3.2.2.2 La méthode d’électrodéposition	30
3.2.2.3 La méthode de peinture	31
3.2.3 Caractéristiques des cibles utilisées pour les différentes expériences .	31
3.3 Le spectromètre de masse Lohengrin	32
3.3.1 Principe de séparation	33
3.3.2 Caractéristiques techniques	33
3.3.3 La fission nucléaire et le spectromètre Lohengrin	35
3.3.4 Les différents domaines de physique étudiés sur le Lohengrin	35
3.4 La mesure des rendements en masse	36
3.4.1 Chambre à ionisation	36

3.4.2	Electronique d'acquisition	40
3.5	La mesure des rendements isotopiques	40
3.5.1	Principe de la méthode	40
3.5.2	Chambre à vide	43
3.5.3	Détecteurs	44
4	Méthode d'analyse	47
4.1	Introduction	47
4.2	Principe général de la méthode	47
4.2.1	Notations	48
4.3	Méthode de détermination des rendements	48
4.4	Rendements $\mathbf{Y}_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$ et $\mathbf{Y}_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{Z}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$	50
4.5	Corrections expérimentales systématiques	53
4.5.1	Temps d'acquisition des spectres	53
4.5.2	Dispersion en énergie du spectromètre	53
4.5.3	Perte d'énergie cinétique dans la cible et la feuille de Nickel	53
4.5.4	Flux du réacteur	53
4.5.5	Combustion de la cible	54
4.5.6	Conclusion	58
4.6	Corrections expérimentales dues aux détecteurs Germanium	59
4.6.1	Etalonnage des détecteurs germanium	59
4.6.2	Efficacité des détecteurs Germanium	59
4.6.3	Coïncidences β - γ	61
5	Distributions en énergie cinétique et charge ionique	63
5.1	Etude des distributions en charge ionique	63
5.1.1	Forme typique des distributions	63
5.1.2	Charge ionique moyenne et largeur de distribution	63
5.1.3	Mise en évidence d'isomères nanosecondes	64
5.1.4	Comparaison des distributions en charge avec quelques modèles	71
5.2	Etude des distributions en énergie cinétique	75
5.2.1	formes des distributions	75
5.2.2	Caractéristiques des énergies cinétiques moyennes	75
5.2.2.1	Moments des distributions en énergie cinétique	75
5.2.2.2	$^{235}\text{U}(n_{th}, f)$	78
5.2.2.3	$^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$	79
5.2.2.4	$^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$	80
5.2.2.5	Comparaison des mesures avec les données de la littérature	81
5.2.2.6	Conclusion	81
5.2.3	Origine de la forme des distributions	85
5.2.3.1	Emission de neutrons prompts	92
5.3	Distributions en énergie et en charge ionique pour une masse A	93
6	Rendements en masse	97
6.1	Normalisation et calculs d'incertitude	97
6.1.1	Normalisation	97
6.1.2	Incertainces	98
6.1.2.1	Incertainces statistiques	98
6.1.2.2	Incertainces systématiques	98
6.1.2.3	Incertainces totales	99
6.2	Résultats	99

6.2.1	$^{235}\text{U}(n_{th},f)$	99
6.2.2	$^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	110
6.2.3	$^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$	119
6.2.4	Conclusion	126
7	Rendements isotopiques	127
7.1	Désintégrations β^- des produits de fission	127
7.1.1	Introduction	127
7.1.2	Equations de Bateman	128
7.2	Normalisation et calculs d'incertitudes	129
7.2.1	Normalisation	129
7.2.2	Incertainces	129
7.2.2.1	Incertainces statistiques et incertainces dûes à l'ajustement	129
7.2.2.2	Incertainces systématiques analogues à celles des rendements en masse	130
7.2.2.3	Incertainces liées aux bases de données	130
7.2.2.4	Incertainces systématiques des détecteurs	130
7.2.2.5	Incertainces totales	130
7.3	Rendements isotopiques, résultats	130
7.3.1	$^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	130
7.3.2	Masses et charges moyennes pour certains Z et A respectivement . .	137
7.3.2.1	Charges moyennes en fonction des A	137
7.3.2.2	Masses moyennes en fonction des Z	138
7.3.3	Effets de parité	140
7.3.4	Conclusion	141
7.4	Limites de la méthode	142
	Conclusion	143
	Annexe A : Démonstration de l'équation de calcul de rendement	145
	Annexe B : Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution	149
	Annexe C : Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution	153
	Bibliographie	157

Table des figures

1.1	Temps de demie-vie des produits de fission en fonction de leur rendement.	3
1.2	Rendements isobariques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ de la base de données JEFF3.1 comparées avec les valeurs de ENDFB-VI et JENDL-3.3.	5
1.3	Rendements isotopiques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ de la base de données JEFF3.1 comparées avec les valeurs de ENDFB-VI et JENDL-3.3.	6
1.4	Rendements en masse des produits de fission légers pour certains noyaux mesurés sur le Lohengrin.	7
2.1	Schéma de la réaction de fission.	9
2.2	Mise en évidence de l'existence d'une barrière de fission pour des valeurs de fissilité < 1 . La figure du haut représente toutes les variations de l'énergie de déformation selon les paramètres a_2 et a_4 , alors que la figure du bas représente ces mêmes variations pour le cas particulier des valeurs minimales de E_{def}	12
2.3	Barrière de fission pour un noyau d'actinide, [Wag91].	14
2.4	Echelle de temps pour le processus de fission, [Wag91].	15
2.5	Distributions en masse pour la fission thermique calculée par le modèle de Wilkins à gauche et données expérimentales à droite, [Poe97].	17
2.6	Paramétrisation d'un noyau selon les cinq paramètres du "finite range liquid-drop model" [M ⁺ 01a]. Les différentes couleurs indiquent les trois différentes surfaces prises en compte dans les calculs. Les croix cerclées indiquent la multiplication du nombre de points de chacun des cinq espaces à une dimension, le résultat étant égal à 2 767 500 points à considérer sur la grille. Cependant, un certain nombre de ces points correspondent à des cas non-physique, ils sont au nombre de 156 615, ce qui implique au final la prise en compte de 2 610 885 points physique sur la grille.	18
2.7	Surface d'énergie potentielle calculée pour un noyau d' ^{238}U selon le modèle de Bruyères-le-Châtel [G ⁺ 05].	19
2.8	Représentation d'un noyau selon les paramètres de Lawrence. La moitié de la longueur du noyau est notée l , r correspond au rayon du cou, z à sa position et c à sa courbure. La position du centre de masse est indiquée par la distance $axep/s$	20
2.9	Rendements des fragments de fission pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ avec les modes standard I, standard II et superlong représentés par les courbes continues en noir [B ⁺ 99].	21
3.1	Vue schématique en coupe de l'Institut Laue-Langevin représentant les lignes de faisceaux de neutrons ainsi que les différents instruments.	28

3.2	Vue en coupe (gauche) et vue de profil (droite) d'une cible et de son support. La cible consiste en un actinide (matière fissile) déposé sur une plaque de Ti. L'actinide est lui même recouvert par une feuille de Ni pour limiter les pertes de matière.	29
3.3	Schéma (gauche) et photographie (droite) du matériel d'électrodéposition. .	30
3.4	Représentation schématique du spectromètre Lohengrin.	32
3.5	Vue du plan focal du Lohengrin. La trajectoire centrale du spectromètre correspond aux valeurs de $A=136$, $q=21$ et $E_k=65$ MeV. Les lignes A/q voisines (130/20, 142/22) sont séparées grâce au caractère discret de A et de q.	34
3.6	Schéma du plan focal du Lohengrin, dans un plan perpendiculaire à la direction du faisceau, montrant les dispersions en masse et en énergie. Le rectangle central correspond à l'image de la source, avec un agrandissement de 1. Les rectangles +1 et -1 sont les images de cette même source pour des variations $\delta A/A$ ou $\delta E_k/E_k$ de 1% par rapport à la masse et à l'énergie de la trajectoire centrale. L'angle de 44° est dû à la déflexion du champ magnétique.	34
3.7	Echelle de temps de la fission et spectromètre Lohengrin.	35
3.8	Vue schématique de la chambre à ionisation.	37
3.9	Exemple de spectres obtenus pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. La figure du haut correspond aux paramètres $A = 100$, $q = 20$ et $E_k = 100$ MeV, alors que celle du bas correspond aux valeurs $A = 136$, $q = 21$ et $E_k = 64$ MeV. La tâche à gauche de la figure du bas annotée $E_{tot} = \Delta E$ correspond aux produits de fission qui sont restés bloqués dans la grille de séparation. . . .	38
3.10	Système d'acquisition en sortie de la chambre à ionisation.	41
3.11	A gauche : vue de profil de la chambre à vide placée à la sortie du spectromètre. Elle est traversée par une bande passante qui a pour rôle de stopper les produits de fission. A droite : vue de dessus de la chambre à vide, ainsi que des deux clovers Germanium et du scintillateur.	42
3.12	Photographie du système de détection lors de la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	43
3.13	Représentation schématique de la chambre à vide et de la bande passante.	43
3.14	Résistivité (<i>inverse de la conductivité</i>) pour différents types de matériaux.	44
3.15	Photographie du système de détection lors d'une expérience sur le Lohengrin.	45
4.1	Représentation de la masse 136 pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ selon les dimensions E_k et q . Le rendement de cette masse correspond au volume de la distribution.	49
4.2	Exemple de spectre obtenu pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Le rendement $Y_{exp}(136, 21, 64)$ correspond aux nombre d'ions de la tâche en rouge.	50
4.3	Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 137$, la charge ionique $q = 21$ et l'énergie cinétique $E_k = 52$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1800 s.</i>	51

4.4	Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 140$, la charge ionique $q = 23$ et l'énergie cinétique $E_k = 67$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.</i> On peut voir sur ce spectre trois régions sélectionnées. Les deux régions les plus extrêmes, les plus à gauche et à droite, permettent d'évaluer un ajustement du bruit de fond qui est donné par la ligne verte. La région du milieu représente les pics γ à fitter. Leur nombre est choisi par l'utilisateur au vue de la contamination de cette région par des raies γ parasites. L'isotope mesuré sur cet exemple correspond au pic d'énergie 602,3 keV du Césium.	51
4.5	Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 143$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 62$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.</i> Sur ce spectre la courbe en jaune correspond au fit total des trois pics γ , chacun représenté séparément par une gaussienne en violet.	52
4.6	Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 141$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 53$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.</i>	52
4.7	Variation de la puissance thermique du réacteur au cours de la mesure des rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$	54
4.8	L'intégrale de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 à la charge 21 est tracée en fonction du temps pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$. Elles correspondent aux burn-up de ces trois cibles.	56
4.9	Burn-up des deux différentes mesures dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$: raie γ de 332,7 keV du noyau ??? en fonction du temps.	57
4.10	Impact des différentes corrections sur une distribution en énergie cinétique ($A=133, q=21$ pour la réaction $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$). La figure du milieu correspond à la distribution du haut après la prise en compte de la perte d'énergie des produits de fission dans la cible, alors que celle du bas montre l'effet des corrections du burn-up et du flux du réacteur. Ces dernières restent faibles en fonctionnement normal, puisque le flux varie peu, et que la combustion de la cible reste faible le temps d'une mesure de distribution.	58
4.11	Courbe d'efficacité typique pour un détecteur germanium. Les points représentent les valeurs expérimentales alors que le fit est donné par la courbe continue [Kno99].	60
4.12	Courbe d'efficacité des détecteurs germanium pour la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ de juin 2008. Les points représentent les valeurs expérimentales alors que le fit est donné par la courbe continue. . .	60
5.1	Exemples de distributions typiques en charge ionique ajustées par une distribution gaussienne pour les trois noyaux mesurés.	64
5.2	Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour les trois noyaux mesurés.	65
5.3	Exemple de distributions en charge ionique mettant en évidence la présence d'isomère nanoseconde pour les trois noyaux mesurés.	66
5.4	Mise en évidence des isomères nanosecondes pour les masses et les isotopes des produits de fission de la réaction $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$	67

5.5	Distributions en charge ionique pour la région des produits de fission légers (figures de gauche [W ⁺ 78] : $A = 89$, $E_k = 97,3 MeV$) et pour la région des produits de fission lourds (figure de droite [B ⁺ 89] : $A = 142$). La distribution de la masse 89 (figure en haut à gauche) : a est fittée avec deux gaussiennes, celle de gauche : b correspond à l'état fondamental du noyau alors que celle de droite : c correspond à son état isomérique. De la même façon est tracée sur la figure en bas à gauche la distribution de l'isotope de Krypton de cette même masse. La figure de droite montre la distribution en charge ionique de la masse 142 pour différentes énergies cinétiques.	68
5.6	Représentation schématique de la désexcitation d'un isomère nanoseconde par conversion interne.	70
5.7	Mise en évidence avec la chambre à ionisation de la présence d'un isomère nanoseconde pour la masse 140 (points en noir). Les mesures par spectrométrie γ (points en rouge et vert) montrent que l'état isomérique provient du Césium ($Z=55$) . Les erreurs représentées sont les erreurs statistiques.	70
5.8	Charges ioniques moyennes et largeurs des distributions pour les trois noyaux mesurés comparées aux prédictions de V. Nikolaev. Sont représentées sur la figure les charges ioniques moyennes et les largeurs des distributions entières en état de charges. Les erreurs représentées sont les erreurs statistiques.	72
5.9	Charges ioniques moyennes et largeurs des distributions pour les trois noyaux mesurés comparées aux prédictions de K. Shima. Les figures de gauche représentent les charges ioniques moyennes des distributions mesurées comparées aux prédictions de Shima. Sur les figures de droite seules les valeurs des fits gaussiens de plus basse charge sont comparées avec les prédictions de Shima (courbes en rouge). Les distributions en charge ionique des états isomériques représentées par les gaussiennes de plus haute charge sont représentées en vert.	74
5.10	Exemple de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. La première ligne représente les distributions pour deux masses différentes avec comme erreur uniquement l'erreur statistique. A la deuxième ligne sont représentées ces mêmes masses fittées avec une fonction gaussienne. De même, la troisième ligne montre ces distributions fittées avec deux gaussiennes (courbes vertes, la courbe rouge étant la somme de ces deux fonctions). Tous les paramètres des gaussiennes ont été laissés indépendants.	76
5.11	Distributions en énergie cinétique de la réaction $^{239}\text{Np}(n_{th},f)$ pour les masses légères 90, 100 et 105 [M ⁺ 90].	77
5.12	Valeurs moyennes (noir) et largeurs des distributions (rouge) et coefficient d'asymétrie (bleu) des énergies cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$	78
5.13	Valeurs moyennes (noir) et largeurs des distributions (rouge) et coefficient d'asymétrie (bleu) des énergies cinétique pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	79
5.14	Valeurs moyennes (noir) et largeurs des distributions (rouge) et coefficient d'asymétrie (bleu) des énergies cinétique pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$	80
5.15	Comparaison des énergies cinétiques moyennes mesurées pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sur le Lohengrin puis corrigées de l'évaporation des neutrons prompts avec différentes expériences ([B ⁺ 97, W ⁺ 81, D ⁺ 69]).	82

5.16	Comparaison des énergies cinétiques moyennes mesurées pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ sur le Lohengrin puis corrigées de l'évaporation des neutrons prompts avec différentes expériences ([T ⁺ 00, N ⁺ 95, W ⁺ 84, S ⁺ 71]).	83
5.17	Comparaison des énergies cinétiques moyennes mesurées pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sur le Lohengrin puis corrigées de l'évaporation des neutrons prompts avec différentes expériences ([V ⁺ 73]).	84
5.18	Schéma de la cible mettant en évidence l'influence de l'épaisseur de la matière traversée pour la perte d'énergie : $\Delta E_1 > \Delta E_2$ même si $E_{pf_1} = E_{pf_2}$	85
5.19	Variation de la distribution en énergie cinétique après traversée de matière.	86
5.20	Exemple de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	88
5.21	Exemple de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel. On remarque que ces distributions conservent une forte queue dans les basses énergies, entraînant comme conclusion que les pertes d'énergie dans la cible ne sont pas à l'origine de la forme asymétrique des gaussiennes.	88
5.22	Exemple de distributions en énergie cinétique pour les masses (haut) et les isotopes (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel.	89
5.23	Rendements en masse (haut), énergies cinétiques moyennes (milieu) et leurs largeurs (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les cercles représentent les points de mesures alors que les traits pleins montrent les différentes contributions des modes de fission, [H ⁺ 89].	90
5.24	Energies cinétiques moyennes en fonction des masses tracées pour les 3 systèmes fissionnants étudiés. Les points en noir représentent l'énergie cinétique moyenne de la gaussienne de haute énergie de la distribution en E_k , alors que la gaussienne de basse énergie est représentée par les points en rouge. La courbe en bleu correspond à l'énergie cinétique moyenne de la distribution totale.	91
5.25	Forme des distributions de masses 98 (haut) et 136 (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les traits blancs représentent un fit sur les énergies cinétiques moyennes des distributions alors que ceux en noir représentent un fit sur les valeurs moyennes des distributions en charge ionique.	93
5.26	Dépendance des charges ioniques moyennes calculées selon le modèle de Shima des produits de fission après traversée d'une feuille de Nickel selon les énergies cinétiques (haut) et les charges nucléaires (bas) des ions.	95
6.1	Thomas Materna (gauche) et Herbert Faust (droite) pendant la réparation d'une des résistances du générateur de haute tension.	101
6.2	Rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$	101
6.3	Rendement en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques sont représentées par des barres verticales sur chaque point, alors que les valeurs des incertitudes systématiques sont données par la courbe hachurée.	102
6.4	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JEFF3.1</i>	103
6.5	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>ENDFB-VI</i>	104
6.6	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JENDL-3.3</i>	105

6.7	Rendements en masse mesurés sur le Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p	107
6.8	Comparaison des rendements en masse des produits de fission de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesuré sur le Lohengrin (points en noir) et sur le spectromètre Hiawatha (cercles en bleu).	107
6.9	Comparaison des mesures de rendements de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ post-émission neutronique sur le Lohengrin avec des mesures pre-émission neutronique. . . .	108
6.10	Rendements en masse tracés pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.	109
6.11	Rendement en masse pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques sont représentées par des barres verticales sur chaque point, alors que les valeurs des incertitudes systématiques sont données par la courbe hachurée.	111
6.12	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JEFF3.1</i>	112
6.13	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>ENDFB-VI</i>	113
6.14	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JENDL-3.3</i>	114
6.15	Rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés dans les légers (cercles) et dans les lourds (points).	115
6.16	Rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p	116
6.17	Comparaison des mesures de rendements du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ post-émission neutronique sur le Lohengrin avec des mesures pre-émission neutronique. . . .	116
6.18	Rendements en masse tracés pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.	118
6.19	Rendement en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques sont représentées par des barres verticales sur chaque point, alors que les valeurs des incertitudes systématiques sont données par la courbe hachurée.	120
6.20	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JEFF3.1</i>	121
6.21	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>ENDFB-VI</i>	122
6.22	Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JENDL-3.3</i>	123
6.23	Comparaison des mesures de rendements en masse mesurés sur le spectromètre Lohengrin (post-émission neutronique) avec une mesure sur le Van de Graff d'Obninsk avec des détecteurs silicium (pre-émission neutronique). . . .	124
6.24	Rendements en masse tracés pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.	125
7.1	Charte des noyaux [www.nndc.bnl.gov].	127
7.2	Rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	132
7.3	Tableau récapitulatif des raisons pour lesquelles les rendements isotopiques de certaines masses n'ont pas pu être mesurés.	133

7.4	Comparaison des rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) avec les données de JEFF3.1 (croix), les rendements évalués de Wahl (cercle). Ces rendements sont aussi comparés pour certaines charges nucléaires avec différentes mesures : Bogdzel (étoiles), Balestrini (losanges), Flynn (triangles) et Gundorin (triangles renversés).	134
7.5	Comparaison des rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) avec les données de JEFF3.1 (croix), les rendements évalués de Wahl (cercle). Ces rendements sont aussi comparés pour certaines charges nucléaires avec différentes mesures : Bogdzel (étoiles), Balestrini (losanges), Flynn (triangles) et Gundorin (triangles renversés).	135
7.6	Comparaison des rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) avec les données de JEFF3.1 (croix), les rendements évalués de Wahl (cercle). Ces rendements sont aussi comparés pour certaines charges nucléaires avec différentes mesures : Bogdzel (étoiles), Balestrini (losanges), Flynn (triangles) et Gundorin (triangles renversés).	136
7.7	Masses moyennes en fonction des charges nucléaires.	137
7.8	Charges nucléaires moyennes en fonction des masses.	138
7.9	Charges nucléaires moyennes en fonction des masses.	139
7.10	ΔZ en fonction des masses primaires (figure de gauche) et des charges nucléaires (figure de droite).	139
7.11	Effet de parité global pour les protons en fonction du paramètre de Coulomb $Z^2/A^{1/3}$ de plusieurs systèmes fissionnants.	140
7.12	Effet de parité local en fonction des masses pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les calculs ont été effectués uniquement pour les isotopes qui mesurés sur le Lohengrin. Les points en noir représentent les valeurs calculés pour les points mesurés, les croix en rouge représentent les valeurs calculées avec les données de JEFF3.1.	141

Introduction

En validant la mesure des rendements isobariques pour la région des produits de fission lourds et en mettant au point une nouvelle technique de mesure pour déterminer les rendements isotopiques de cette même région, le travail de cette thèse s'inscrit dans la problématique des données nucléaires. En effet, parce que la fission nucléaire est un phénomène très complexe, les modèles ne sont pas encore à même de reproduire les distributions en masse et en charge nucléaire des produits de fission pour un noyau donné. Cependant ces données sont indispensables entre autre dans le calcul des scénarios des réacteurs nucléaires, ou encore pour valider les modèles théoriques. Il est donc encore aujourd'hui nécessaire de poursuivre ce type de mesure.

Les expériences présentées dans cette thèse, fruit d'une collaboration CEA-ILL, ont été entreprises sur le spectromètre de masse Lohengrin de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble (ILL). Elles ont permis de déterminer les rendements en masse des réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ ainsi que les rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ pour la région des produits de fission lourds.

La thèse se compose de sept chapitres.

Le premier chapitre, **Motivations**, permet de situer ce travail par rapport à la problématique des bases de données nucléaires.

Dans le deuxième chapitre, **La fission nucléaire, état de l'art** sont résumés les principaux modèles de fission ainsi que les différents types d'expérience à même de mesurer des rendements de fission.

Le troisième chapitre **Dispositif expérimental** est consacré à l'Institut Laue-Langevin et au spectromètre de masse Lohengrin. Les méthodes de fabrication de cibles ainsi que la description des dispositifs expérimentaux pour la mesure des rendements isobariques et isotopiques y sont données.

La **Méthode d'analyse** pour déterminer les rendements en masse et les rendements isotopiques est décrite dans le chapitre quatre. Cette partie aurait pu être présentée dans les deux derniers chapitres, séparant ainsi la méthode d'analyse des rendements isobariques et des rendements isotopiques. Cette disposition aurait facilité la lecture en présentant directement à la suite des méthodes d'analyse les résultats. Cependant si ces deux expériences sont différentes, elles ont également un grand nombre de points communs. Mais le choix de réunir ces deux parties en un seul chapitre vient surtout du fait que le chapitre cinq, indispensable pour une bonne appréhension des résultats, s'appuie sur des exemples qui proviennent tantôt des mesures en masse, et tantôt des mesures par spectrométrie.

Le chapitre cinq, intitulé **Distributions en énergie cinétique et charge ionique**, présente une étude approfondie de ces distributions. Cette étude a permis dans un premier temps de mieux estimer les rendements, mais également de mettre en évidence certaines propriétés physiques, telle que la présence d'isomères nanosecondes pour certains noyaux étudiés.

Les résultats des mesures de **Rendements en masse** sont donnés au chapitre six.

Le chapitre sept, quant à lui, présente les résultats des **Rendements isotopiques** du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Chapitre 1

Motivations

1.1 Importance des mesures de rendements de fission

Parce que la fission nucléaire est un phénomène très complexe, à l'heure actuelle aucun modèle théorique n'est encore en mesure de prédire les rendements des produits de fission. Pourtant la connaissance de ces données reste indispensable pour les applications nucléaires, civiles ou militaires.

Par exemple, aujourd'hui, la question des ressources énergétiques est de plus en plus d'actualité. Pour améliorer la gestion du combustible dans les réacteurs de génération III, mais aussi pour le développement des réacteurs de génération IV, il est important entre autre de connaître avec une très grande précision les rendements des produits de fission. Mais ces données jouent également un rôle clé dans d'autres domaines, comme la gestion des déchets radioactifs. Pour cela, la figure 1.1 montre l'importance de bien connaître les rendements des produits de fission afin de pouvoir quantifier correctement le poids des contributions de chaque noyaux de durée de vie longue.

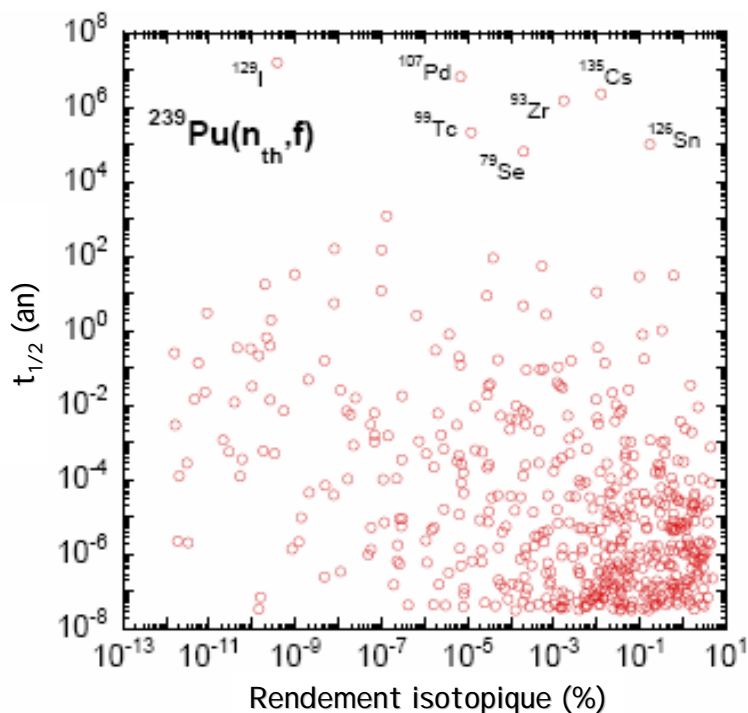


FIG. 1.1 – Temps de demie-vie des produits de fission en fonction de leur rendement.

La puissance résiduelle d'un réacteur nécessite elle aussi une bonne connaissance de ces

rendements, ainsi que de leur énergie cinétique.

Il en est de même pour le nombre de neutrons retardés par sommation, et bien d'autres applications encore.

De nombreuses mesures ont déjà été réalisées afin d'estimer les rendements de fission pour un grand nombre d'actinides. Cependant, les demandes actuelles des applications sont de plus en plus exigeantes, et les récents progrès faits dans différents domaines, comme dans celui des détecteurs, permettent aujourd'hui d'effectuer des mesures plus précises et complètes pour les noyaux déjà étudiés, mais aussi d'explorer de nouveaux domaines de fission.

1.2 Les différentes bases de données

La plupart des données de rendements sont disponibles dans les bibliothèques de données nucléaires.

L'objectif de ces bases est de fournir toutes les propriétés des noyaux mis en jeu au cours la fission nucléaire. Elles jouent un rôle très important puisqu'elles représentent par exemple les données d'entrée des codes de simulation des réacteurs nucléaires.

Elles sont de trois types :

- les bases de données nucléaires bibliographiques (CINDA),
- les bases de données nucléaires expérimentales (EXFOR),
- les bases de données nucléaires évaluées (EVA).

A titre indicatif, l'AEN a introduit dans la base EXFOR 80 mesures de réactions induites par des neutrons et plus de 110 mesures de réactions induites par des particules chargées. Quant à la base de données CINDA, elle comprenait en 2007 plus de 55 000 références.

Cependant, les bases de données les plus utilisées sont celles évaluées telles que JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion, Européen), ENDF (Evaluated Nuclear Data File, Américain) et JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Japonais).

Elles comprennent des informations sur les temps de vie des actinides et des produits de fission, les sections efficaces de différentes réactions nucléaires, les rendements de fission indépendants et cumulés, le nombre d'émission de neutrons retardés par les produits, leurs énergies cinétiques, ...

Elles sont le résultat de compilations et évaluations entre les différentes expériences et modèles disponibles, et sont toutes écrites sous le même format, le format ENDF.

Les bases de données existantes sont normalement bien documentées pour ce qui concerne les données liées aux réacteurs actuels, mais possèdent relativement peu d'informations pour les réacteurs hybrides ou encore la transmutation des déchets. De nombreux progrès sont donc à faire dans ce domaines.

Cependant, même pour les noyaux très étudiés comme l' ^{235}U ou le ^{239}Pu qui jouent un rôle très important dans le fonctionnement des réacteurs actuels, les différentes bases de données ne sont pas toujours en accord les unes avec les autres, et surtout les barres d'erreur sont importantes, figures 1.2 et 1.3. On peut remarquer, sur ces figures, que l'accord pour les rendements isobariques entre les trois bases JEFF3.1, ENDFB-VI et JENDL-3.3, les dernières versions des bases JEFF, ENDFB et JENDL, est satisfaisant pour les produits de fission qui ont un fort rendement. En revanche, pour les régions de la fission moins peuplées, comme la zone symétrique ou les queues des distributions pour les plus basses masses ainsi que pour les plus élevées, les résultats ne sont pas satisfaisants. Les mêmes constatations peuvent être faites pour les rendements isotopiques, et ceci sans perdre à l'esprit que les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont les réactions de fission nucléaires qui ont été le plus étudiées.

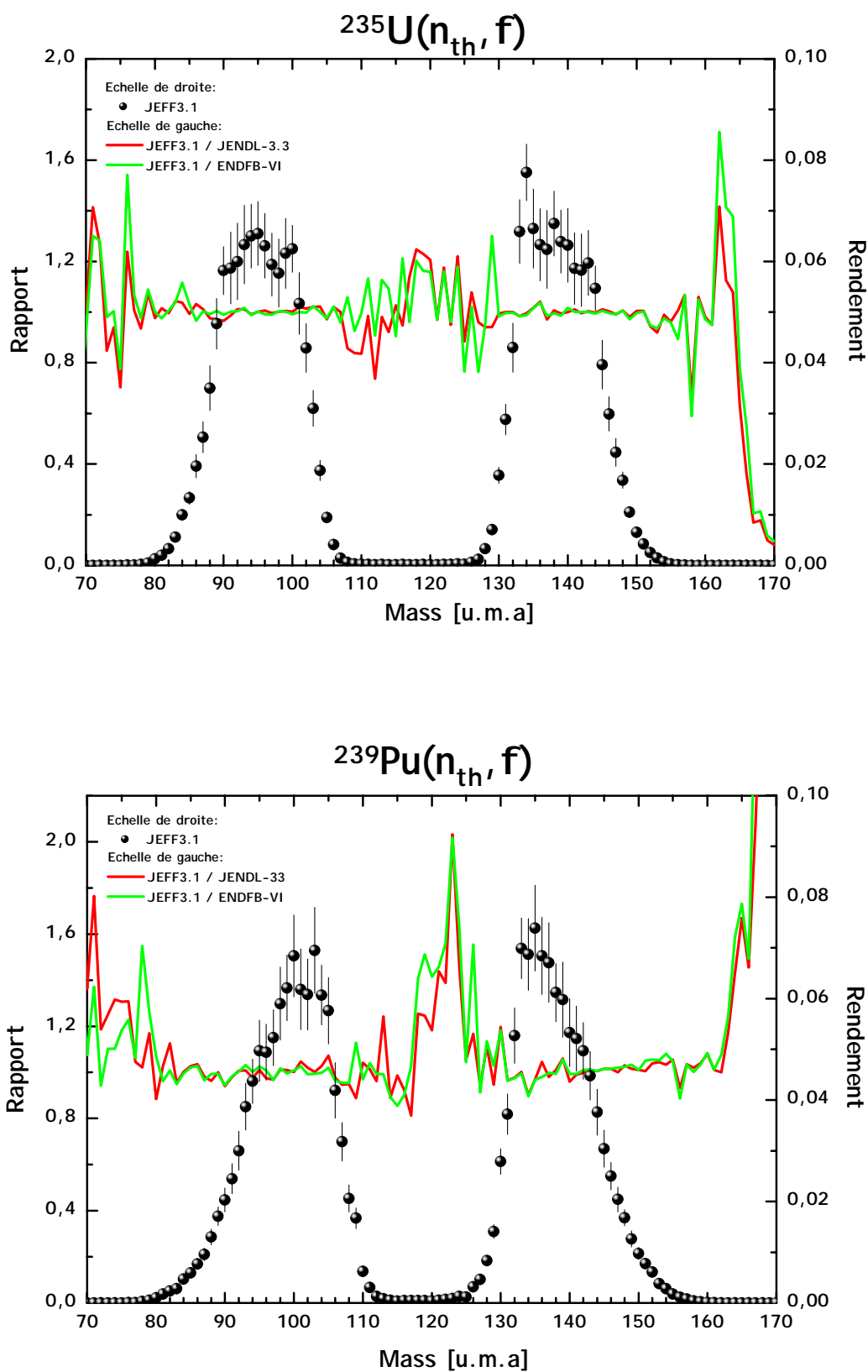


FIG. 1.2 – Rendements isobariques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ de la base de données JEFF3.1 comparées avec les valeurs de ENDFB-VI et JENDL-3.3.

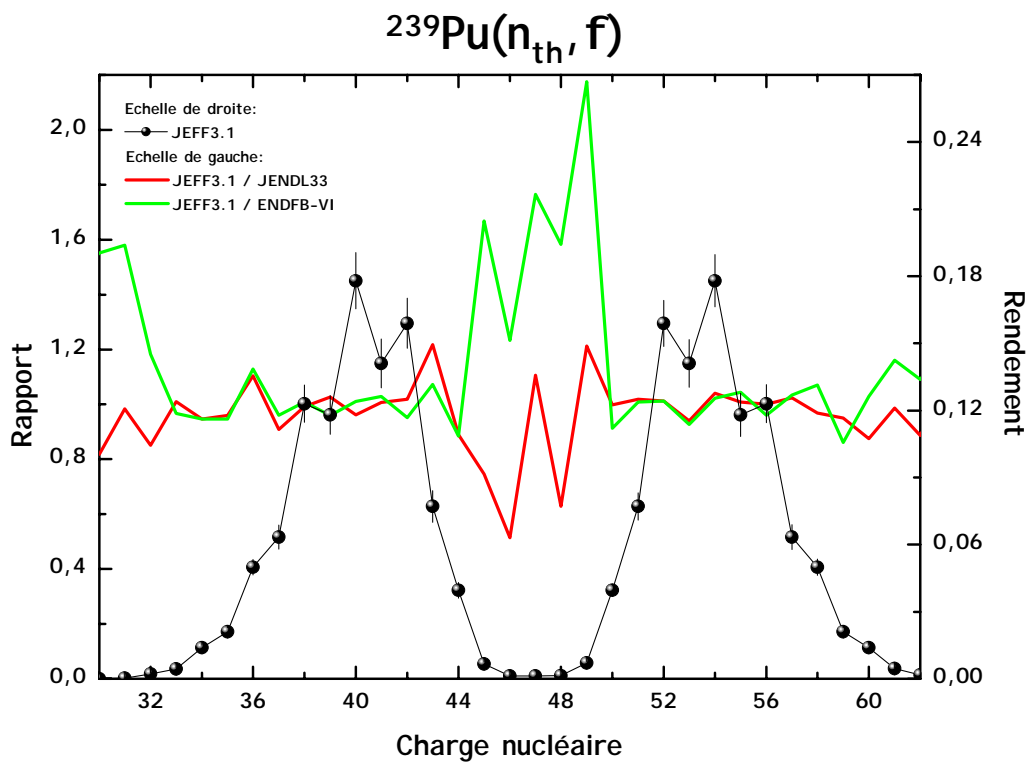
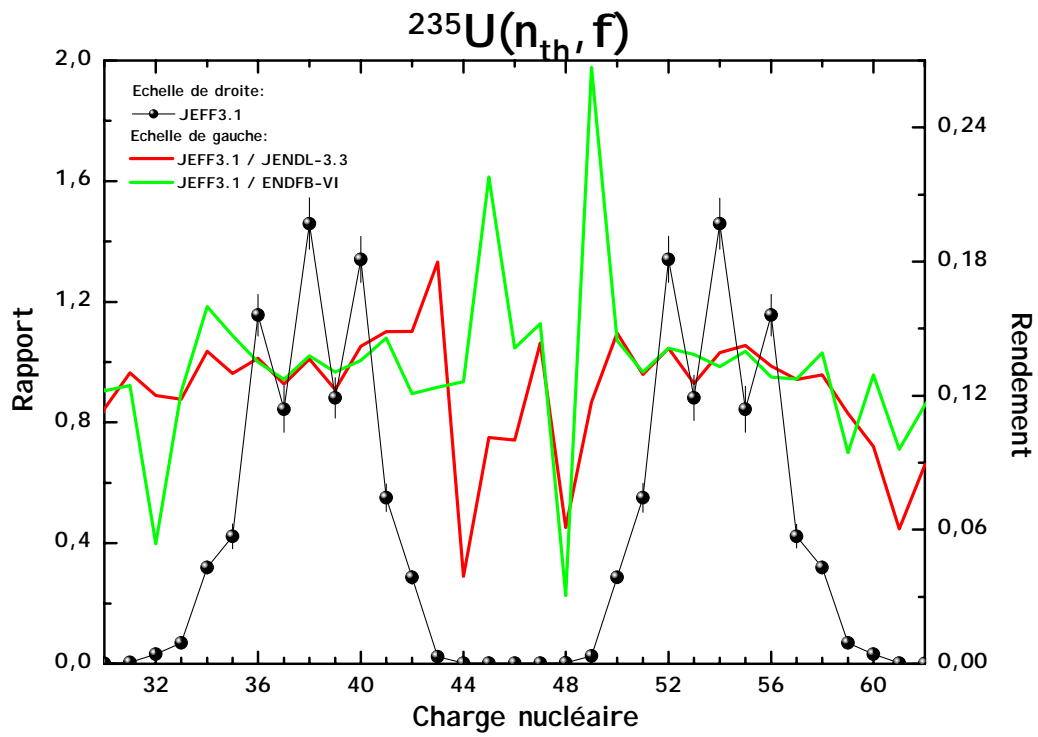


FIG. 1.3 – Rendements isotopiques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ de la base de données JEFF3.1 comparées avec les valeurs de ENDFB-VI et JENDL-3.3.

1.3 Le spectromètre Lohengrin et les mesures de rendements

Une grande partie des mesures de rendements de fission ont été effectuées sur le spectromètre de masse Lohengrin de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble. C'est un instrument incontournable dans la mesure des rendements de fission puisqu'il permet à l'heure actuelle les mesures de distributions en masse et en isotope les plus précises.

De nombreux noyaux y ont été étudiés 1.4.

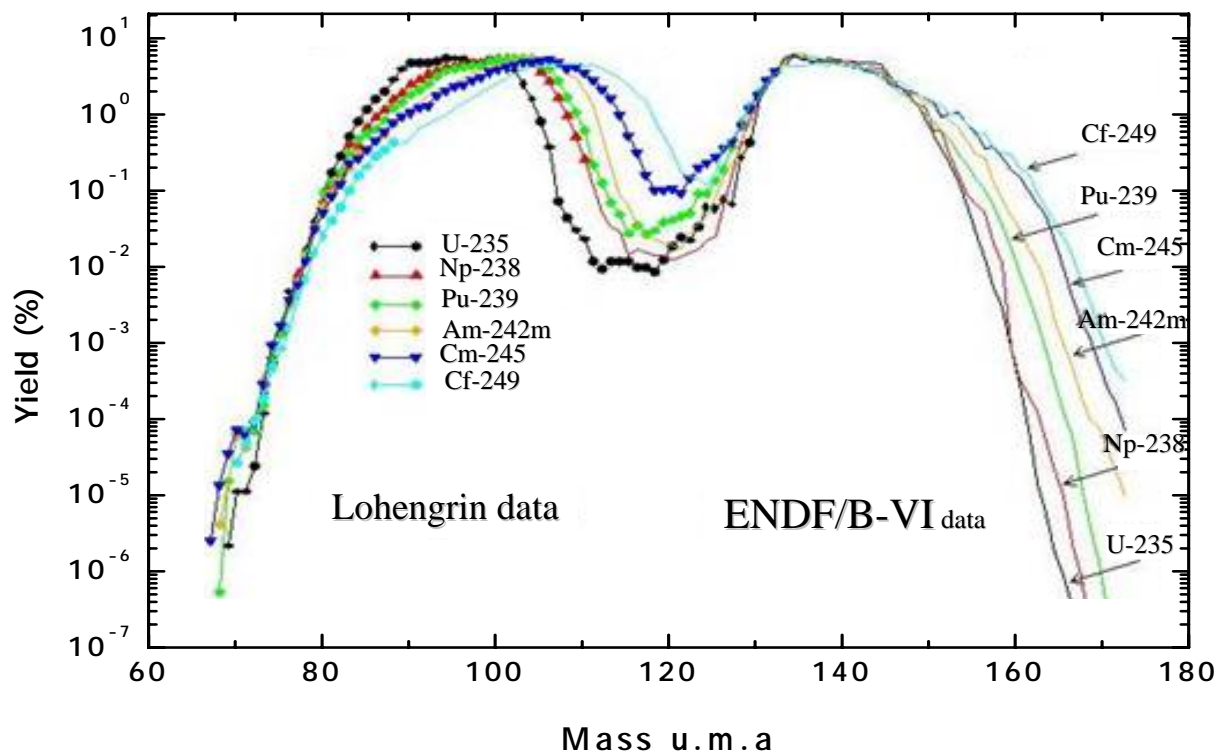


FIG. 1.4 – Rendements en masse des produits de fission légers pour certains noyaux mesurés sur le Lohengrin.

Cependant, jusqu'à présent, les mesures de rendements sur le spectromètre ne concernaient que les produits de fission légers et la région asymétrique, puisque la méthode expérimentale utilisée ne permettait pas de séparation isotopique pour les noyaux de $Z > 42$.

Néanmoins, cet instrument a grandement contribué à améliorer les bibliothèques nucléaires pour les régions mesurées, produits de fission légers et région symétrique, et cette thèse ouvre la voie à l'étude des produits de fission lourds sur le Lohengrin [Mil95].

Chapitre 2

La fission nucléaire, état de l'art

2.1 Rappel sur quelques termes de fission

Découverte en 1939 par L. Meitner, O. Hahn et F. Strassman [M⁺39], la fission nucléaire n'a cessé, depuis ce jour, d'être au coeur de nombreuses études. Les soixante-dix années qui se sont écoulées depuis sa découverte ont vu un grand nombre de modèles théoriques voir le jour, sans qu'aujourd'hui aucun d'entre eux n'arrive à modéliser complètement ce phénomène.

Processus très complexe, la fission, qui met en jeu des propriétés de structures nucléaires auxquelles il faut associer des considérations dynamiques, représente un véritable défi théorique.

Bien que très rapidement après sa mise en évidence expérimentale, ses principales caractéristiques ont été décrites par les tous premiers modèles, les nombreux progrès faits depuis lors, notamment par traitement dynamique du processus, ne permettent toujours pas une description complète de ce phénomène.

Afin de mieux comprendre les quelques modèles étudiés dans ce chapitre, ainsi que le travail de cette thèse, les principaux termes de fission sont expliqués dans ce paragraphe et mis en évidence à la figure 2.1.

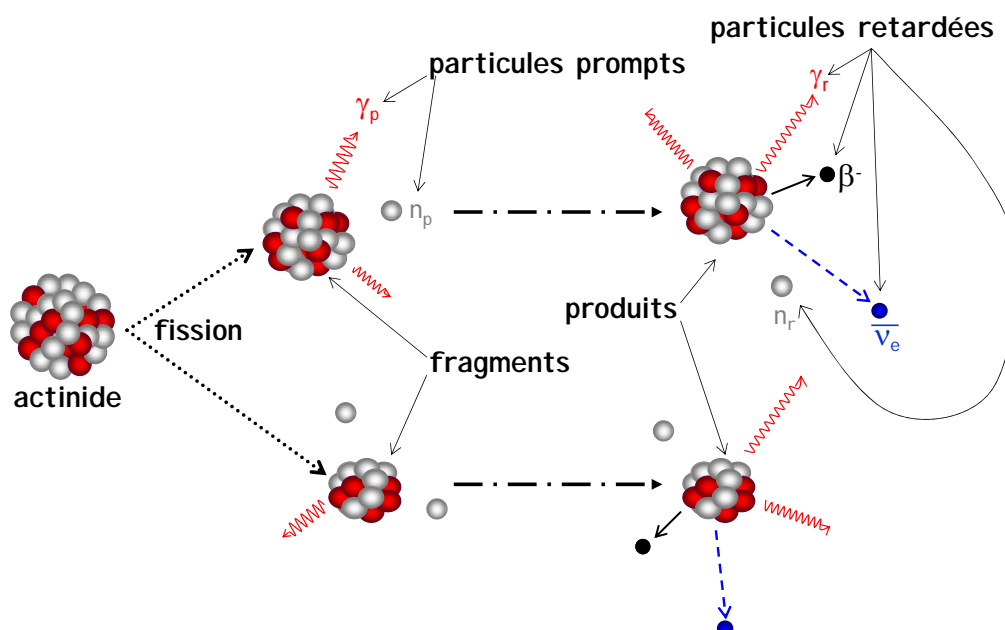


FIG. 2.1 – Schéma de la réaction de fission.

La **fission nucléaire** est une forme de désintégration radioactive au cours de laquelle un noyau lourd (A^*, Z^*) est divisé en plusieurs noyaux plus légers.

Les **fragments de fission** (A'_i, Z'_i) sont les noyaux émis directement par la fission. Parce qu'ils sont très énergétiques, ils vont rapidement émettre des **particules prompts**, gamma ou neutrons, afin de libérer leur énergie et atteindre leur état fondamental.

Une fois ces particules émises, on parle de **produits de fission** (A_i, Z_i). Ils sont excédentaires en neutrons, et pour rejoindre la vallée de la stabilité, subissent une série de désintégrations β^- au cours desquelles ils émettent des **particules retardées**, électrons, gamma, neutrons et antineutrinos électroniques.

Si le nombre de neutrons prompts émis par fragment de fission est noté ν_{pi} , alors $A'_i = A_i + \nu_{pi}$.

Le **rendement indépendant** en masse ou en charge nucléaire correspond au nombre de produits de masse A ou de charge nucléaire Z directement émis par la fission juste après l'émission des neutrons prompts et avant les désintégrations β^- .

En revanche, les **rendements cumulés** correspondent aux rendements des produits de fission de masse A ou de charge nucléaire Z après les désintégrations retardées.

Dans plus d'un cas sur mille, la fission est dite **binaire**, et **asymétrique**, c'est à dire que le noyau père se scinde en deux fragments de masse différente, (A'_1, Z'_1) et (A'_2, Z'_2) tels que $A'_1 + A'_2 = A^*$ et $Z'_1 + Z'_2 = Z^*$. On parle alors de fragment léger et de fragment lourd. Si on note ν_p le nombre total de neutrons émis par fission, on obtient alors la relation suivante : $A^* = A_1 + A_2 + \nu_p$.

Contrairement à la **fission spontanée** pour laquelle le noyau lourd fissionne sans apport extérieur d'énergie, la **fission induite par neutron thermique** n'est possible que grâce à l'énergie libérée par la liaison du neutron incident avec le neutron célibataire du noyau père.

2.2 Modèles de fission

2.2.1 Modèle de la goutte liquide

Bien que le modèle de la goutte liquide, qui fut à proprement parler le premier vrai modèle de fission nucléaire, soit irrémédiablement dans l'impossibilité de décrire complètement le processus de fission d'un noyau, il est difficile, voir impossible, de faire l'impasse sur ce modèle lorsque l'on aborde les problèmes de fission nucléaire.

Il fut développé en 1928 par G. Gamow, partant du principe qu'un noyau peut être assimilé à une goutte homogène de fluide incompressible chargée uniformément, et ce de par le phénomène de saturation des forces nucléaires qui donne pratiquement à tous les noyaux la même densité, avec un rayon proportionnel à $A^{1/3}$. Il permet ainsi d'exprimer la variation de l'énergie d'un noyau en fonction de sa déformation nucléaire sans pour autant prendre en compte sa composition interne. Il s'appuie sur l'équation semi-empirique de Weizäcker qui décrit les différentes forces qui interviennent dans la stabilité d'un noyau, résultant en particulier d'un équilibre entre la tension de surface de la goutte et les forces de répulsion coulombienne :

$$E = \underbrace{-\alpha A}_{E_{vol}} + \underbrace{\beta A^{2/3}}_{E_{surf}} + \underbrace{\gamma Z(Z-1)A^{-1/3}}_{E_{coulomb}} + \underbrace{\delta \frac{(N-Z)^2}{A}}_{E_{asym}} + \delta_{app} \quad (2.1)$$

Le premier terme, E_{vol} , ainsi que les deux derniers, E_{asym} et δ_{app} , ne dépendent pas de la déformation et ne jouent donc aucun rôle dans la description du processus de fission.

Ils sont proportionnels au volume nucléaire, supposé constant de par l'hypothèse d'incompressibilité de la matière nucléaire. E_{vol} indique que l'énergie de cohésion du noyau est proportionnelle au nombre de nucléon. L'énergie d'asymétrie E_{asym} ainsi que le terme d'appariement δ_{app} relatent de la proportion du nombre de protons par rapport au nombre de neutrons.

Les deux termes qui vont avoir une influence sur la stabilité du noyau sont le terme d'énergie de surface E_{surf} ainsi que celui d'énergie coulombienne $E_{coulomb}$. Le premier de ces deux termes, de signe négatif, est proportionnel à la surface du noyau. Il prend en compte les variations de l'énergie de liaison des nucléons périphériques selon la déformation. Ce terme reste faible dans le cas d'un noyau sphérique et augmente avec la déformation nucléaire. L'énergie coulombienne, de signe positif, est due à la répulsion coulombienne entre les protons. Plus les protons seront éloignés les uns des autres, plus ce terme sera faible.

Cette modélisation ne prend donc pas en compte les effets de couches à l'intérieur du noyau ni les interactions entre les nucléons, mais elle décrit de façon simple les variations de l'énergie potentielle en fonction de la déformation du noyau.

C'est la distance $R(\Omega) = |\overrightarrow{OM}|$ qui caractérise la forme de la goutte, elle correspond à la distance entre le centre de masse O de la goutte et un point M arbitraire de sa surface dans la direction $\Omega = (\theta, \phi)$.

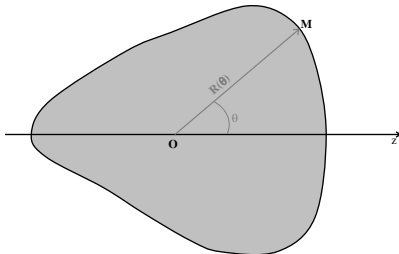
Si l'on considère une goutte axiale autour de l'axe O_z , alors la distance $R(\Omega)$ ne dépend pas de l'angle azimutal et $R(\theta)$ peut être écrit comme étant :

$$R(\theta) = R_0 \left(1 + \sum_{l=0}^{\infty} a_l P_l(\cos\theta) \right)$$

avec $R_0 = r_0 A^{1/3}$ le rayon de la goutte lorsqu'elle est sphérique et P_l les polynômes de Legendre tels que :

$$P_l^m(\cos(\theta)) = \frac{(-1)^m}{2^l l!} \sqrt{\frac{2(l-m)!}{(l+m)!}} (1 - \cos(\vartheta))^{\frac{m}{2}} \frac{\delta^{l+m}(\cos^2\theta - 1)^2}{\delta(\cos\theta)^{l+m}}$$

avec dans notre cas $m = 0$.



Les paramètres a_l caractérisent la déformation de la goutte :

a_0 contrôle le volume,

a_1 la position du centre de masse,

a_2 la déformation quadrupolaire (rapport entre l'élongation le long de l'axe O_z et le long d'un axe transverse)

a_3 la déformation octupolaire (asymétrie droite/gauche par rapport à un plan perpendiculaire en O à O_z),

a_4 sa déformation hexadécapolaire,

...

Soit $x = \frac{|\Delta E_{coulomb}|}{\Delta E_{surf}}$ le paramètre de fissilité. Il donne directement une indication sur la possibilité du noyau à fissionner ou non. Plus sa valeur est grande et plus la répulsion coulombienne l'emportera sur la tension de surface, augmentant ainsi la probabilité de la goutte à fissionner spontanément (condition qui ne se rencontre que pour les noyaux lourds).

Afin d'expliquer la fission pour des noyaux tels que les actinides, il faut développer les paramètres de Legendre au moins jusqu'à l'ordre 4 pour révéler l'existence d'une barrière de fission, barrière qui explique la possibilité pour des noyaux avec un $x < 1$ de fissionner. Cette étude a été faite pour la première fois par Bohr et Wheeler en 1939 pour laquelle ils menèrent le calcul de l'énergie de déformation jusqu'à l'ordre 4 pour les paramètres a_2 et a_4 . En minimisant cette énergie par rapport au paramètre a_4 pour chacune des valeurs de a_2 , ils distinguèrent dans les variations de l' E_{def} l'équation $a_4 = a_4(a_2)$ qui met en évidence la fragmentation du noyau par l'apparition d'un maximum de cette énergie de déformation, barrière de potentielle appelée barrière de fission. Elle est représentée schématiquement sur la figure 2.2, [B⁺06a]. Le point selle au niveau de la barrière de fission indique le moment à partir duquel le noyau va irrémédiablement fissionner.

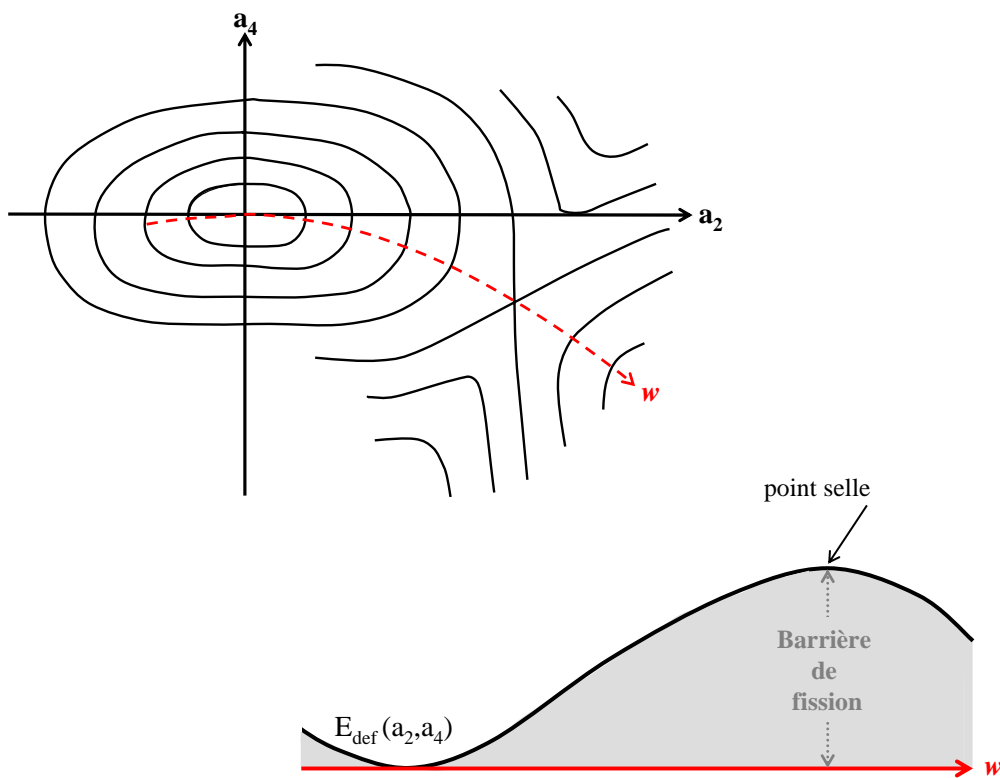


FIG. 2.2 – Mise en évidence de l'existence d'une barrière de fission pour des valeurs de fissilité < 1 .

La figure du haut représente toutes les variations de l'énergie de déformation selon les paramètres a_2 et a_4 , alors que la figure du bas représente ces mêmes variations pour le cas particulier des valeurs minimales de E_{def} .

Sans cette barrière de fission, il serait impossible d'expliquer la fission de noyaux tels que l'Uranium. En effet, pour ces noyaux qui restent stables vis-à-vis des différents types de déformations ($x < 1$), un apport d'énergie, par exemple par capture neutronique, leur permet de surmonter cette barrière pour atteindre un niveau de déformation le contraignant à fissionner.

La simplicité de ce modèle n'en a pas empêché son succès, il est d'ailleurs remarquable de constater que les estimations faites par Bohr et Wheeler quant aux hauteurs des barrières de fission sont quantitativement tout à fait réalistes.

De plus, ce modèle a depuis bénéficié de nombreuses améliorations, qui l'ont entre autre

conduit au modèle “Finite Range Drop Model” de Los-Alamos, encore utilisé de nos jours [M⁺95].

Cependant, il est loin de reproduire les résultats expérimentaux. Il prédit en effet une probabilité de fission asymétrique très importante pour tous les noyaux, alors que l’on sait que la plupart des noyaux fissionnent de préférence de façon asymétrique.

Les insuffisances de ce modèle proviennent en fait d’effets liés à la structure en couche des noyaux. Comme nous allons le voir dans la section qui suit, le modèle qui incorpore au modèle de la goutte liquide les effets de structure est le modèle de Strutinsky.

2.2.2 Modèle de Strutinsky

Comme nous venons de le voir, le modèle de Strutinsky est en fait une extension du modèle de la goutte liquide. Il incorpore dans ce dernier les effets de la structure en couche des nucléons dans la description du noyau. Ces effets de couche sont la conséquence directe de l’existence de nombres “magiques” de nucléons dans certains noyaux, existence qui s’explique dans les travaux de Haxel, Jensen et Suess [H⁺], et dans ceux de M. G. Mayer [M⁺49] en supposant que dans le noyau les nucléons évoluent dans un potentiel moyen comme des particules indépendantes. Cette structure en couche se modifie en fonction de la déformation du noyau et explique notamment pourquoi la plupart des noyaux adoptent une forme déformée plutôt qu’une forme sphérique (*rappelons que le modèle de la goutte liquide implique un état d’équilibre sphérique*). Ces effets ont également des conséquences sur différentes propriétés nucléaires, et en particulier sur l’énergie de liaison des noyaux, puisqu’un noyau comportant un nombre de protons et/ou de neutrons magiques sera plus comparativement plus lié que ces voisins.

Pour remédier à cette défaillance, Strutinsky propose en 1968 une méthode simple pour prendre en compte les effets de structure dans l’énergie de liaison et de déformation des noyaux. Pour cela, le noyau est considéré comme une goutte liquide incompressible et chargée, à l’exception des nucléons des couches supérieures. C’est pour cela que l’on parle d’un modèle microscopique-macroscopique.

L’énergie totale d’un noyau à N particules s’écrit alors comme la somme de deux composantes :

$$E = E_{LDM} + \tilde{E} \quad (2.2)$$

E_{LDM} représente l’énergie du noyau calculée selon le modèle de la goutte liquide

\tilde{E} , la composante oscillante qui relève de la correction de couche.

$$\text{Modèle à une particule : } \tilde{E} = E_{1p} - \overline{E_{1p}}$$

où $E_{1p} = \sum_{i=1}^N \epsilon_i$, la somme des énergies à une particule du système réel et $\overline{E_{1p}}$ la somme des énergies à une particule d’un système fictif équivalent dans lequel le spectre à une particule ne présentent pas d’effet de couche.

Soient $g(\epsilon)$ et $\bar{g}(\epsilon)$ les densité de niveau à une particule des systèmes réels et fictifs, alors :

$$\tilde{E} = \int_{-\infty}^{\mu} \epsilon g(\epsilon) d\epsilon - \int_{-\infty}^{\bar{\mu}} \epsilon \bar{g}(\epsilon) d\epsilon \quad \text{avec} \quad g(\epsilon) = \sum_{i=1}^{\infty} \delta(\epsilon - \epsilon_i)$$

$$\int \epsilon g(\epsilon) d\epsilon = \int_{-\infty}^{\bar{\mu}} \epsilon \bar{g}(\epsilon) d\epsilon = N$$

μ et $\bar{\mu}$ les potentiels chimiques des deux systèmes.

La densité de niveaux g est connue (énergie propre d'un hamiltonien à un corps).

Pour obtenir la densité de niveaux \bar{g} Strutinsky propose de l'obtenir en "lissant" uniformément la densité g , par exemple en convoluant g avec une gaussienne normalisée :

$$\bar{g}(\varepsilon) = \int \frac{e^{-(\varepsilon-\varepsilon')^2/\gamma^2}}{\gamma\sqrt{\pi}} g(\varepsilon') d\varepsilon'$$

La prise en compte des effets de couches dans l'étude de la fission des noyaux a permis de mettre en évidence des barrières de fission à deux bosses, qui expliquent l'existence d'isomères de fission, figure 2.3.

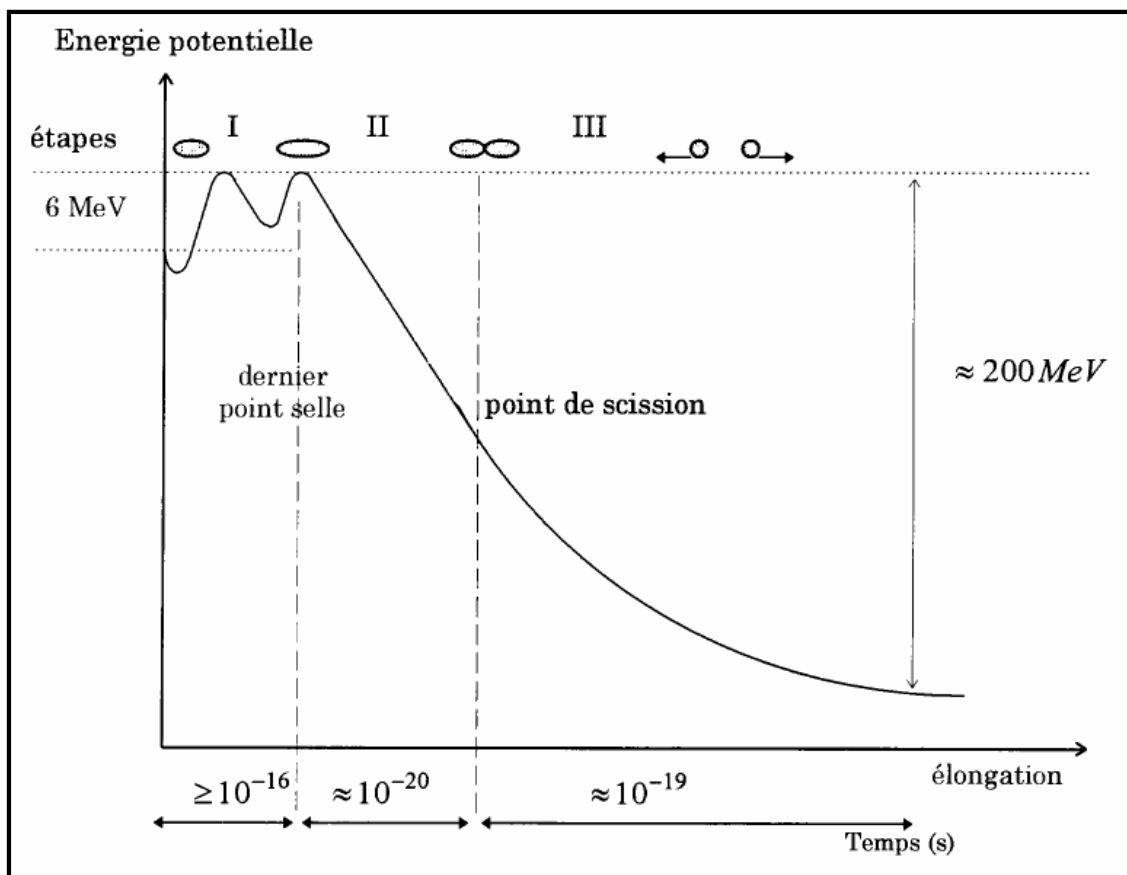


FIG. 2.3 – Barrière de fission pour un noyau d'actinide, [Wag91].

2.2.3 Modèle de Wilkins

Le modèle de Wilkins, aussi connu sous le nom de *modèle thermodynamique du point de scission*, est un modèle qui permet de déterminer la distribution des fragments de fission en fonction de leur énergie potentielle au point de scission. Il s'appuie sur l'hypothèse forte d'un état de quasi-équilibre du système au niveau du point de scission, imposant ainsi au processus de fission d'être un processus lent et supposant une faible dissipation de l'énergie. Le terme d'"état de quasi-équilibre" signifie qu'il existe un équilibre entre les degrés de liberté collectifs des fragments naissants et les degrés de liberté individuels. Dans

ce modèle, les distributions en masse des fragments de fission sont supposées se déterminer entièrement au point de scission. Une fois ce point dépassé, plus aucune interaction n'existe entre les deux fragments. De la même manière, ce qui c'est passé entre le point selle et le point de scission n'a eu aucune influence sur les rendements des fragments, tout étant décidé au moment de la scission. Au moment de la scission, les fragments sont décrits

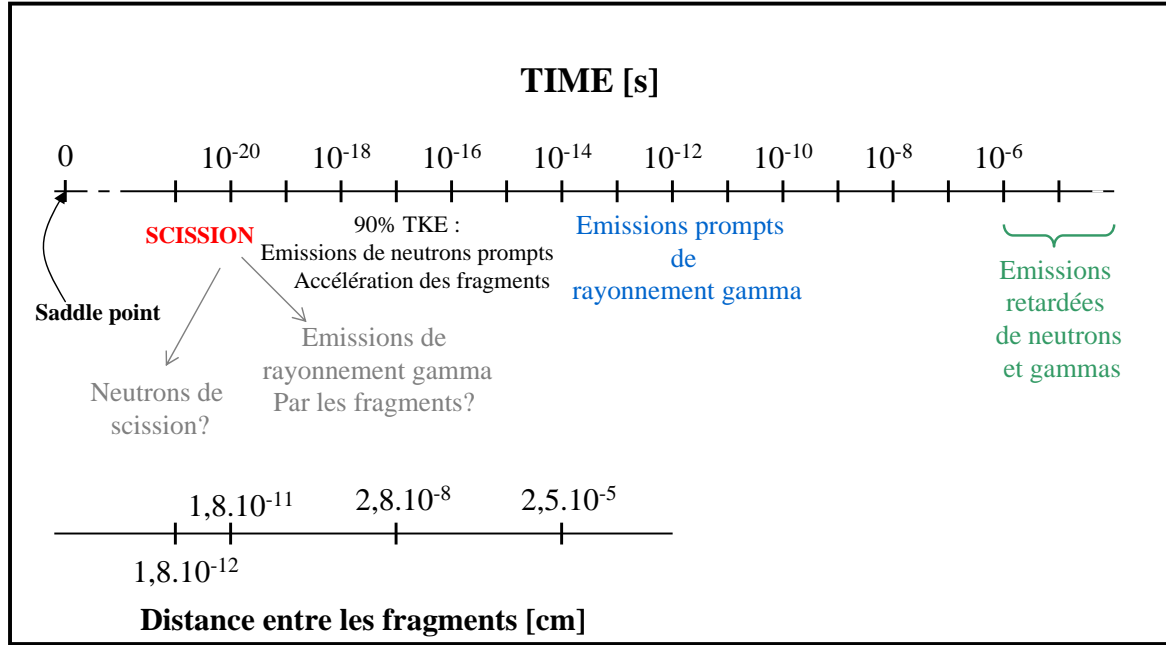


FIG. 2.4 – Echelle de temps pour le processus de fission, [Wag91].

comme deux sphéroïdes coaxiaux de déformations β_1 et β_2 séparées par une distance d et soumis à une influence mutuelle. L'énergie potentielle totale de ce système au point de scission est alors la somme de l'énergie potentielle de chaque fragment à laquelle s'ajoute un terme d'énergie coulombienne et d'énergie nucléaire :

$$\begin{aligned}
 V(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, \tau, d) = & \\
 \sum_{i=1}^2 V_{LDM_i}(N_i, Z_i, \beta_i) + S_i(N_i, \beta_i, \tau) + S_i(Z_i, \beta_i, \tau) + P_i(N_i, \beta_i, \tau) + P_i(Z_i, \beta_i, \tau) & \\
 + V_c(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) & \\
 + V_n(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) & \quad (2.3)
 \end{aligned}$$

Energie potentielle pour chaque fragment :

V_{LDM} , terme collectif calculé d'après le modèle de la goutte liquide en fonction de la déformation des fragments,

S , terme de correction des effets de couches calculé en fonction de la méthode de Jensen [J⁺73]. La méthode de Strutinsky n'est en effet pas directement applicable à notre cas puisqu'elle implique une température intrinsèque nulle.

P , terme de parités des nucléons pour chaque fragment. Ce terme, relatif à l'énergie dite de pairing, est calculé à partir de la méthode de Moretto [Mor72].

Interaction coulombienne, donnée par $V_c = \frac{Z_1 Z_2 e^2 F}{D}$. F , le facteur de forme, représente la différence entre l'interaction coulombienne de deux sphéroïdes uniformément chargés et celle de deux charges ponctuelles séparées par un distance D .

Interaction nucléaire V_n , décrit les interactions entre les deux sphéroïdes. Calculée par Krappe [K⁺73].

Dans ce modèle, la fragmentation la plus probable correspond à celle qui minimise l'énergie potentielle (eq. 2.3) au point de scission. Les probabilités relatives des différentes configurations des fragments de fission sont données à partir du facteur de Boltzman :

$$P(N, Z, \tau, d) = \int_{\beta_1=0}^{\beta_{max}} \int_{\beta_2=0}^{\beta_{max}} e^{-\frac{V(N,Z,\beta,\tau,d)}{T_{coll}}} d\beta_1 d\beta_2$$

Le couplage entre les excitations collectives est représenté par le terme T_{coll} . Cette température caractérise l'équilibre entre les degrés de liberté de collectifs, et a pour valeur 1 MeV pour toutes les fragmentations de tous les systèmes fissionnants à basse énergie. De la même manière est définie une température intrinsèque T_{int} qui détermine la population des niveaux de particules individuels. Wilkins lui a donné la valeur de 0,75 MeV dans le but de reproduire la dépendance des distributions par rapport à l'énergie d'excitation. Pour faciliter les calculs, ces deux températures sont considérées comme constantes.

Ainsi, comme le modèle de Wilkins considère un couplage intermédiaire entre les degrés de liberté des états purement collectifs et de ceux purement individuels, les valeurs de ces deux températures peuvent être prises constantes, mais différentes ($T_{coll} = T_{int}$: équilibre statistique) avec impérativement $T_{int} \neq 0$ (modèle adiabatique).

La figure 2.5 compare les rendements en masse du Polonium jusqu'au Fermium calculés pour le modèles de Wilkins avec des résultats expérimentaux. Même si ce modèle ne cherche pas à ajuster ses différents paramètres en fonction des valeurs expérimentales, on peut toutefois remarquer sur la figure 2.5 que l'allure générale des distributions en masse est bien reproduite. On peut en effet constater que ce modèle reproduit par exemple très bien la stabilité du pic lourd autour de la masse 140 (fermeture de couche : N=82, Z=50). Il en va de même pour les distributions en charge et en énergie cinétique moyenne. En revanche, les structures plus fines ne le sont pas bien évaluées. Les rendements calculés présentent des distributions trop étroites et les positions des pics asymétriques ne sont pas toujours exactes. De même, le rapport pic/vallée est sous-estimé. Les erreurs des corrections de couches ainsi que des valeurs de déformations multipolaires pas assez précises dans les ordres de calcul, ou bien encore les incertitudes sur les paramètres du modèle de la goutte liquide affectent directement la position des pics légers et lourds des fragments de fission. En revanche, une mauvaise estimation des paramètres d et T_{coll} vont avoir une influence directe sur les largeurs des distributions, et par conséquent également sur les rapports pic/vallée.

Cependant, malgré ces défauts, le modèle de Wilkins reste encore aujourd'hui le modèle le plus utilisé pour prédire les distributions des fragments de fission.

2.2.4 Microscopique

2.2.4.1 "Finite range liquid-drop model"

Dans ce modèle développé au Laboratoire National de Los Alamos par Peter Möller [M⁺01b], le noyau est considéré de façon macroscopique-microscopique comme étant une goutte liquide à laquelle viennent s'ajouter des corrections de couches [M⁺95, M⁺89]. La surface d'énergie potentielle est décrite selon cinq paramètres : l'élongation (Q_2), l'asymétrie de masse ($\alpha_g = \frac{M_1 - M_2}{M_1 + M_2}$, avec M_1 et M_2 les masses des fragments naissants), les déformations des fragments gauche et droit (ε_1 et ε_2 respectivement), et le diamètre du cou (d), figure 2.6. Dans cette étude, le noyau fissionnant évolue entre dans configurations limites qui correspondent la première à l'état fondamental du noyau et la seconde à la scission de celui-ci représentée par deux fragments adjacents.

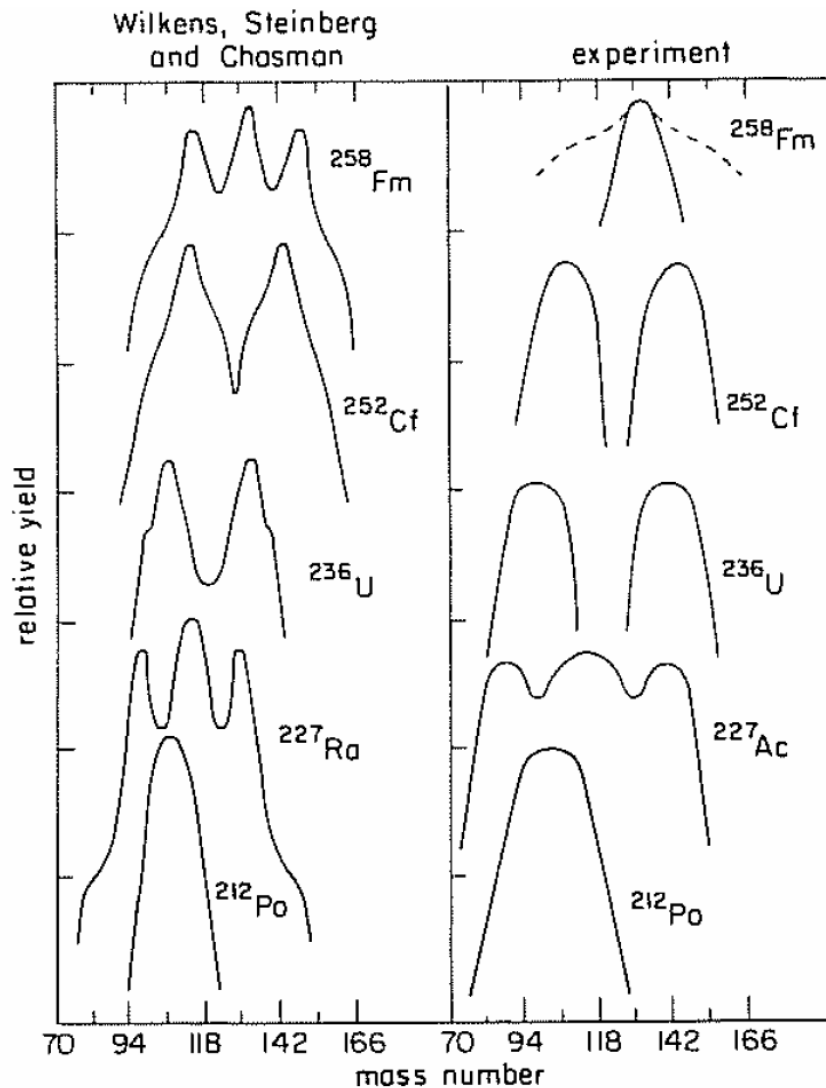


FIG. 2.5 – Distributions en masse pour la fission thermique calculée par le modèle de Wilkins à gauche et données expérimentales à droite, [Poe97].

Dans le paysage énergétique à cinq dimensions du noyau fissionnant, le point de scission qui correspond au col le plus bas est difficile à déterminer. Comme les algorithmes numériques utilisés couramment pour minimiser des surfaces à deux dimensions ne sont plus performants pour un tel cas, la méthode alors utilisée consiste à remplir d'eau la surface d'énergie potentielle [M⁺00, M⁺98]. En répétant plusieurs fois ce mode opératoire de plus en plus rigoureusement grâce aux résultats précédents, le point de scission peut être déterminé très précisément.

2.2.4.2 Modèle de Bruyères-le-Châtel

Le modèle de fission développé au CEA de Bruyères-le-Châtel est un modèle qui tend à reproduire les distributions en masse des fragments de fission, les corrections de pairs, l'énergie de déformation des fragments, l'émission des neutrons prompts ainsi que les énergies cinétiques des fragments avant et après émission des neutrons prompts pour la fission à basse énergie [G⁺04].

Pour cela, la fission est décrite à l'aide d'un formalisme microscopique et dépendante du

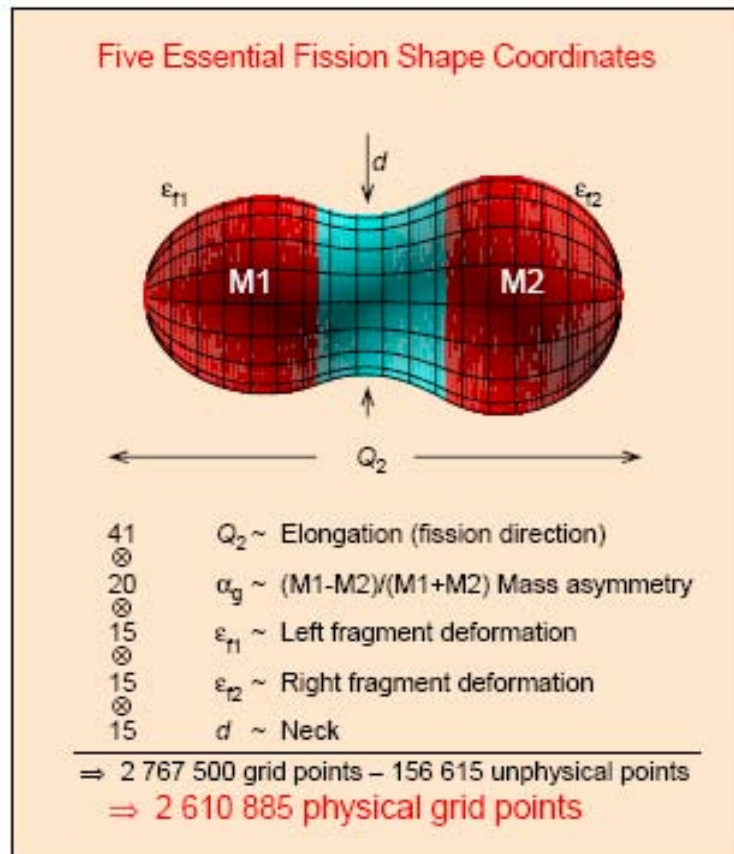


FIG. 2.6 – Paramétrisation d'un noyau selon les cinq paramètres du "finite range liquid-drop model" [M⁺01a].

Les différentes couleurs indiquent les trois différentes surfaces prises en compte dans les calculs.

Les croix cerclées indiquent la multiplication du nombre de points de chacun des cinq espaces à une dimension, le résultat étant égal à 2 767 500 points à considérer sur la grille. Cependant, un certain nombre de ces points correspondent à des cas non-physique, ils sont au nombre de 156 615, ce qui implique au final la prise en compte de 2 610 885 points physique sur la grille.

temps [B⁺84].

Dans un premier temps, la surface d'énergie potentielle du noyau fissionnant entre le premier puit de potentiel et le point de scission est déterminée en fonction des degrés de liberté de déformation (variables collectives q_{20} pour exprimer l'élongation et q_{30} pour l'asymétrie). Celle-ci est déterminée par des calculs Hartree-Fock-Bogoliubov avec la force effective de Gogny [B⁺91a]. La figure 2.7 montre la surface d'énergie potentielle d'un noyau d'²³⁸U calculée avec cette méthode.

Un traitement dynamique de la fission selon la méthode de la coordonnée génératrice dépendante du temps à l'approximation du recouvrement gaussien (TGGCM + GOA) est ensuite effectué. Cette méthode permet de simplifier la séparation des variables collectives et intrinsèques dans la résolution des équations de Schrödinger [Soy71].

Ce modèle présente le grand avantage de proposer un traitement dynamique de la fission, et même si il est encore aujourd'hui loin de reproduire les rendements de fission de nombreux actinides, il reste un modèle très prometteur.

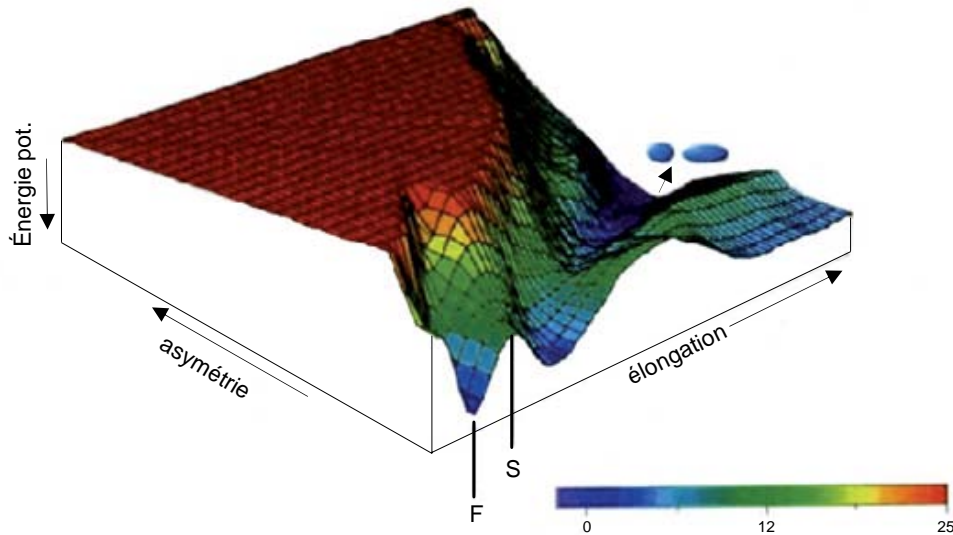


FIG. 2.7 – Surface d’énergie potentielle calculée pour un noyau d’ ^{238}U selon le modèle de Bruyères-le-Châtel [G⁺05].

2.2.5 Modèle de Brosa

Le “*multi-modal random neck-rupture*”, ou modèle de Brosa, introduit en 1989 par U. Brosa, S. Grossmann et A. Müller se veut de reproduire les distributions en masse dans le cas de la fission d’un noyau composé après absorption d’un neutron de faible énergie [B⁺83, B⁺88b]. Pour cela, les variations de l’énergie potentielle par rapport à la déformation du système sont calculées de son état fondamental jusqu’au point de scission, où le noyau y est vu comme deux proto-fragments, c’est à dire considérés avant l’émission des neutrons prompts.

Le noyau composé est décrit comme une goutte liquide à 5 paramètres dans la représentation de Lawrence (figure 2.8), avec pour coordonnées cylindriques :

$$\rho^2(\zeta) = (l^2 - \zeta^2) \sum_{n=0}^N a_n (\zeta - z)^2 \quad (2.4)$$

L’énergie de déformation de ce système est calculée comme étant la somme d’un terme provenant du modèle de la goutte liquide auquel vient s’ajouter les corrections du modèle en couche de Strutinsky :

$$E_{def} = E_{LDM} + E_{shell} \quad (2.5)$$

U. Brosa a utilisé le modèle de Myers-Swiiatecki [Mye66] pour calculer le terme E_{LDM} , ainsi que le potentiel à une particule de Wood-Saxon pour effectuer les corrections sur les couches. Dans ce paysage énergétique, le chemin de fission est défini comme étant les trajectoires d’énergie minimum qui relient l’état fondamental du noyau au point de scission. Cependant, le long de cette trajectoire apparaissent des points de bifurcation qui permettent au noyau, de par l’hypothèse de rupture aléatoire du col, d’emprunter plusieurs chemins différents. Ceci implique l’existence de plusieurs formes de déformation pouvant toute conduire à la fission du noyau. Les rendements sont alors déterminés par la somme de ces différentes contributions pondérées par leur rapports d’embranchement. U. Brosa a mis en évidence trois principaux modes pour décrire la fission de la plupart des noyaux. Les modes **standard I** et **standard II** symbolisent des modes de fission asymétrique. Le mode **standard I** est, pour le pic lourd avant émission de neutrons prompts, représenté

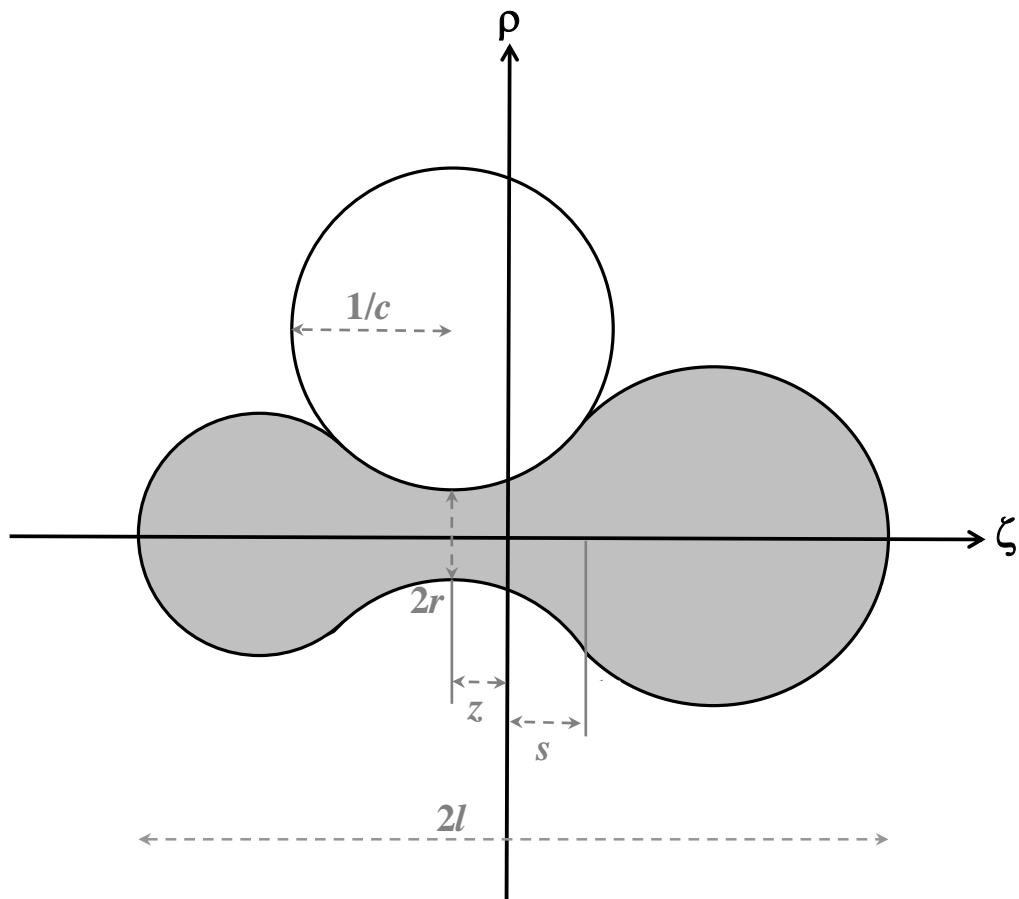


FIG. 2.8 – Représentation d'un noyau selon les paramètres de Lawrence. La moitié de la longueur du noyau est notée l , r correspond au rayon du cou, z à sa position et c à sa courbure. La position du centre de masse est indiquée par la distance $axep/s$.

par une gaussienne centrée sur le noyau, relativement sphérique, de masse $A = 132$, ce qui correspond à la fermeture de couche $Z = 50$ et $N = 82$. Le pic léger sera donc quant à lui centré sur la masse complémentaire de la masse 132 pour le système fissionnant considéré C'est un mode dit à haute énergie cinétique, contrairement au mode **standard II** qui favorise les fissions de faible énergie. La gaussienne du pic lourd correspondante à ce mode est piquée autour des noyaux qui possèdent un nombre de neutrons $N = 88$. Plus l'énergie cinétique des fragments augmente et plus la contribution des termes de corrections de couches diminue. C'est pourquoi les fissions symétriques, décrites par le mode dit **Super-long**, sont calculées quasiment exclusivement par le modèle de la goutte liquide. De la même manière, les distributions en énergie cinétique moyenne sont calculées comme étant la somme de la contributions de ces différents modes. La figure 2.9 donne un exemple de valeurs expérimentales pour la distribution des fragments de fission de la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ comparées à la distribution déterminée par le modèle de Brosa.

Ainsi, les calculs de ce modèle permettent de prédire les formes générales des distributions en masse mais non les structures fines qui les caractérisent.

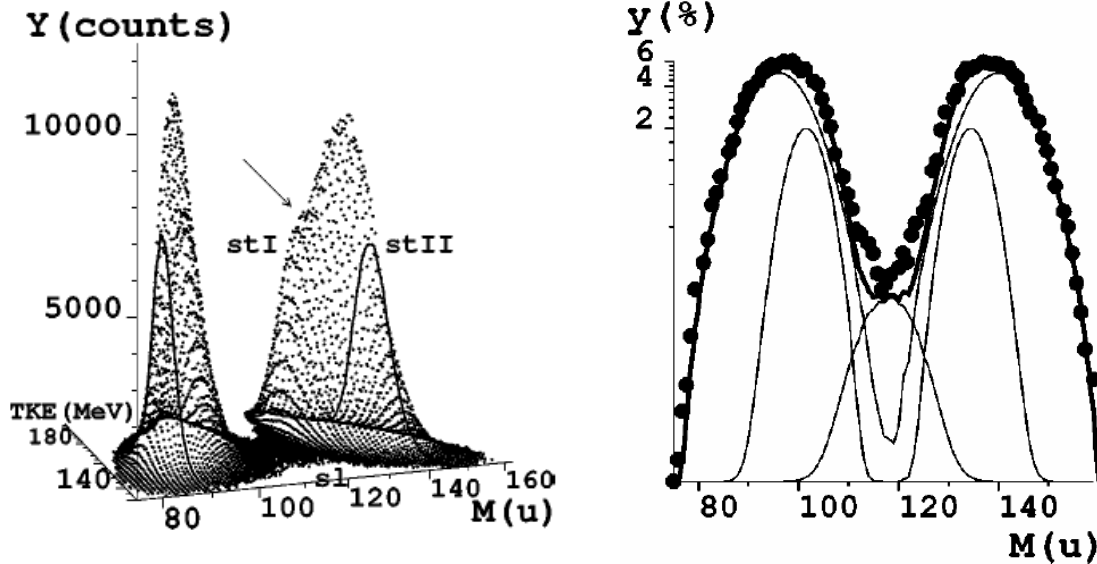


FIG. 2.9 – Rendements des fragments de fission pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ avec les modes standard I, standard II et superlong représentés par les courbes continues en noir [B⁺99].

2.2.6 Modèle de Wahl

Depuis sa découverte en 1939, la fission a été l'objet de nombreuses études et les distributions en masse et charge nucléaire d'un grand nombre de noyaux ont été mesurées. Tous ces résultats ont permis de mettre en exergue certaines propriétés redondantes de la fission nucléaire, dont les principales sont énumérées ci-dessous :

- La fission reste dans la plupart des cas un processus binaire, c'est à dire que le système fissionnant se divise uniquement en deux fragments. Cependant, la fission ternaire n'est pas totalement négligeable puisqu'elle représente 2 à $3 \cdot 10^{-3}$ de la fission binaire. Dans 90% des cas, le troisième fragment se révèle être une particule α . C'est seulement dans un peu plus de 7% des cas de la fission ternaire que l'on trouve un troisième noyau plus lourd.
- Le rapport N/Z est pratiquement conservé entre le noyau fissionnant et les fragments. Néanmoins, comme les fragments de fission sont beaucoup plus légers que le noyau père, ils vont venir peupler la zone des noyaux très riches en neutrons, ayant en moyenne un excédent de 6 neutrons par rapport à leur isotope le plus stable.
- Enfin, la fission des actinides est une réaction exothermique. Si on définit la chaleur de réaction Q comme étant la différence de masse entre le noyau fissionnant et la somme des fragments de fission après désexcitation, et E^* l'énergie totale d'excitation du noyau père, alors l'énergie libérée au cours de la fission est $E = Q + E^*$. Elle est de l'ordre de 180 à 240 MeV, et se répartie essentiellement de la façon suivante :
 - 75% à 85%, soit 140 à 200 MeV, en énergie cinétique des fragments,
 - environ 10%, soit 20 à 25 MeV, par l'émission des neutrons prompts,
 - environ 4%, soit 7 à 10 MeV, au cours de l'émission des gamma prompts,
 - environ 8%, soit 15 à 20 MeV, par des processus dits retardés : décroissances β des produits de fission excédentaires en neutrons pour rejoindre la vallée de la stabilité, parfois accompagnés d'émissions de neutrons retardés.

Partant de toutes ces données, A. Wahl a développé autour des années 90 deux modèles cherchant, l'un, à prédire les distributions en charge nucléaire, le modèle Z_p [Wah88], et l'autre à prédire les distributions en masse, le modèle A'_p .

Modèle Z_p

Pour un noyau de masse A et de charge nucléaire Z , la méthode Z_p consiste à calculer les rendements indépendants par la formule :

$$Y_Z(A, Z) = \frac{1}{2} F(A) \cdot N(A) \cdot [erf(V) - erf(W)] \quad (2.6)$$

erf étant la fonction erreur définie par : $erf(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$

Les termes V et W représentent des distributions en charges nucléaires gaussiennes de largeur σ_Z et de maximum Z_p :

$$\begin{cases} V = \frac{Z(A) - Z_p(A) + 0,5}{\sigma_Z(A) \sqrt{2}} \\ W = \frac{Z(A) - Z_p(A) - 0,5}{\sigma_Z(A) \sqrt{2}} \end{cases} \quad (2.7)$$

Dans ce modèle, les données évaluées des rendements pour les pics légers et lourds sont analysées par la méthode des moindres carrés. Pour une masse A donnée, la distribution des charges nucléaires est représentée par une gaussienne. Les valeurs ainsi obtenues sont comparées aux valeurs calculées avec l'hypothèse de la conservation de la densité de charge (méthode UCD) :

$Z_{UCD} = A' \left(\frac{Z_{noy.fis}}{A_{noy.fis}} \right)$, A' signifiant qu'il s'agit de la masse primaire du fragment avant l'émission des neutrons prompts.

On aura de même pour les masses :

$A'_{UCD} = Z \left(\frac{A_{noy.fis}}{Z_{noy.fis}} \right)$, l'indice "*noy.fis*" signifiant qu'il s'agit du noyau fissionnant.

On obtient ainsi les équations suivantes, avec les indices H et L qui signifient que l'on considère tantôt le fragment lourd (*Heavy*), tantôt le fragment léger (*Light*) :

$$\Delta Z = (Z_p - Z_{UCD})_H = (Z_p - Z_{UCD})_L \quad (2.8)$$

et de même pour les masses :

$$\Delta A' = (A'_p - A'_{UCD})_H = (A'_p - A'_{UCD})_L \quad (2.9)$$

Les valeurs de $Z_p(A)$ sont calculées d'après l'équation 2.8.

Le coefficient $F(A)$ quant à lui permet d'introduire les corrections dues aux effets de parité entre le nombre de protons et de neutrons qui sont la cause de variations locales par rapport à la gaussienne initiale. Ses valeurs qui dépendent donc de la parité des nucléons sont données dans le tableau 2.1.

proton	neutron	F(A)
pair	pair	$\overline{F}_Z \cdot \overline{F}_N$
pair	impair	$\overline{F}_Z / \overline{F}_N$
impair	pair	$\overline{F}_N / \overline{F}_Z$
impair	impair	$(\overline{F}_Z \cdot \overline{F}_N)^{-1}$

TAB. 2.1 – Valeurs de F(A) selon la parité des neutrons et des protons.

Isotopes	\bar{F}_Z	\bar{F}_N
$^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$	1,26	1,07
$^{235}\text{U}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1,15	1,05
$^{238}\text{U}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1,10	1,05
$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$	1,07	1
$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1	1
$^{232}\text{Th}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1,25	1,08
$^{233}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$	1,30	1,07
$^{233}\text{U}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1,10	1,05
$^{240}\text{Pu}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1	1
$^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$	1	1
$^{241}\text{Pu}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1	1
$^{242}\text{Pu}(\text{n}_{rap},\text{f})$	1	1

TAB. 2.2 – Tableau récapitulatif des valeurs de \bar{F}_Z et \bar{F}_N prises pour 12 systèmes fissiles étudiés [N⁺83].

Avec \bar{F}_Z le facteur correctif de parité pour les protons, et \bar{F}_N celui pour les neutrons. Un exemple de leurs valeurs est donné dans le tableau 2.2.

$N(A)$ est un facteur de renormalisation qui est différent de 1 lorsque $F(A)$ est lui-même différent de 1.

C'est la méthode des moindres carrés qui détermine la valeur de tous les paramètres de ce modèle : ΔZ , $\sigma Z(A)$, \bar{F}_N , \bar{F}_Z , ...

Modèle A'_p

Les équations de ce modèle sont de la même formes que celles du modèle précédent, mais considèrent les distributions de masse autour d'une valeur moyenne de A :

$$Y_N(A, Z) = \frac{1}{2} Y(Z) F_N(Z) \cdot N(Z) \cdot [\text{erf}(VA) - \text{erf}(WA)]$$

On remarque que la valeur de $Y(Z)$ est nécessaire au calcul des rendements en masse alors qu'elle ne l'était pas pour les rendements isotopiques. Elle doit être la même pour tous les produits de fission complémentaires ($Z_H + Z_L = Z_{\text{noy.fis}}$).

Les équations du système 2.7 deviennent dans ce cas :

$$\begin{cases} VA = \frac{A'(Z) - A'_p(Z) + 0,5 + \delta}{\sigma_{A'}(Z) \sqrt{2}} \\ WA = \frac{A'(Z) - A'_p(Z) - 0,5 - \delta}{\sigma_{A'}(Z) \sqrt{2}} \end{cases} \quad (2.10)$$

Pour ce modèle, le terme de correction des effets de paires $F_N(Z)$ ne prend en compte que la parité des neutrons. Il est égal à \bar{F}_N dans le cas d'un nombre pair de neutron, et à $1/\bar{F}_N$ pour le cas contraire.

Ainsi que dans le modèle précédent, un terme de normalisation $N(Z)$ est nécessaire pour obtenir les rendements des deux fragments complémentaires égaux, puisque le terme correctif qui est associé à la correction des effets de parité change la normalisation des gaussiennes.

2.3 Méthode de mesures de rendements

A défaut de disposer de modèles prédictifs fiables, et devant l'important besoin de données nucléaires, un grand nombre de mesures ont été entreprises pour déterminer les propriétés de la fission nucléaire. C'est dans ce cadre qu'ont été menées, depuis sa découverte jusqu'à nos jours, de nombreuses expériences entre autre pour déterminer les rendements des produits de fission d'un grand nombre d'actinides. Loin d'être exhaustive, précise et certaine, et face aux demandes de plus en plus pointues, que ce soit pour la production d'énergie ou pour la validité des modèles théoriques, notre connaissance de ces rendements de fission souffre encore maintenant d'un certain nombre d'imperfections. C'est pourquoi même aujourd'hui, malgré toutes les mesures déjà entreprises se développent de nouvelles expériences de plus en plus perfectionnées.

2.3.1 Mesures de radiochimie

La détermination par radiochimie des rendements de fission est la méthode la plus ancienne pour ce type de mesure [Poe97]. Son principe est simple, puisqu'il suffit de dissoudre un échantillon de matière fissile irradié afin de pouvoir mesurer à l'aide de détecteurs (Si ou Ge) les rayonnements γ et β des produits de fission émis lors de leurs désexcitations. Cependant, cette méthode reste tributaire de la connaissance en cours des propriétés des isotopes. En effet, il est nécessaire de connaître les temps de vie, les énergies de désexcitation et les rapports d'embranchement des décroissances γ et β de chaque noyau. Mais ce problème reste un des problèmes redondant dans la mesures de rendements, et ce, quelque soit la méthode choisie s'appuyant sur la détection γ ou β .

De plus, la mesure des noyaux non émetteurs de γ ou de β émis par la fission est invivable, puisqu'ils n'émettent aucun rayonnement.

Mais le principal problème de ce type de méthode réside dans les limitations dues aux temps de traitement, puisque l'inventaire de tous les noyaux demande beaucoup de temps. Ains, seuls les rendements cumulés peuvent être mesurés, auxquels viennent s'ajouter les rendements de réactions (n,γ) indésirables dont la probabilité croît avec le temps de mesure.

Cette méthode a aussi pour limitations des contraintes chimiques, comme la facilité ou non à dissoudre correctement tout l'échantillon. Ainsi certains isotopes sont plus difficiles à être séparés que d'autres.

Enfin, une mesure absolue des produits de fission n'est pas possible, et la principale cause des incertitudes vient de la normalisation des rendements.

Cependant, la mesure des rendements massiques et isotopiques des produits de fission par cette méthode reste relativement précise et judicieuse dans un grand nombre de cas et est encore aujourd'hui très utilisée.

De plus, les récentes méthodes de détermination des rendements par radiochimie rapide permettent de passer outre un grand nombre de ces inconvénients.

2.3.2 Mesures par activation

Cette méthode présente deux avantages majeurs. Le premier est qu'elle n'a besoin que de peu de matière fissile, elle est donc très intéressante pour l'étude des noyaux exotiques. Le second est qu'elle ne nécessite pas des temps de mesure très longs pour déterminer les rendements.

L'échantillon de matière fissile est irradié pendant un certain temps, puis les γ qui sont émis au cours de la désintégration des produits de fission sont mesurés. Cette opération est ensuite répétée plusieurs fois en faisant varier les temps d'irradiation de l'échantillon

[Poe97].

Cette méthode permet de déterminer les rendements indépendants des produits de fission, cependant, comme pour la détermination des rendements par radiochimie, elle reste tributaire des connaissances des caractéristiques des noyaux. De plus, elle nécessite, pour la mesure des faibles rendements, une séparation chimique au préalable.

Même si les incertitudes associées aux résultats de cette méthode ne peuvent être inférieure à 10%, les mesures par activation sont toujours très répandues.

2.3.3 Mesures par chambre à fission

Ces mesures permettent d'évaluer les rendements de fission et les énergies cinétiques des fragments avant l'émission des neutrons prompts.

Pour la fission de basse énergie, la loi de conservation des moments peut s'écrire de la forme suivante :

$$m_1.v_1^* = m_2.v_2^* \quad \text{soit : } m_1.E_1^* = m_2.E_2^*$$

avec m_1 et m_2 , v_1^* et v_2^* , et E_1^* et E_2^* la masse, la vitesse et l'énergie cinétique des fragments de fission 1 et 2 avant l'émission des particules prompts.

Soit $m_1 + m_2 = m_F$ avec m_F la masse du noyau fissionnant, connue. La mesure de la vitesse des fragments, ou de leur énergie cinétique, permet de calculer leur masse respective.

L'énergie des fragments peut être mesurée à l'aide d'un détecteur à barrière de surface où une chambre à ionisation, alors que leur vitesse est déterminée par des mesures de temps de vol. Que ce soit dans un cas comme dans l'autre, il est nécessaire pour ces mesures d'utiliser cibles très fines afin d'altérer au minimum l'énergie initiale des fragments.

Une partie de l'énergie totale des fragments est dissipée par l'évaporation des neutrons prompts. Le nombre moyen de neutrons évaporés ($\bar{\nu}$) dépend de la masse du fragment de fission A^* , de son énergie d'excitation et de l'énergie cinétique totale (TKE) [B⁺85] (équation 2.11).

$$\nu(A, TKE) = \bar{\nu}(A) + \frac{\bar{\nu}(A)}{\bar{\nu}(A) + \bar{\nu}(A_{cn} - A)} \cdot \frac{\langle TKE(A) \rangle - \langle TKE \rangle}{E_{sep}} \quad (2.11)$$

$E_{sep} = 8,6 \text{ MeV}$, elle correspond à l'énergie nécessaire par les fragments pour émettre un neutron [B⁺09].

L'énergie du produit de fission après l'évaporation d'un neutron prompt est donnée par l'équation 2.12.

$$E_{lab} = \frac{m E_{lab}^*}{m^*} + \frac{m_n E_{CM,n}}{m} - 2\sqrt{\frac{m_n E_{CM,n} E_{lab}}{m}} \cos\theta_{CM,n} \quad (2.12)$$

$\theta_{CM,n}$ représente d'émission du neutron rpar rapport à la trajectoire des fragments de fission dans le référentiel du centre de masse (CM).

Si l'on considère les neutrons sont émis isotropiquement dans ce référentiel, alors $\langle \theta_{CM,n} \rangle = 0$.

Le terme $\frac{m_n}{m} E_{CM,n}$ peut être négligé par rapport à la valeur de l'énergie E_{lab} , puisque pour l'évaporation typique d'un neutron de 3 MeV $\frac{m_n}{m} E_{CM,n} = 0,03 \text{ MeV}$, alors que $E_{lab} \sim 100 \text{ MeV}$.

Au vue de ces approximations, l'énergie des fragments de fission avant évaporation des neutrons prompts dans le référentiel du laboratoire est donnée par l'équation 2.13.

$$E_{lab}^* = \frac{A^*}{A^* - \nu(A, TKE)} E_{lab} \quad (2.13)$$

Les expériences qui s'appuient sur la mesure de la vitesse des produits de fission pour déterminer les rendements sont en général plus précises que celles qui mesurent leur énergie cinétique, car contrairement à ces dernières elles ne sont pas affectées par la perte d'énergie des fragments de fission suite à l'évaporation des neutrons prompts.

Ce type de mesures présente l'avantage considérable de pouvoir déterminer, au cours d'une seule expérience, toute la distribution des fragments de fission avant émission des neutrons prompts. Elles donnent de cette manière des résultats qui peuvent être directement comparés aux valeurs calculées par les modèles de fission.

2.3.4 Mesures par spectrométrie de masse

C'est le principe de séparation du spectromètre de masse Lohengrin, spectromètre qui est aujourd'hui l'instrument qui représente le mieux ce type de mesure. Son principe de fonctionnement sera développé de manière plus approfondie dans le *chapitre 3*.

Soumis à un flux de neutrons, les atomes d'une cible d'actinide vont fissionner, donnant naissance à, la plupart du temps, deux fragments de fission (la fission binaire représente 99% des cas de fission). A leur sortie de la cible, les produits de fission (l'évaporation des particules prompts ayant eu lieu dans la cible), ionisés, sont émis selon un angle de 180° . Ceux qui sont émis dans la direction du spectromètre vont être déviés grâce aux champs électrique et magnétique de celui-ci. La sélection des produits de fission dépend de la valeur donnée aux champs électro-magnétique.

Si au cours des mesures de rendements par chambre à fission, toutes les masses peuvent être déterminées dans un laps de temps court, en revanche, les mesures sur le Lohengrin sont beaucoup moins directes, et la détermination de la distribution complète d'un système fissionnant est très longue. Les mesures de rendements sur le Lohengrin se concentrent, soit sur la bosse légère, soit sur la partie asymétrique, ou soit sur la bosse lourde de la distribution d'un noyau. Il faut en effet mesurer chaque masse une par une, pour une énergie cinétique et une charge ionique données. La détermination du rendement d'une seule masse demande alors la mesure de cette masse pour toute une combinaison d'énergies cinétiques et de charges ioniques, et cette mesure est à réitérer pour toutes les masses. Cependant, d'un autre côté, ce principe de fonctionnement permet une étude beaucoup plus profonde et précise des distributions en énergie cinétique des masses et des isotopes, et permet du même coup de mettre en évidence des effets physiques directement liés à la réaction de fission nucléaire, qui ne pourraient être étudiés avec d'autres types d'expérience.

2.3.5 Mesures de fission induite par cinématique inverse

Cette nouvelle méthode de mesure a été développée à GSI, Darmstadt [A⁺96, A⁺04, B⁺03, B⁺06b, S⁺00]. Contrairement à la fission induite par neutron, comme par exemple dans le cas du spectromètre Lohengrin, où des neutrons sont projetés sur les noyaux d'une cible d'actinide, c'est l'actinide qui est projeté sur de la matière et qui va fissionner par interaction coulombienne.

Cette technique offre l'avantage d'une très bonne résolution en charge nucléaire, puisque l'énergie cinétique des fragments à laquelle vient s'ajouter vectoriellement l'énergie du projectile leur confère une énergie de l'ordre de 1 GeV/nucléon.

C'est selon ce principe qu'est développé au GSI le nouveau spectromètre de masse dédié à la mesure de rendements de fission via le projet F-Elise.

Chapitre 3

Dispositif expérimental

3.1 L'Institut Laue-Langevin

L'Institut Laue-Langevin est un organisme de recherche international. Sur le site ILL (Institut Laue-Langevin)-ESRF (European Synchrotron Research Facility)-EMBL (European Molecular Biology Laboratory) de Grenoble, France, son réacteur à haut flux se révèle être aujourd'hui la source de neutrons thermiques la plus intense au monde.

Ces trois instituts internationaux constituent un site incontournable pour l'étude de la matière. En effet, les faisceaux d'électrons délivrés par l'ESRF, ainsi que ceux de neutrons fournis par l'ILL, offrent, grâce à divers instruments, de larges possibilités pour sonder la matière.

A ces nombreux instruments de physique de la matière, diffractomètres, spectromètres à temps de vol, à trois axes... s'ajoutent autour du réacteur quelques instruments de physique nucléaire et physique des particules, fig. 3.1. Grâce à des faisceaux de neutrons froids (VCN), et ultra-froid (UCN), l'ILL est le site idéal pour des expériences très pointues en physique fondamentale, comme les expériences GRANIT [N⁺00, N⁺02].

La physique nucléaire, quant à elle, est en grande partie représentée par le spectromètre de masse Lohengrin, dédié à l'étude des produits de fission ainsi qu'à celle des noyaux riches en neutrons. C'est sur cet instrument que toutes les mesures de rendements de fission ont été effectuées, et son principe de fonctionnement est développé au paragraphe 3.3 de ce même chapitre.

Le réacteur en lui-même est un réacteur à eau pressurisée. Il utilise comme caloporteur et modérateur de l'eau lourde. Il fournit environ 5.10^{14} neutrons.cm⁻².s⁻¹ pour une puissance maximale de 58 MW. Le combustible est formé d'un élément unique de 8,56 kg d'Uranium métallique enrichi (²³⁵U à 93%) de 40 cm de diamètre et de 80 cm de hauteur.

Le réacteur fonctionne en alternance selon des cycles de 50 jours suivis par une période d'arrêt de 2 à 3 semaines. Il y a en général 4 cycles par an.

C'est grâce à des éléments supplémentaires, (sources chaudes, froides ou turbines), que les faisceaux des neutrons fournis par l'ILL sont à même de balayer un large spectre en énergie, de qq neV (UCN) à 1 eV.

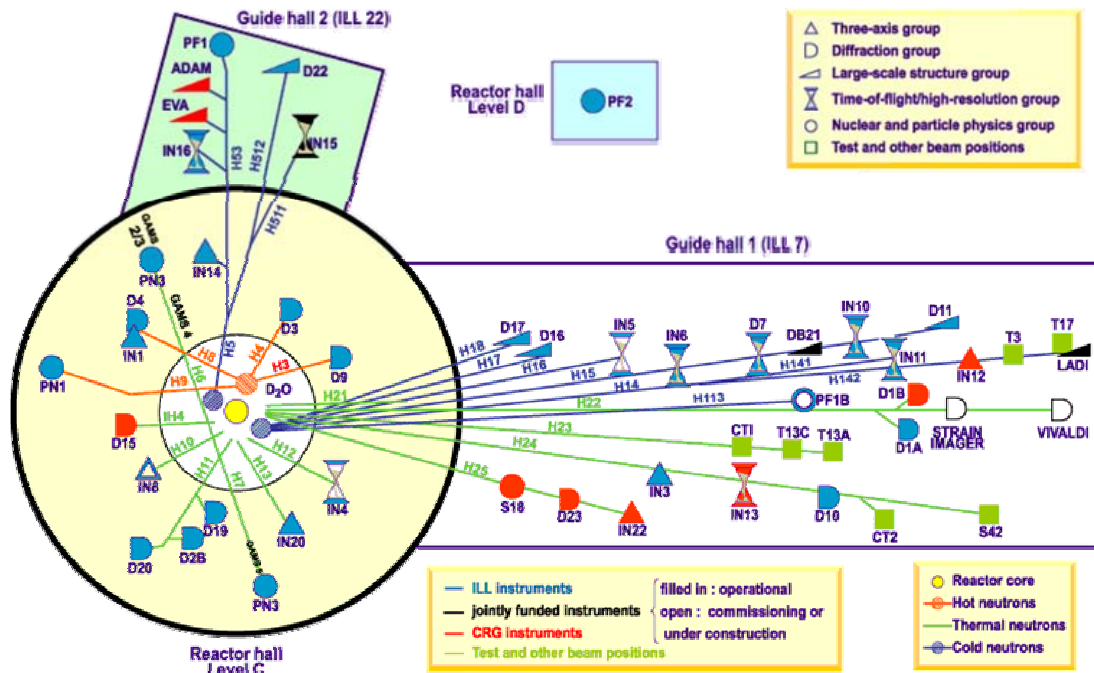


FIG. 3.1 – Vue schématique en coupe de l’Institut Laue-Langevin représentant les lignes de faisceaux de neutrons ainsi que les différents instruments.

3.2 Les cibles

3.2.1 Introduction

Un des problèmes récurrents en physique nucléaire expérimentale, même dans le cadre de projets scientifiques, reste encore aujourd’hui de se procurer des cibles de matière fissile. De plus, les cibles utilisées dans le cadre des expériences sur le spectromètre de masse Lohengrin doivent répondre à plusieurs critères.

Elles doivent dans un premier temps permettre un taux de comptage satisfaisant (quantité de matière suffisante), tout en assurant une faible dispersion en énergie mais elles ont également à satisfaire certaines contraintes géométriques. En effet, elles doivent pouvoir s’emboîter sur le support du chariot du spectromètre (figure 3.2), chariot qui sera ensuite automatiquement placé près du coeur du réacteur, zone où le flux de neutrons est le plus important. Cette opération est effectuée par les techniciens de l’ILL, mais elle nécessite donc au préalable des cibles de forme rectangulaire, de 8,8 cm de long sur 2 cm de large.

Seuls quelques Instituts dans le monde sont susceptibles de fournir de telles cibles, comme entre autres le laboratoire de Berkeley....

C’est d’ailleurs à cause de ce problème d’approvisionnement que l’équipe de l’ILL a mis en place une collaboration avec Ilham Almahamid de l’Université d’Albany (New-York), et avec Tatiana Kuzmanina, Saint Petersburg, pour fabriquer sur place, des cibles d’ ^{235}U . C’est dans ce cadre que nous avons réalisé des cibles, soit par électrodéposition avec I. Almahamid, soit par peinture avec T. Kuzmanina dans le laboratoire des faibles activités de l’ILL.

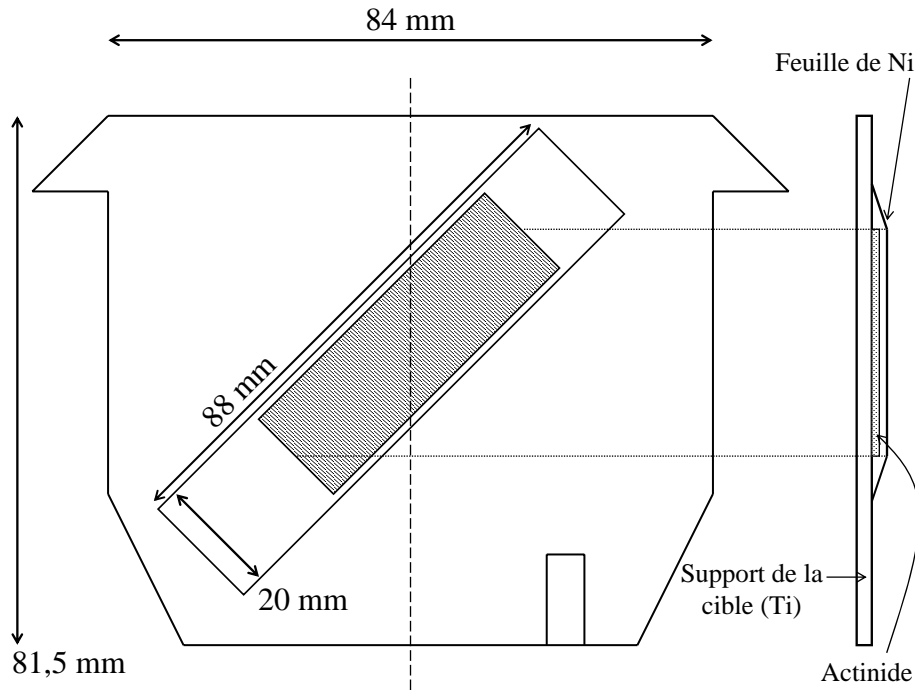


FIG. 3.2 – Vue en coupe (gauche) et vue de profil (droite) d'une cible et de son support. La cible consiste en un actinide (matière fissile) déposé sur une plaque de Ti. L'actinide est lui même recouvert par une feuille de Ni pour limiter les pertes de matière.

3.2.2 Fabrication de cibles

3.2.2.1 La matière première

Une seule feuille métallique de 200 mg d'Uranium (U), provenant du laboratoire technologique de l'université de Munich, a servi à la préparation de toutes les cibles fabriquées à l'ILL. Sa composition était de :

- 0.001% d' ^{233}U , soit de 2 μg , pour une activité de $7,11 \cdot 10^2$ Bq,
- 0.038% d' ^{234}U , soit de 76 μg , pour une activité de $1,74 \cdot 10^4$ Bq,
- 99.698% d' ^{235}U , soit de 199,396 mg, pour une activité de $1,59 \cdot 10^4$ Bq,
- 0.011% d' ^{236}U , soit de 22 μg , pour une activité de $5,25 \cdot 10^1$ Bq,
- 0.252% d' ^{238}U , soit de 504 μg , pour une activité de 6,25 Bq.

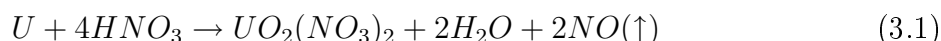
Les cibles utilisées sur le Lohengrin sont pourvues de deux types de support, soit une plaque de tantale (Ta), soit une plaque de titane (Ti). Ces matériaux possèdent tous deux les propriétés mécaniques et chimiques nécessaires à la fois pour résister aux températures élevées auxquelles ils sont soumis, mais aussi pour permettre l'absorption de la matière fissile. Cependant, le second cas est le plus courant, puisque la matière fissile diffuse apparemment un peu moins dans ce matériau. C'est pour cette raison qu'une plaque en titane a été choisie comme substrat pour chaque cible. Elles sont caractérisées par une longueur de 8,8 cm et une largeur de 2 cm pour une épaisseur de 0,25 cm.

Puisque l'Uranium disponible était initialement sous la forme d'une feuille métallique, la première étape a donc consisté à le dissoudre, pour pouvoir ensuite le déposer, soit par électrodéposition, soit par peinture, sur la plaque de Ti.

Dissolution de l'Uranium métallique, fabrication de la solution mère

- La feuille d'Uranium de 200 mg est déposée dans un béccher de 200 ml, avant d'y verser 4 ml d'acide nitrique HNO_3 à 3 M.l^{-1} .

La dissolution de l'Uranium dans l'acide nitrique génère la formation de nitrate d'uranyle à partir de la réaction suivante :



- La solution est chauffée à 70°C et prend alors une coloration jaune.
- Elle est ensuite complétée jusqu'à 4 ml avec de l'acide nitrique de 3 M.l⁻¹. Ces 4 ml de solution contiennent alors les 200 mg d'U.

3.2.2.2 La méthode d'électrodéposition

L'électrodéposition est une technique qui va consister à recouvrir des objets, appelés substrats, (la plaque de Ti dans notre cas) par une couche mince et régulière d'un hydroxyde de métal (l'U dans notre cas).

Le matériel expérimental utilisé a été fabriqué au laboratoire de Berkeley par le groupe d'Ilham Almahamid (fig. 3.3). Il est constitué d'une cellule de téflon dans laquelle est versée la solution organique (UO₂(NO₃)₂ + C₃H₈O). Cette cellule est fixée sur un bloc d'aluminium (Al) qui va jouer le rôle de la cathode. Un fil de platine (Pt) est placé dans la solution organique pour servir d'anode.

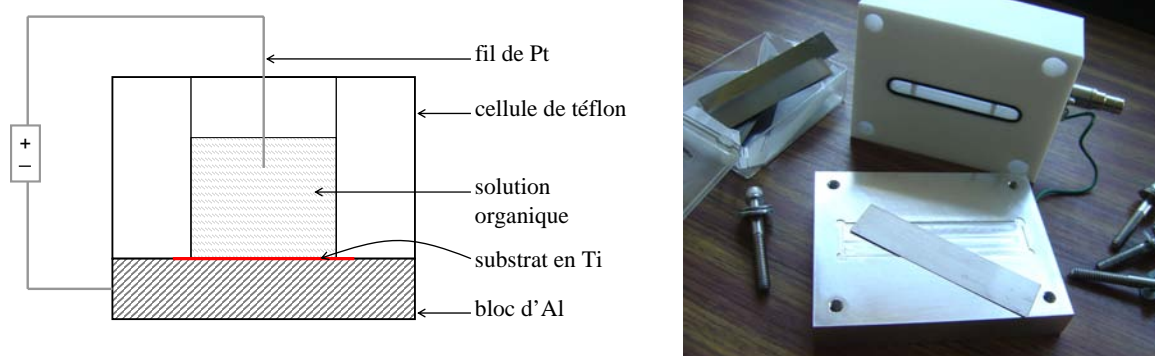


FIG. 3.3 – Schéma (gauche) et photographie (droite) du matériel d'électrodéposition.

Calculs préliminaires

La quantité choisie d'Uranium à déposer était de 400 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ par cible. Pour optimiser le procédé, il est préférable de ne pas déposer plus de 100 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ d'U par électrodéposition [E⁺04]. Quatre électrodépositions successives ont donc été nécessaires pour chaque cible afin de pouvoir déposer les 400 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$. Comme la surface de la matière fissile des cibles doit être d'environ 7 cm², il faut utiliser 700 μg d'U par électrodéposition. Mais, partant du principe que la réaction n'est pas parfaitement totale, il a été décidé d'électro-déposer 750 μg d'U par électrodéposition. De ce fait, chaque cible contiendra $750 \times 4 = 3$ mg d'U.

Électrodéposition

Afin de ne pas polluer la solution mère, seule la quantité nécessaire pour la fabrication de 10 cibles a été prélevée et utilisée en zone expérimentale.

La quantité à prélever est donc de 0,6 ml de solution mère ($3 \times 10 = 30$ mg d'Uranium pour la fabrication de 10 cibles, soit un volume de $30 \times 4/200 = 0,6$ ml). Elle sera appelée solution fille.

Au cours de l'électrodéposition, les cathions présents dans la solution vont venir se déposer sur la plaque de Ti au moyen d'un courant électrique. Pour cela, il est nécessaire de casser la molécule d' $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ en un cation d' UO_2^+ et un anion de $(\text{NO}_3)^-$. L' $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ est donc dissout dans un solvant organique, de l'isopropanol, ayant comme formule chimique $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$.

- On ajoute à la solution fille 4 ml d'isopropanol . Cette solution contient les 30 mg d'U.
- Une électrodéposition nécessite seulement 0,75 mg d'U. On va alors prélever, à l'aide d'une pipette, un volume de 0,1 μl de cette solution pour le verser ensuite dans la cellule avec 10 ml d'isopropanol.
- Via un générateur de tension connecté à la cellule d'électrodéposition, on fait passer un courant dans la solution. Au cours de la réaction, le courant doit augmenter avec la tension délivrée. Lorsque le courant diminue, la réaction est terminée. L'intensité du courant nécessaire pour une électrodéposition est de 0,5 mA par cm^2 , soit de 3,5 mA pour 7 cm^2 . La tension maximale nécessaire à la réaction a été de 600 V.
- Après avoir vidé la cellule à l'aide d'une pipette, on retire la plaque de Ti et on vient la placer dans un four à 600°C. Cette opération permet de calciner la cible.
- Une fois la cible refroidie, on peut alors renouveler l'expérience autant de fois que nécessaire pour déposer la quantité d'actinide choisie, c'est à dire 3 fois dans notre cas.

3.2.2.3 La méthode de peinture

La solution déposée sur la plaque de Ti lors d'une peinture de cible est exactement la même que celle utilisée pour une électrodéposition, [D⁺99]. Les quantités et les exigences restent les mêmes, c'est à dire qu'au maximum 100 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ d'U seront déposés sur la cible lors d'une opération.

- On ajoute à la solution fille 4 ml d'isopropanol . Cette solution contient les 30 mg d'U.
- On va prélever un volume de 0,1 μl de cette solution pour le verser ensuite dans la cellule avec 10 ml d'isopropanol.
- A l'aide d'un pinceau, on balaye de façon régulière et homogène la plaque de Ti autant de fois que nécessaire pour y déposer les 0,1 μl de solution.
- La plaque de Ti doit ensuite être chauffée dans un four à 600°C.
- Une fois la cible refroidie, on peut alors renouveler l'expérience autant de fois que nécessaire pour déposer la quantité d'actinide choisie, c'est à dire 3 fois dans notre cas.

3.2.3 Caractéristiques des cibles utilisées pour les différentes expériences

Les cibles utilisées lors de nos différentes expériences à Lohengrin étaient composées d'un support de Ti sur lequel était déposé la matière fissile, elle même recouverte par une feuille de Nickel (Ni). Cette feuille a pour but de limiter la perte de matière, d'une part à cause des noyaux de recul qui peuvent quitter la cible suite à de la diffusion neutronique (très faible contribution) mais surtout lorsque les produits de fission, très énergétiques, sortent de la cible en arrachant des atomes sur leur chemin. Ce processus s'appelle perte de matière par sputtering.

Les différentes cibles utilisées au cours de ce travail, ainsi que leurs propriétés, sont répertoriées dans le tableau 3.1.

Expérience	Cible	Caractéristiques	
		$\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ d'actinide	épaisseur de la feuille de Ni [μm]
Mesure de rendement en masse	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	156	0,25
	$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	137	0,25
	$^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	161	0,25
Etude des E_k -distributions	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$		0
Mesure de rendement isotopique	$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$		0,25
	$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$		0,25

TAB. 3.1 – Caractéristiques des cibles utilisées au cours des différentes expériences

3.3 Le spectromètre de masse Lohengrin

Le spectromètre de masse Lohengrin est un instrument qui est dédié à l'étude de la fission et à la spectroscopie des noyaux riches en neutrons [M⁺70]. Il se situe sur l'aire expérimentale PN1 (fig. 3.1).

Une vue d'ensemble en est donnée à la fig. 3.4.

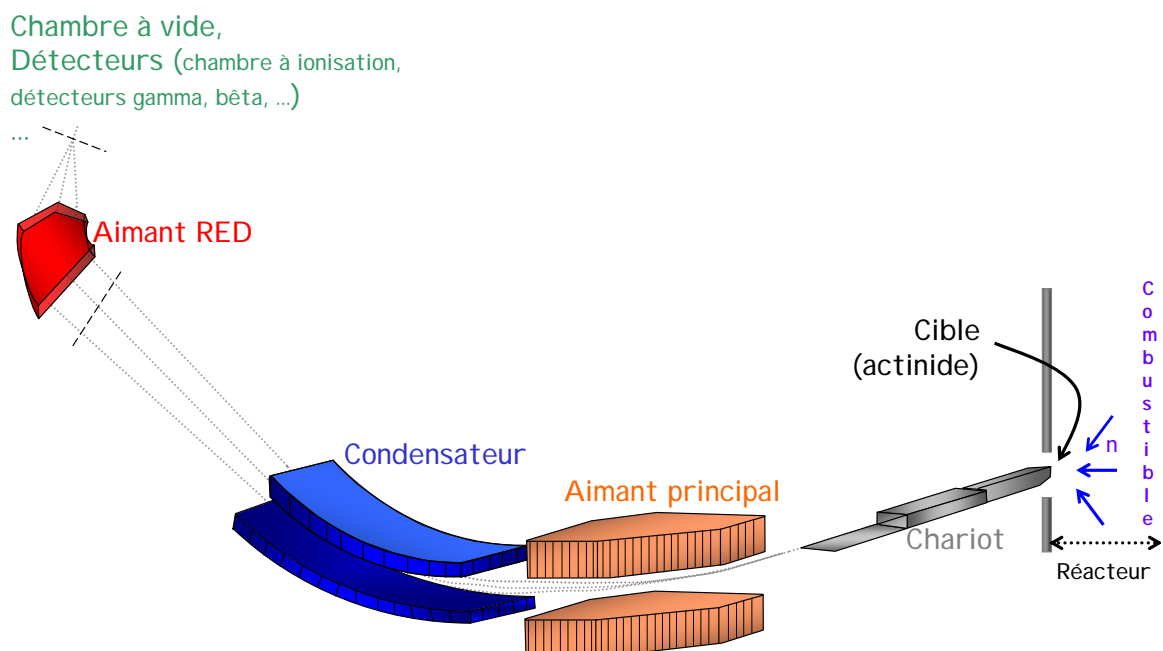


FIG. 3.4 – Représentation schématique du spectromètre Lohengrin.

Grâce à un système de chariot automatisé, les cibles sont placées très près du coeur du réacteur. De la cible au système de détection, le spectromètre fait 23 m de long.

3.3.1 Principe de séparation

Comme à leurs sorties de la cible les produits de fission sont ionisés, ils peuvent dès lors être séparés par champs électro-magnétiques [M⁺73].

Les produits de fission qui pénètrent dans le canal du spectromètre sont déviés par des champs électrique et magnétique.

Leur sélection se fait par la combinaison du champ magnétique \vec{B} de l'aimant principal et du champ électrique \vec{U} du condensateur. Le second aimant, l'aimant RED, permet de focaliser le faisceaux, [F⁺93]. Il ne change ni n'ajoute rien à la sélection des produits de fission déjà réalisée par l'aimant principal et le condensateur, mais permet d'optimiser l'identification des noyaux en focalisant le faisceaux au niveau du système de détection.

Soient ρ_M et ρ_{E_k} les rayons de courbures des trajectoires des ions dans les champs magnétique \vec{B} et électrique \vec{U} ; on a alors, pour des ions de masse atomique A , d'énergie cinétique E_k , d'état de charge ionique q et de vitesse v :

$$qvB = \frac{Av^2}{\rho_M} \quad \text{et} \quad qU = \frac{Av^2}{\rho_{E_k}}$$

d'où :

$$v = \frac{U \rho_{E_k}}{B \rho_M} = Cst \quad \text{et} \quad \begin{cases} \frac{A}{q} = \frac{B^2 \rho_M^2}{U \rho_{E_k}} \\ \frac{E_k}{q} = \frac{Av^2}{2q} = \frac{U \rho_{E_k}}{2} \end{cases} \quad (3.2)$$

Ainsi, pour un couple donné de champs magnétique et électrique, les produits de fission sont séparés selon la valeur de leur rapports A/q et E_k/q .

Soit x , la déviation due au champ magnétique et y celle liée au champ électrique. Ces deux déviations sont, au premier ordre, proportionnelles à l'inverse du rayon de courbure de chacune des déflexions. D'après les équations 3.2, pour les ions de valeur A/q , on obtient alors :

$$x \propto \frac{1}{\rho_M} = \frac{qB}{\sqrt{2E_k A}} \quad \text{et} \quad y \propto \frac{1}{\rho_{E_k}} = \frac{qU}{2E_k}$$

d'où :

$$y \propto \left(\frac{U}{B^2} \right) \frac{A}{q} x^2 \quad (3.3)$$

La parabole décrite par l'équation 3.3 montre bien que plusieurs masses peuvent être observées dans le plan focal du spectromètre. Elles coresspondent à toutes les masses A qui ont un rendement non nul à la charge ionique q pour la même valeur du rapport A/q (figure 3.5).

3.3.2 Caractéristiques techniques

Les résolutions en masse et en énergie du Lohengrin sont liées aux dimensions de la cible. Plus celle-ci sera étendue, plus la dispersion en énergie sera importante. Pour remédier à ce problème, un diaphragme avec une ouverture de $0,8 \times 8 \text{ cm}^2$ est placé juste après la cible. Il permet une résolution suffisante pour la séparation des fragments de fission.

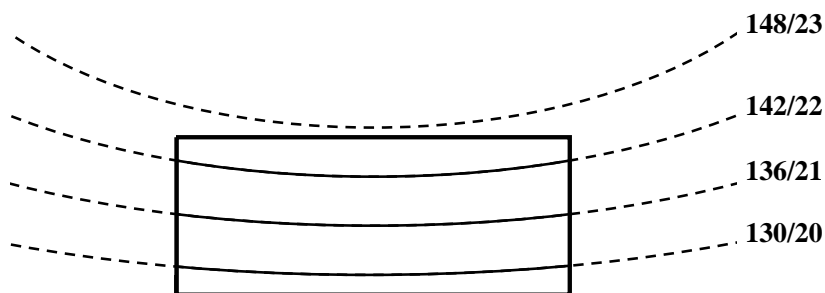


FIG. 3.5 – Vue du plan focal du Lohengrin. La trajectoire centrale du spectromètre correspond aux valeurs de $A=136$, $q=21$ et $E_k=65$ MeV. Les lignes A/q voisines (130/20, 142/22) sont séparées grâce au caractère discret de A et de q .

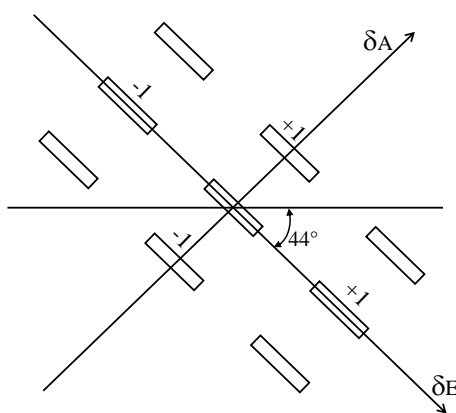


FIG. 3.6 – Schéma du plan focal du Lohengrin, dans un plan perpendiculaire à la direction du faisceau, montrant les dispersions en masse et en énergie. Le rectangle central correspond à l'image de la source, avec un agrandissement de 1. Les rectangles +1 et -1 sont les images de cette même source pour des variations $\delta A/A$ ou $\delta E_k/E_k$ de 1% par rapport à la masse et à l'énergie de la trajectoire centrale. L'angle de 44° est dû à la déflexion du champ magnétique.

L'aimant principal se trouve huit mètres après la cible, et deux mètres avant le condensateur. Il dévie les fragments de 44° dans un plan horizontal et les disperse en Av/q . La déviation induite par le condensateur sur le faisceau est de $35,3^\circ$ dans un plan vertical. L'aimant principal peut délivrer un champ magnétique allant de 0 à 2000 Gauss. Quant au condensateur, les tensions symétriques appliquées à chacune des deux plaques peuvent varier de 0 à 370 kV, ce qui permet d'obtenir un champ électrique maximal de 740 kV. Les dispersions en masse et en énergie sont directement liées à l'optique du spectromètre. La constante de dispersion en énergie est telle qu'une distance de 7,2 cm dans le plan focal correspond à une variation de 1% en énergie. De la même manière, la dispersion en masse est telle qu'à une variation $\Delta A/A$ de 1% correspond une distance de 3,24 cm. La fig. 3.6 représente les dispersions en masse et en énergie des produits de fission dans le plan focal du Lohengrin.

Les caractéristiques techniques du réacteur et du spectromètre Lohengrin sont résumées dans le tableau 3.2.

Puissance de la pile	: 58 MW
Flux de neutrons	: $5,3 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
Ouverture angulaire horizontale	: $2,3^\circ$
Ouverture angulaire verticale	: $\leq 0,57^\circ$
Angle solide ($\frac{\Omega}{4\pi}$)	: $\leq 3,2 \cdot 10^{-5}$
Longueur du rayon principal	: 23,1 m
Longueur de la fente de sortie	: 40 cm
Dispersion en masse $\frac{\Delta A}{A} = 1\%$: 3,24 cm
Dispersion en énergie $\frac{\Delta E_k}{E_k} = 1\%$: 7,2 cm
Résolution en masse	
diaphragme-source de $0,8 \text{ cm} \times 7,5 \text{ cm}$: 400
diaphragme-source de $0,16 \text{ cm} \times 4 \text{ cm}$: 1000

TAB. 3.2 – Caractéristiques techniques du réacteur et du spectromètre.

3.3.3 La fission nucléaire et le spectromètre Lohengrin

Le spectromètre Lohengrin est un instrument qui permet, avec un dispositif de détection adéquat, de mesurer les produits de fission, ainsi que leurs désintégrations. Compte tenu des échelles de temps inhérentes du processus de fission (figure 3.7), il n'est évidemment pas possible d'accéder aux informations sur les fragments de fission avant émission des neutrons prompts.

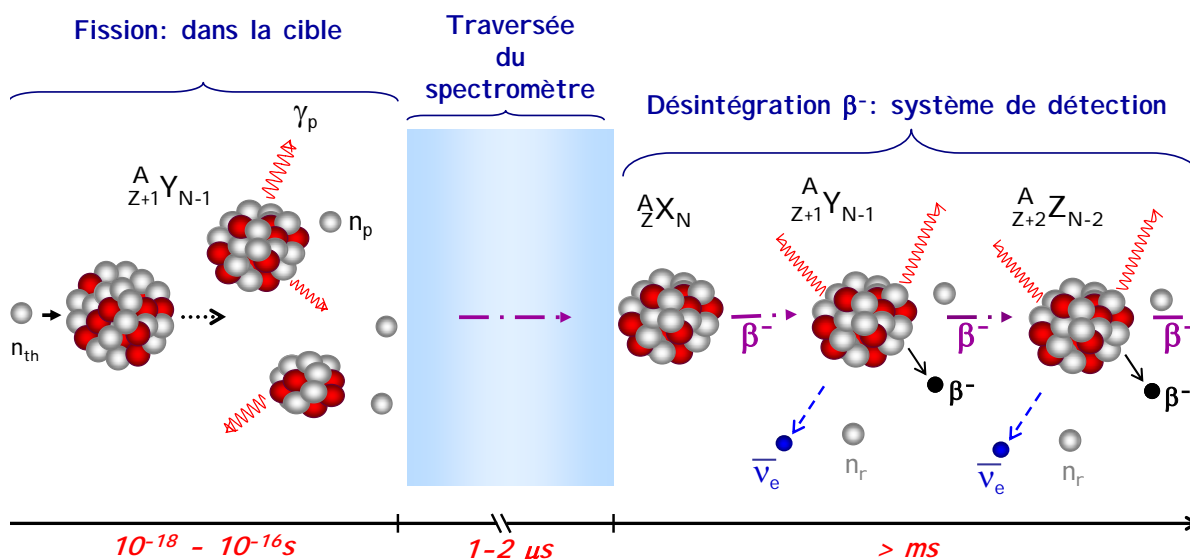


FIG. 3.7 – Echelle de temps de la fission et spectromètre Lohengrin.

3.3.4 Les différents domaines de physique étudiés sur le Lohengrin

Le spectromètre de masse Lohengrin a été conçu principalement pour l'étude de la fission nucléaire et les rendements d'un grand nombre d'actinides y ont été déterminés :

- $^{229}\text{Th}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [B⁺90].
- $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [Q⁺88, Qua83].
- $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [C⁺74, Lan80, S⁺74, Woh76].
- $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$: rendements isobariques dans la région des masses très asymétriques, [S⁺89].
- $^{238}\text{Np}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [M⁺90].
- $^{238}\text{Np}(n_{th}, f)$: rendements isobariques dans la région des masses très asymétriques, [T⁺01].
- $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [S⁺84].
- $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [Fri98].
- $^{242m}\text{Am}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères. [T⁺99]
- $^{245}\text{Cm}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [Fri98].
- $^{245}\text{Cm}(n_{th}, f)$: rendements isobariques dans la région des masses lourdes et isotopiques dans la région des masses légères, [R⁺02].
- $^{249}\text{Cf}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [D⁺89].

Malgré sa faible probabilité (entre 2 et 4 évènements pour 1000 fissions), l'étude de la fission ternaire est accessible sur le Lohengrin grâce au flux très élevé de neutrons thermiques délivré par le réacteur [K⁺99, T⁺03, W⁺98].

De plus, toujours dans l'étude de la réaction de fission, aux mesures de rendements viennent s'ajouter la mesure des rapport d'embranchement $\beta^- - n$. C'est mesures en cours sont principalement menées par L. Mathieu, CEA Cadarache [Mat09].

Cependant, aujourd'hui, en utilisant la fission comme source de noyaux exotiques, une grande partie des expériences sur le spectromètre Lohengrin se concentrent, non plus sur la fission nucléaire, mais sur la structure nucléaire des noyaux riches en neutrons. Ces mesures permettent, par spectroscopie γ , d'accéder aux schémas de niveaux des noyaux de cette région indispensables pour l'étude de la structure nucléaire [P⁺00, G⁺99].

Enfin, le flux élevé du réacteur permet d'étudier la diffusion des actinides à très haute température dans différents matériaux.

3.4 La mesure des rendements en masse

Les mesures de rendement en masse présentent l'avantage d'utiliser un dispositif expérimental très simple. En effet, comme le spectromètre Lohengrin sélectionne les ions selon la valeur de leurs rapports A/q et E_k/q , une "simple" chambre à ionisation sera suffisante pour déterminer l'énergie cinétique E_k et permettre ainsi l'identification des masses.

3.4.1 Chambre à ionisation

Principe de fonctionnement

Une fois sélectionnés par le spectromètre, les produits de fission vont déposer leur énergie

en traversant la chambre à ionisation.

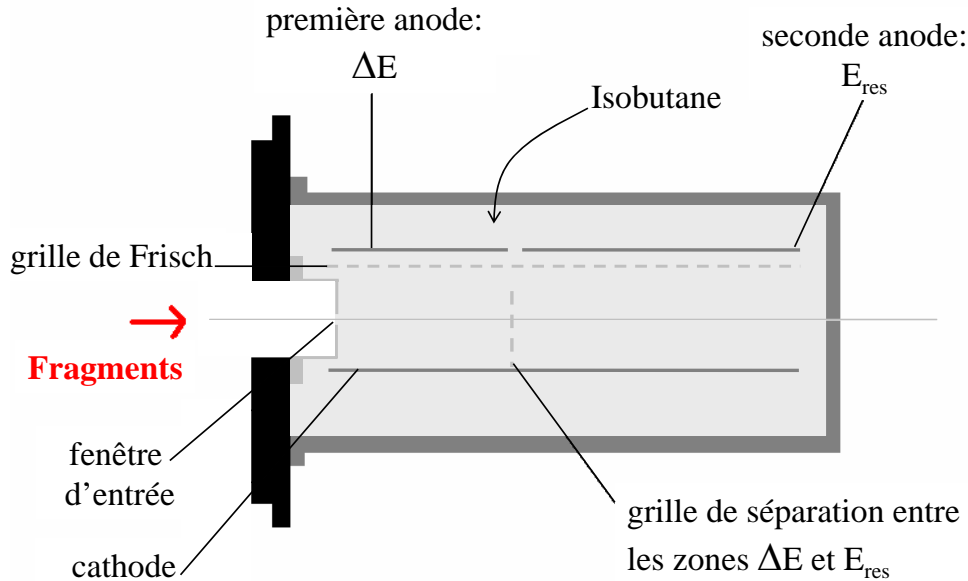


FIG. 3.8 – Vue schématique de la chambre à ionisation.

Un schéma de la chambre est représenté figure 3.8.

Lors de leur parcours dans la chambre, les produits de fission vont perdre une partie de leur énergie cinétique par collision avec les molécules du gaz. Une tension appliquée à la chambre à ionisation permet de collecter les électrons résultant de l'ionisation des molécules de gaz. Grâce à l'électronique associée, ces électrons fournissent un signal proportionnel à l'énergie déposée par les produits de fission. Seul le signal détecté sur l'anode est enregistré puisque les cations des molécules de gaz ionisées migrent vers la cathode avec une vitesse 1000 fois inférieure à celle des électrons, ce qui leur laisse plus de temps pour d'éventuelles recombinaisons avec les autres molécules. La vitesse de migration des électrons dans de l'isobutane est de l'ordre de la microseconde, alors qu'elle est de l'ordre de la milliseconde pour les ions positifs.

L'anode

Elle est composée de deux parties :

- une première anode collecte l'énergie ΔE déposée dans la chambre avant la grille de séparation,
- la seconde anode récupère la valeur restante de l'énergie déposée, l'énergie résiduelle, E_{res} .

L'énergie totale E_{tot} déposée dans la chambre est alors la somme de ΔE et de E_{res} .

Le choix d'une chambre à ionisation à double anode permet de séparer les différentes masses présentes à l'intérieur de la chambre, puisque les masses qui ont des valeurs de rapports A/q et E_k/q identiques ont toutes été sélectionnées par le spectromètre. Il devient ainsi possible en traçant le spectre ΔE - E_{tot} de différencier les masses les unes des autres. Un exemple de spectres obtenus par le logiciel MPAWIN [MPA95] est donné figure 3.9.

Le spectre du haut représente un cas pour lequel A/q est dégénéré. Il illustre bien le principe de séparation du Lohengrin qui se fait selon la valeur des rapports A/q et E_k/q

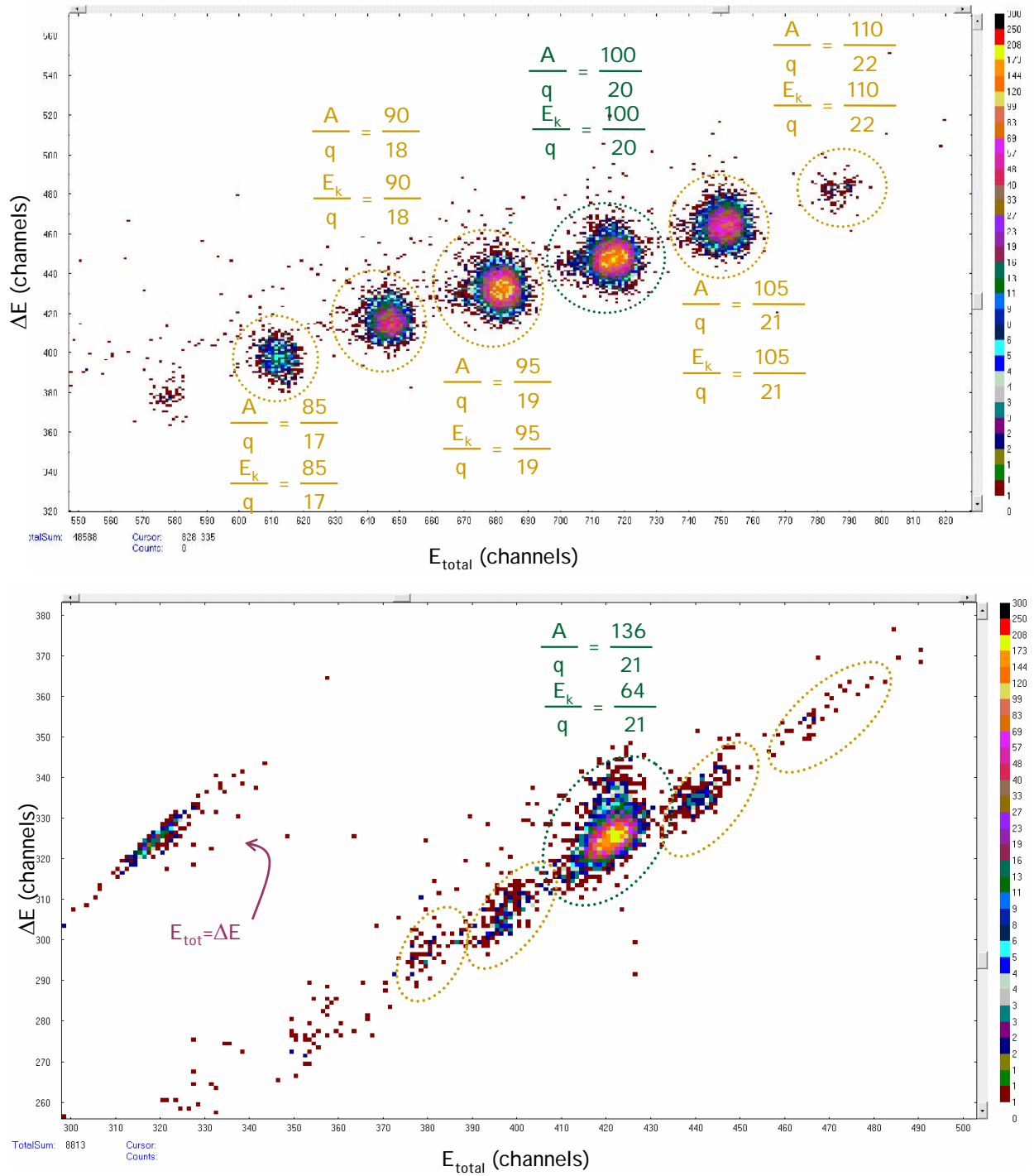


FIG. 3.9 – Exemple de spectres obtenus pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$.

La figure du haut correspond aux paramètres $A = 100$, $q = 20$ et $E_k = 100$ MeV, alors que celle du bas correspond aux valeurs $A = 136$, $q = 21$ et $E_k = 64$ MeV.

La tâche à gauche de la figure du bas annotée $E_{tot} = \Delta E$ correspond aux produits de fission qui sont restés bloqués dans la grille de séparation.

et non directement selon les valeurs de A , E_k et q . On peut en effet sur ce spectre identifier différentes “tâches” qui correspondent aux différentes combinaisons de A , E_k et q pour les valeurs $A/q=5$ et $E_k/q=5$. Les intensités de ces tâches sont proportionnelles aux rendements des masses A pour les charges ioniques q_i aux énergies cinétiques E_{k_j} correspondantes : $Y_{exp.}(A, q_i, E_{k_j})$.

L'exemple du bas représente un cas où A/q est non dégénéré : $A = 136$, $q = 21$ et $E_k = 64 \text{ MeV}$ (valeurs des rapports A/q et E_k/q non entiers). Dans ce cas, seule la masse “principale” correspondante aux valeurs $A/q/E_k$ égales à $136/21/64$ sera entièrement sélectionnée. Les autres masses “parasites” ayant des rapports A/q et E_k/q voisins de la masse principale auront une admittance d'autant plus grande que leurs valeurs seront proches de celle-ci. Les intensités des tâches pour les masses parasites ne seront donc pas directement proportionnelles aux rendements de ces masses, mais elles devront être pondérées par leur pourcentage d'admission du spectromètre.

Dans la région des produits de fission légers, une séparation isotopique en plus de la détermination des masses est possible avec ce même dispositif. Cette séparation s'appuie sur la formule de Bethe qui exprime la perte d'énergie d'un ion en fonction de sa charge nucléaire Z [B⁺³⁰] :

$$\frac{dE}{dx} \sim \frac{Z^2}{v^2}$$

Cependant, ce type de mesure n'est envisageable que jusqu'à la charge nucléaire $Z=38$. Au delà de cette charge il devient impossible de séparer les différents isotopes pour lesquels les distributions en énergie sont de plus en plus difficiles à séparer au fur et à mesure que Z augmente. L'utilisation d'un absorbeur passif [R⁺⁰²] a permis de repousser cette limite de séparation isotopique jusqu'à $Z=42$, mais n'est plus efficace dans la région des masses lourdes.

La grille de séparation

Sa fonction est de séparer les charges électriques provenant des deux parties ΔE et E_{res} de la chambre. Elle évite ainsi que des électrons créés dans la zone E_{res} ne soient collectés dans celle de ΔE , et vice-versa [B^{+88a}]. Sa présence n'est justifiée que par l'utilisation d'une double anode.

La grille de Frisch

La grille de Frisch évite que le temps de collection des électrons, donc la charge enregistrée par l'électronique de détection, soit dépendant de la position à laquelle le produit de fission va déposer son énergie.

En effet, si un produit de fission ionise une molécule de gaz près de l'anode, la distance à parcourir pour les électrons sera alors plus courte que pour une ionisation près de la cathode. Ainsi, pour éviter que le signal collecté sur l'anode ne varie avec la position où a eu lieu l'ionisation de la molécule de gaz, l'adjonction de cette grille contraint ce signal à être toujours dépendant de la même distance de parcours des électrons, soit la distance qui sépare la grille de Frisch de l'anode. Ce qui se passe entre la cathode et la grille de Frisch ne peut pas être perçu par l'anode.

Pour cela, les tensions appliquées sont de 0 V pour la cathode, 400 V pour la grille de Frisch et 800 V pour l'anode.

Gaz de la chambre

Le gaz de remplissage de la chambre est de l'isobutane, C_4H_{10} . C'est un gaz couramment utilisé pour l'ionisation des particules chargées.

La pression choisie est d'environ 40 mbar. Cette valeur doit répondre à deux critères. Elle ne doit pas être trop élevée pour laisser aux produits de fission un libre parcours moyen dans la chambre suffisamment grand pour permettre une séparation des masses satisfaisante. Mais elle doit, dans un même temps, être suffisante pour stopper complètement les produits de fission dans la chambre, afin de ne pas perdre d'informations sur les ions de plus haute énergie.

Fenêtre d'entrée

Le rôle de la fenêtre à l'entrée de la chambre à ionisation est d'assurer l'étanchéité entre le gaz de la chambre et le vide du spectromètre, qui est d'environ 10^{-6} mbar.

Dans le but de ne pas altérer la résolution de la chambre, elle doit modifier au minimum les caractéristiques des ions entrants (perte d'énergie, dispersion en énergie et dispersion angulaire). C'est pourquoi il est indispensable qu'elle soit la plus homogène et la plus mince possible, tout en respectant les contraintes mécaniques.

Pour cela, le choix de la fenêtre s'est porté sur une feuille de polypropylène de $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ supportée par une grille de tungstène ayant une transmission supérieure à 90%.

La technique de réalisation de ces feuilles est présentée par D.W. Hetherington dans la référence [H⁺86].

3.4.2 Electronique d'acquisition

Les électrons collectés sur l'anode doivent être convertis en signal électrique. L'électronique doit traiter le signal délivré par les deux anodes. Elle doit conserver le signal correspondant à la perte d'énergie ΔE dans la première partie de la chambre, et, afin d'obtenir la valeur de l'énergie totale déposée, sommer ce signal à celui correspondant à la perte d'énergie dans la seconde partie ($E_{tot} = \Delta E + E_{res}$). Pour cela, les signaux des deux anodes sont amplifiés d'abord dans un pré-amplificateur (PA), puis dans un amplificateur (A). Ils sont ensuite sommés, puis convertis en signaux numériques afin de pouvoir être stockés puis traités par un ordinateur, via le logiciel MPAWIN. La conversion de ces deux signaux analogiques se fait à l'aide d'un convertisseur analogique numérique (CAN). Cette électronique d'acquisition est schématisée figure 3.10.

3.5 La mesure des rendements isotopiques

3.5.1 Principe de la méthode

Si les rendements isotopiques de plusieurs actinides ont déjà été mesurés par le passé sur le spectromètre de masse Lohengrin, jamais encore la région des produits de fission lourds n'avaient été investiguée. La raison en est que pour les produits de fission légers, le même dispositif expérimental reste adéquat pour la mesure des rendements en masse ainsi que pour celle des rendements isotopiques.

Néanmoins, ce principe de séparation des différents isotopes au sein d'une même ligne de masse ne peut s'appliquer que pour des noyaux ayant un $Z < 42$ (Molybdène). Rappelons en effet que le spectromètre Lohengrin couplé uniquement à une chambre à ionisation ne permet en fait qu'une séparation isotopique des produits de fission dont $Z < 38$ (Strontium). L'ajout d'un absorbeur passif est indispensable pour pousser cette séparation jusqu'aux isotopes du Molybdène, mais n'est malheureusement plus performant au-delà. C'est pourquoi, une nouvelle méthode basée sur la spectrométrie des γ de décroissance des produits de fission a été développée pour mesurer les rendements isotopiques dans la

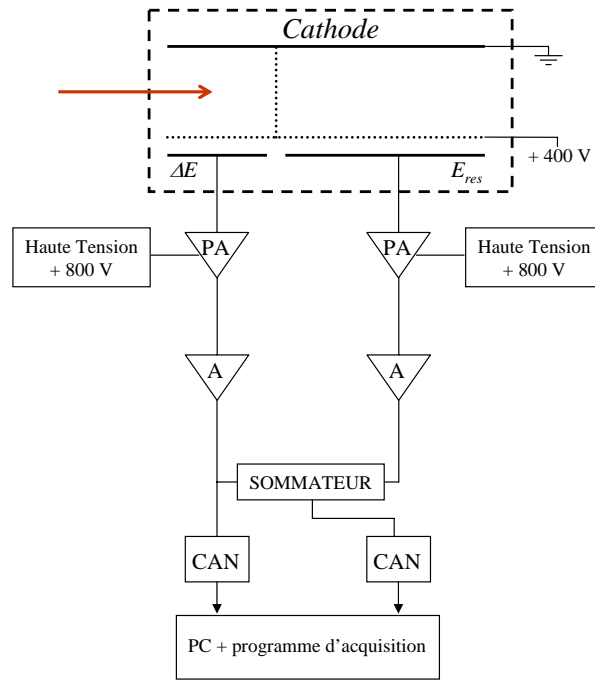


FIG. 3.10 – Système d'acquisition en sortie de la chambre à ionisation.

région des masses lourdes. Elle associe au spectromètre de masse une chambre à vide ainsi que des détecteurs γ et β .

Le principe de la méthode est le suivant.

De la même manière que pour les mesures de rendements en masse, le spectromètre sépare les produits de fission selon la valeur de leurs rapports A/q et E_k/q . Au cours de ces mesures, l'identification en masse se faisait par la mesure de l'énergie cinétique des ions via la chambre à ionisation. La charge nucléaire Z et la masse A des noyaux sont identifiés grâce à leurs rayonnements γ caractéristiques. Ces signatures γ permettent de remonter à la valeur de leur charge nucléaire Z , ainsi que leur masse atomique A . Ce sont les paramètres donnés au spectromètre qui nous permettent de connaître des valeurs de l'énergie cinétique E_k et de la charge ionique q correspondantes afin de pouvoir déterminer les valeurs des rendements $Y(A, Z)$.

Un schéma du dispositif expérimental est représenté sur la figure 3.11. Il comprend une chambre à vide à l'intérieur de laquelle circule une bande passante. Deux clovers Germanium placés de part et d'autre de la chambre permettent l'identification des isotopes en détectant les γ retardés émis au cours des désintégrations β^- . Le scintillateur détecte les électrons émis lors de ces mêmes désintégrations et permet par des mesures en coïncidences $\beta - \gamma$ de laver les spectres du bruit de fond γ extérieur.

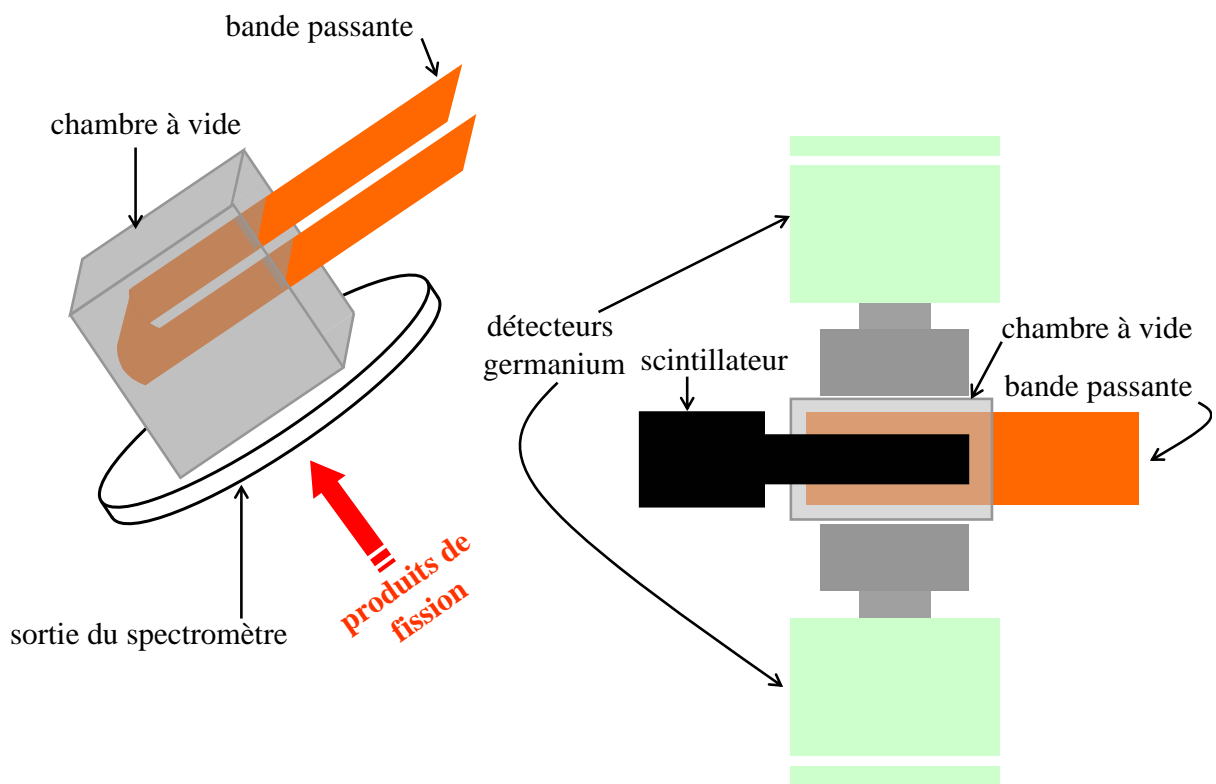


FIG. 3.11 – A gauche : vue de profil de la chambre à vide placée à la sortie du spectromètre. Elle est traversée par une bande passante qui a pour rôle de stopper les produits de fission. A droite : vue de dessus de la chambre à vide, ainsi que des deux clovers Germanium et du scintillateur.

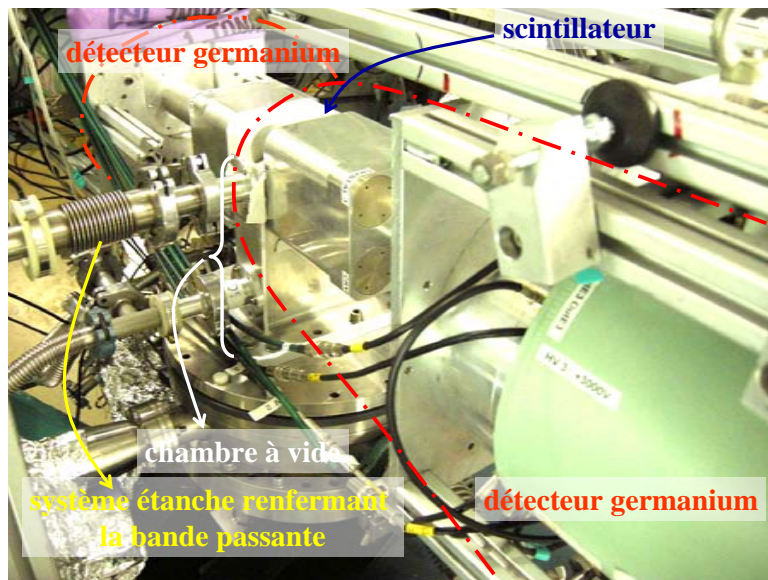


FIG. 3.12 – Photographie du système de détection lors de la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

3.5.2 Chambre à vide

L'unique particularité de la chambre à vide utilisée au cours de la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ consiste à faire passer à l'intérieur de celle-ci une bande passante, figure 3.13.

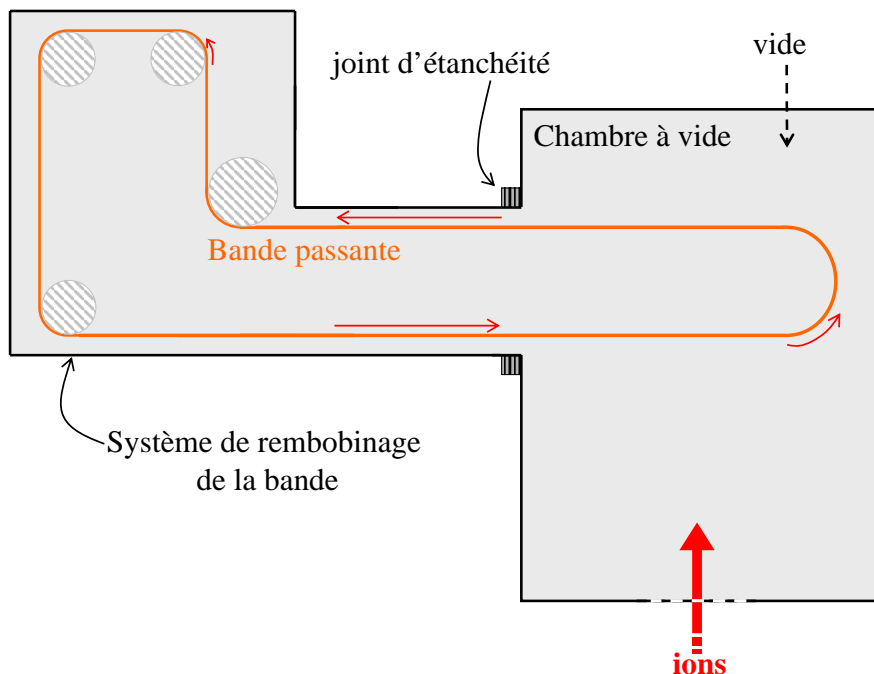


FIG. 3.13 – Représentation schématique de la chambre à vide et de la bande passante.

Le vide de la chambre est de l'ordre de 1 mbar. Sans la bande passante, les produits de fission la traverserait. Le rôle de celle-ci est d'arrêter les ions sur une position précise et connue, afin d'optimiser le positionnement des détecteurs autour de la chambre. A la fin de chaque mesure, un système automatisé permet de faire circuler la bande, déplaçant ainsi

la radioactivité restante des produits de fission de longue vie à une distance suffisamment éloignée des détecteurs afin que ces rayonnements ne viennent pas polluer les mesures suivantes. Par conséquent et la chambre et le système de rembobinage de la bande ont besoin d'être sous vide tout au long de l'expérience.

3.5.3 Détecteurs

Détection γ

Pour détecter le rayonnement γ émis lors de la désintégration des produits de fission, deux "clovers" ont été placés de part et d'autre de la chambre à vide. Ils sont tous deux constitués de quatre détecteurs Germanium, reliés électroniquement entre eux, et disposés en forme de "trèfle", ce qui leur confère une efficacité géométrique plus importante.

Un détecteur semi-conducteur, détecteur Silicium ou Germanium pour les plus couramment utilisés, s'apparente à une chambre à ionisation solide. Les charges créées par un rayonnement ionisant sont séparées sous l'action d'un champ électrique, et la valeur mesurée, proportionnelle à l'énergie déposée, est le courant induit.

Les semi-conducteurs les plus utilisés pour les détecteurs sont des éléments tétravalents (c'est le cas du Si ou du Ge).

Ils possèdent une conductivité située entre celle des conducteurs, et celle des isolants (figure 3.14). De la même manière, le gap entre la bande de valence et la bande de conduction dans le cas d'un cristal semi-conducteur ($\simeq 1$ eV) prend une valeur intermédiaire entre la valeur d'un conducteur ($= 0$ eV) ou celle d'un isolant ($\simeq 6$ eV).

Les porteurs de charge dans la bande de conduction sont les électrons, et les trous dans la bande de valence. Un semi-conducteur intrinsèque est caractérisé par une concentration d'électrons égale à sa concentration de trous.

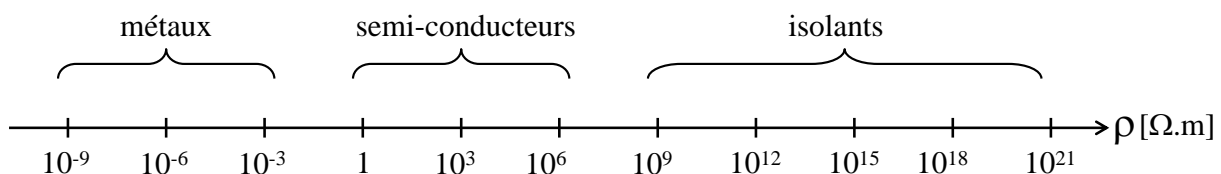


FIG. 3.14 – Résistivité (*inverse de la conductivité*) pour différents types de matériaux.

Afin de favoriser la création des porteurs, les semi-conducteurs sont la plupart du temps dopés. Ce dopage, ou adjonction volontaire d'impureté dans le cristal, peut être de deux types. On parle de semi-conducteur de type N lorsque le dopage favorise comme porteurs les électrons, alors qu'un dopage au profit des porteurs trous sera dit de type P.

S'il est vrai que les détecteurs germanium de type P présentent une efficacité plus grande que celle des détecteurs de type N, ce sont ces derniers qui sont le plus couramment utilisés. La raison vient du fait que les détecteurs de type P sont plus sensibles aux dégâts causés par les neutrons rapides. Comme à l'ILL l'environnement neutronique n'est pas négligeable, les détecteurs utilisés au cours des différentes expériences sont des détecteurs de type N.

L'existence d'un courant inverse à température ambiante impose à ce type de détecteur un fonctionnement à basse température. L'azote liquide est généralement utilisé pour refroidir les détecteurs, leur permettant de fonctionner à environ 77 K.

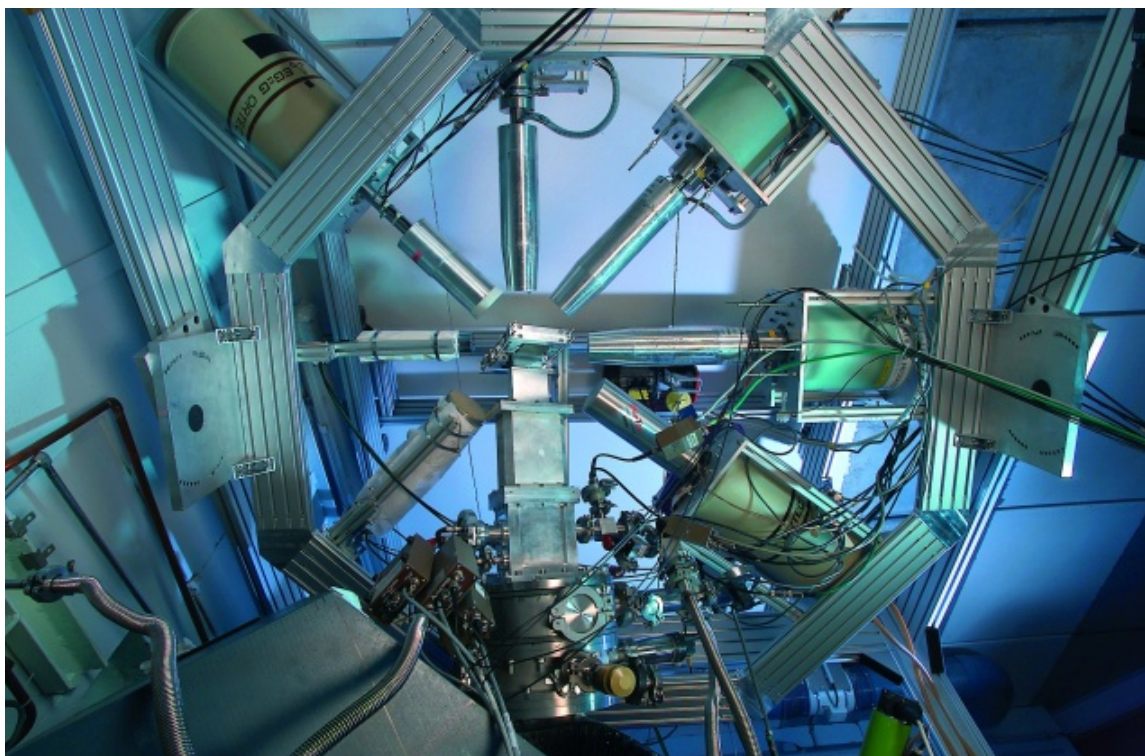


FIG. 3.15 – Photographie du système de détection lors d’une expérience sur le Lohengrin.

Détection β

Des mesures en coïncidences $\beta-\gamma$ permettent de s’affranchir du bruit de fond γ qui est, bien que ne résultant pas de la désintégration des produits de fission sélectionnés, détecté par les clovers. Ces γ , qui proviennent du réacteur à cause de l’activation des matériaux environnant par le bruit de fond neutronique, polluent les spectres et en rendent leur analyse plus difficile.

Une façon efficace de contourner cette contamination est de ne sélectionner uniquement que les γ de désexcitation des produits de fission qui suivent les électrons émis lors des désintégrations β^- . Pour cela, seuls les γ qui suivent immédiatement la détection d’un β seront enregistrés.

La détection de ces électrons se fait via un scintillateur plastique et un photo-multiplicateur. Le plastique de ce détecteur, chimiquement traité, contient des molécules fluorescentes qui vont être excitées par l’énergie déposée par les électrons au cours de leur traversée. En se désexcitant, ces molécules émettent de la lumière dont l’intensité émise est proportionnelle à l’énergie laissée par les électrons dans le scintillateur. Les photons ainsi créés vont, par effet photoélectrique sur le métal de la photo-cathode du photo-multiplicateur, être convertis en un faible signal électrique. Celui-ci, accéléré et multiplié par une série de dynodes, pourra ensuite atteindre la cathode du photo-multiplicateur et créer une impulsion de courant correspondant à la détection d’un photon.

Chapitre 4

Méthode d'analyse

4.1 Introduction

Les méthodes d'analyse pour les deux différents types d'expériences menées sur le spectromètre sont développées dans ce chapitre.

Comme nous venons de le voir dans le chapitre précédent, les expériences utilisant comme système de détection la chambre à ionisation permettent de déterminer les rendements en masse, alors que celles de spectrométrie γ permettent de mesurer les rendements isotopiques. Ces méthodes auraient donc pu être présentées séparément dans les chapitres 6 (rendements isobariques) et 7 (rendements isotopiques), ce qui aurait vraisemblablement allégé la lecture. Cependant le chapitre 5 traite des distributions en charge ionique et en énergie cinétique, et s'appuie sur des mesures qui proviennent de ces deux différents types d'expérience. Il est donc préférable de présenter au préalable la façon dont ont été obtenus ces résultats.

4.2 Principe général de la méthode

Mesurer le rendement d'un noyau X au cours d'une réaction revient simplement à compter le nombre de noyaux X émis au cours de cette réaction.

Ainsi, déterminer les rendements de fission isobariques (ou isotopiques) consiste à évaluer combien de noyaux de masse A (ou de charge nucléaire Z) sont émis au cours de la fission. Cependant le spectromètre Lohengrin ne permet ni une séparation isobarique, ni une séparation isotopique des produits de fission. Il sélectionne les masses pour une charge ionique et une énergie cinétique données (chapitre 3).

Lors de la fission, la masse A (ou la charge nucléaire Z) est produite selon une distribution en charge ionique q et en énergie cinétique E_k . Ces distributions seront discutées au chapitre 5.

Une mesure exhaustive du rendement $Y(A)$ de la masse A ($Y(A, Z)$ pour la charge nucléaire Z) consisterait à sommer les rendements de cette masse (ou de cette charge) pour chaque combinaison d'énergie cinétique et d'état de charge. Cependant, comme nous allons le voir, cette méthode est beaucoup trop coûteuse en temps d'expérience pour pouvoir être réalisée tel quel.

Afin de bien comprendre comment sont déterminés les rendements de fission isobariques (ou isotopiques), un certain nombre de notations doit être au préalable introduit.

4.2.1 Notations

Remarque : Dans un souci de simplification, les démonstrations qui suivent ne sont effectuées que pour les rendements en masse. Toutes ces équations sont identiques pour les rendements isotopiques en remplaçant la masse A par la charge nucléaire Z pour une masse donnée.

Rendement indépendant du produit de fission de masse A à la charge ionique q_i et à l'énergie cinétique E_{k_j} : $Y(A, q_i, E_{k_j})$

C'est la probabilité pour qu'un noyau de masse atomique A à la charge ionique q_i et l'énergie cinétique E_{k_j} soit formé par fission après l'émission des neutrons prompts et avant sa décroissance radioactive. Elle correspond à la somme des charges nucléaires Z de cette masse.

Remarque : Dans la suite de ce chapitre, et toutes les fois où il sera question de rendement en masse, la sommation sur les charges nucléaires sera implicite, et le terme de "rendement" sera utilisé pour parler des "rendements indépendants".

Rendement du produit de fission de masse A à l'énergie cinétique E_{k_j} : $Y(A, q, E_{k_j})$

C'est la somme sur toutes les charges ioniques des produits de fission de masse A à l'énergie cinétique E_{k_j} .

Rendement du produit de fission de masse A à la charge ionique q_i : $Y(A, q_i, E_k)$

C'est la somme sur toutes les énergies cinétiques des produits de fission de masse A à la charge ionique q_i .

Rendement du produit de fission de masse A : $Y(A)$

C'est la somme de toutes les charges ioniques et toutes les énergies cinétiques de la masse A .

Par convention, les rendements sont normalisés à 2 pour la somme de tous les produits de fission. La somme des produits de fission légers étant ainsi égale à la somme des produits de fission lourds, soit à 1.

4.3 Méthode de détermination des rendements

Rendement $Y(A)$ de la masse A :

$$Y(A) = \sum_n \int_{E_k} Y(A, q_n, E_k) dE_k$$

Rendement isotopique :

$$Y(A, Z) = \sum_Z \sum_n \int_{E_k} Y(A, Z, q_n, E_k) dE_k$$

Le rendement $Y(A)$ de la masse A correspond ainsi au volume de la distribution de la masse A . Un exemple de cette distribution pour la masse 136 et la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ est donné figure 4.1 .

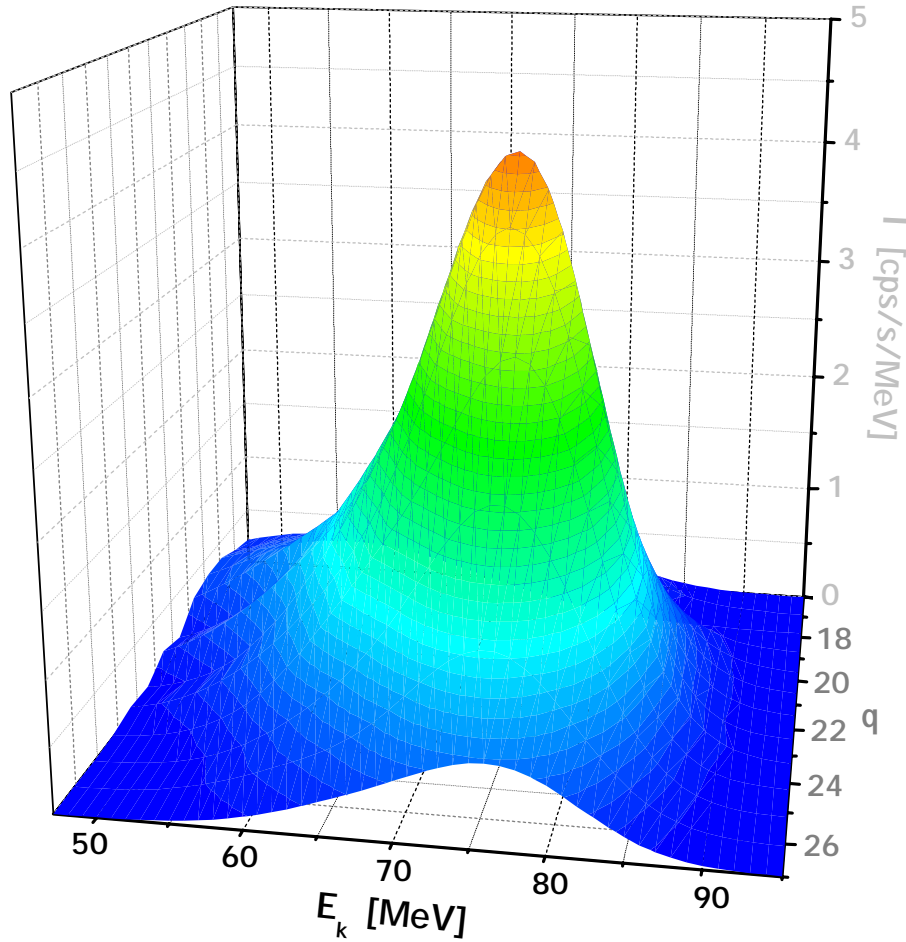


FIG. 4.1 – Représentation de la masse 136 pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ selon les dimensions E_k et q . Le rendement de cette masse correspond au volume de la distribution.

A cause de la combustion de la cible, c'est à dire de la perte de noyaux due aux réactions de fission, la durée de vie des cibles est d'environ de deux semaines. Au-delà de cette durée, le taux de comptage devient insuffisant pour continuer les mesures.

Une distribution en charge ionique à l'énergie cinétique E_{k_j} peut nécessiter la mesure de plus de quinze charges, alors qu'une distribution en énergie cinétique à la charge ionique q_i couvre une quarantaine de MeV. Avec des temps de mesure qui peuvent aller de la minute pour les noyaux au sommet des distributions, à plus d'une heure pour ceux qui ont un rendement plus faible, la détermination d'une seule masse avec cette méthode nécessite presque un jour entier de mesures. Ce problème est encore plus important pour la détermination des rendements isotopiques où le temps minimum d'acquisition d'un spectre est de 20 min, et peut aller jusqu'à plusieurs heures pour les points en queues de distributions.

Pour cette raison les rendements de fission sur le spectromètre Lohengrin sont déterminés à partir de la mesure d'une seule distribution en charge ionique à l'énergie cinétique E_{k_j} et d'une seule distribution en énergie cinétique à la charge ionique q_i uniquement.

Dans ces conditions, en posant $R(q_i)$ et $S(E_{k_j})$ l'intégrale des distributions en charge et en énergie, le rendement de la masse A est alors égal à :

$$Y(A) = \frac{R(\mathbf{q}_i) \times S(\mathbf{E}_{k_j})}{Y(A, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})} \quad (4.1)$$

La démonstration de cette équation est donnée en Annexe A.

4.4 Rendements $Y_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$ et $Y_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{Z}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$

Les rendements $Y(A, q_i, E_{k_j})$ et $Y(A, Z, q_i, E_{k_j})$ pour une charge ionique q_i et une énergie cinétique E_{k_j} données sont déterminés à partir des mesures expérimentales. Ils correspondent aux valeurs mesurées $Y_{\text{exp}}(A, q_i, E_{k_j})$ ou $Y_{\text{exp}}(A, Z, q_i, E_{k_j})$ auxquelles un certain nombre de corrections ont été faites (Chapitre 4 paragraphe 4.5).

Pour les mesures avec la chambre à ionisation, le rendement $Y_{\text{exp}}(A, q_i, E_{k_j})$ est obtenu en sommant tous les ions de masse A , de charge ionique q_i et d'énergie cinétique E_{k_j} . Cette sommation se fait en intégrant la tâche correspondante à la masse étudiée sur les spectres obtenus par le logiciel d'acquisition MPAWIN. La figure 4.2 montre un exemple de spectre obtenu pour la masse 136 à la charge ionique 21 et l'énergie cinétique 64 MeV pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$. Le rendement $Y_{\text{exp}}(136, 21, 64)$ est donné par le nombre d'ions de la tâche qui correspond à cette masse (cercle en rouge).

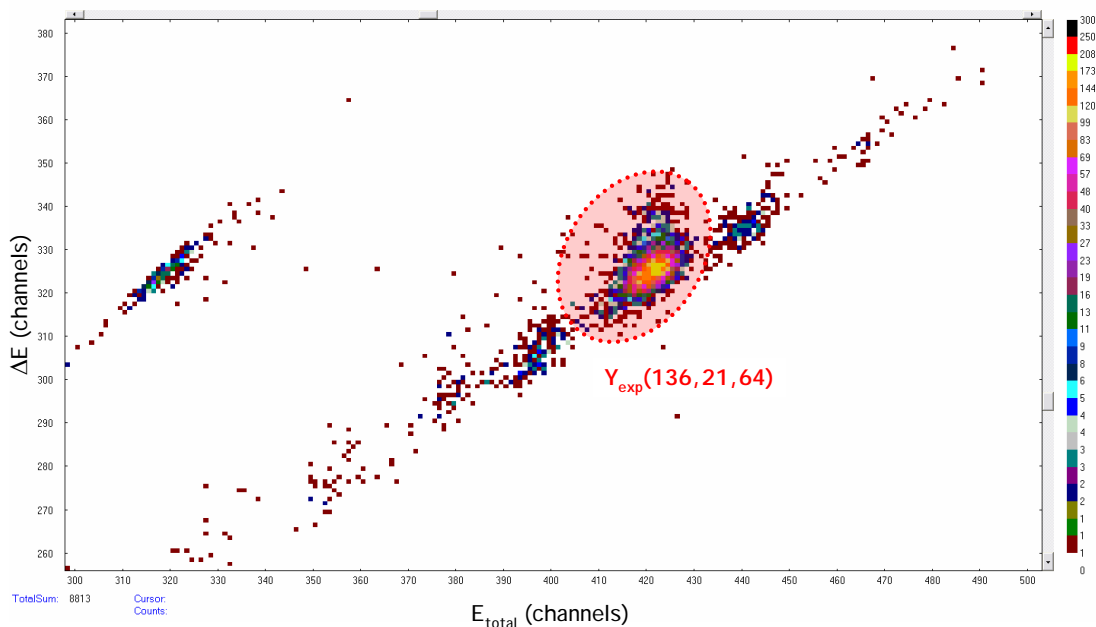


FIG. 4.2 – Exemple de spectre obtenu pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$. Le rendement $Y_{\text{exp}}(136, 21, 64)$ correspond aux nombre d'ions de la tâche en rouge.

Pour les mesures par spectrométrie γ , le rendement $Y_{\text{exp}}(A, Z, q_i, E_{k_j})$ correspond à l'intégrale de la raie γ de l'isotope Z mesuré.

Des exemples de spectres sont donnés sur les figures 4.3, 4.4, 4.5 et 4.6. Ils sont analysés grâce au logiciel TV qui a été conçu à Mayence et qui permet de visualiser les spectres ainsi que de fitter les pics. Optimisé dans les fits “multi-pics”, il permet de fitter des pics qui se recouvrent en leur imposant comme contrainte une seule et même largeur. Le choix pour la fonction du fit peut se faire entre une distribution gaussienne ou gamma. Au cours de nos mesures, tous les pics ont été ajustés par des fonctions gaussiennes. Elles correspondent à la distribution qui reproduit le mieux la majorité des pics γ mesurés. L'intégrale de ces fits ainsi que les erreurs associées, erreurs dues à la statistique et au fit, sont directement évaluées par le programme TV. L'intégrale du pic γ correspond au rendement $Y_{\text{exp}}(A, Z, q_i, E_{k_j})$.

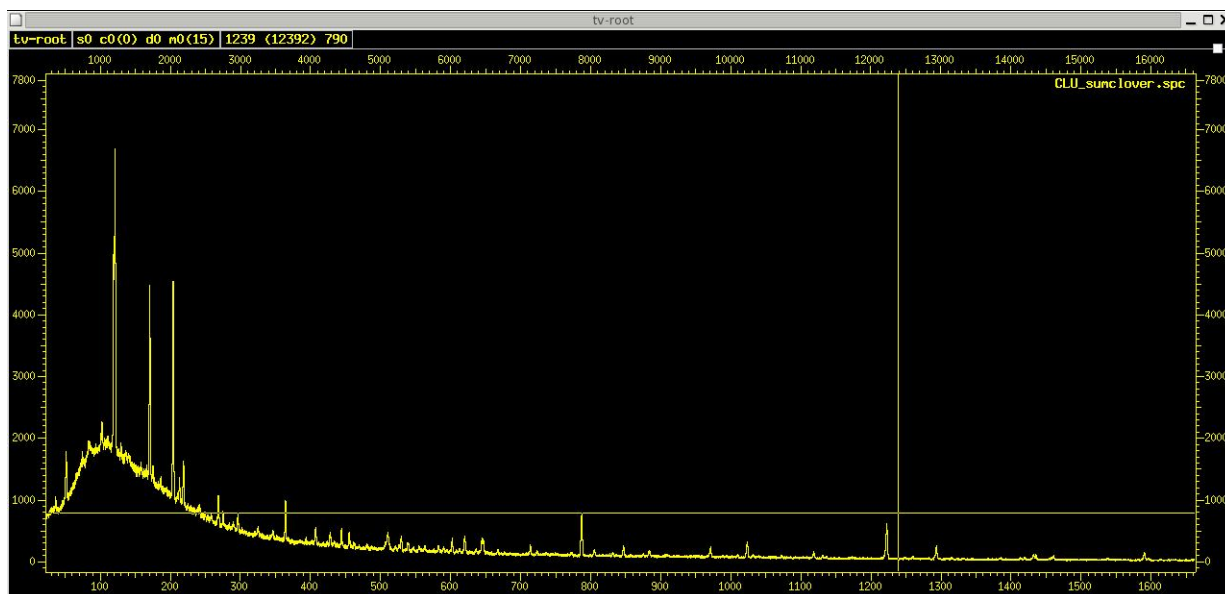


FIG. 4.3 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 137$, la charge ionique $q = 21$ et l'énergie cinétique $E_k = 52$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1800 s.



FIG. 4.4 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 140$, la charge ionique $q = 23$ et l'énergie cinétique $E_k = 67$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1200 s. On peut voir sur ce spectre trois régions sélectionnées. Les deux régions les plus extrêmes, les plus à gauche et à droite, permettent d'évaluer un ajustement du bruit de fond qui est donné par la ligne verte. La région du milieu représente les pics γ à fitter. Leur nombre est choisi par l'utilisateur au vue de la contamination de cette région par des raies γ parasites. L'isotope mesuré sur cet exemple correspond au pic d'énergie 602,3 keV du Césium.

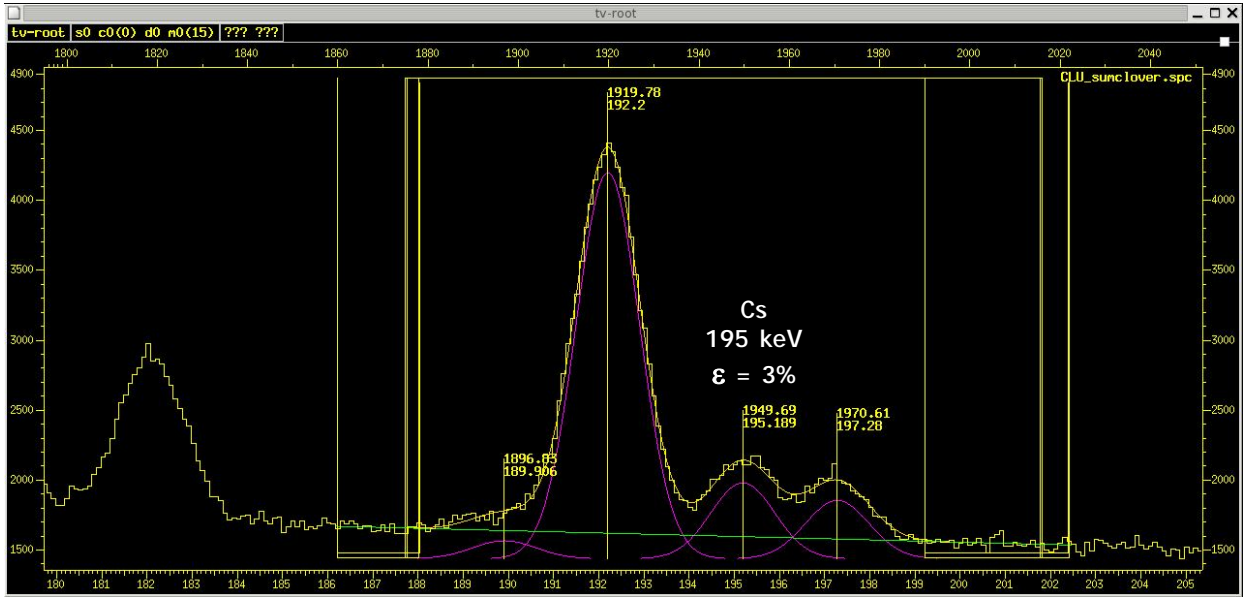


FIG. 4.5 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 143$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 62$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1200 s. Sur ce spectre la courbe en jaune correspond au fit total des trois pics γ , chacun représenté séparément par une gaussienne en violet.

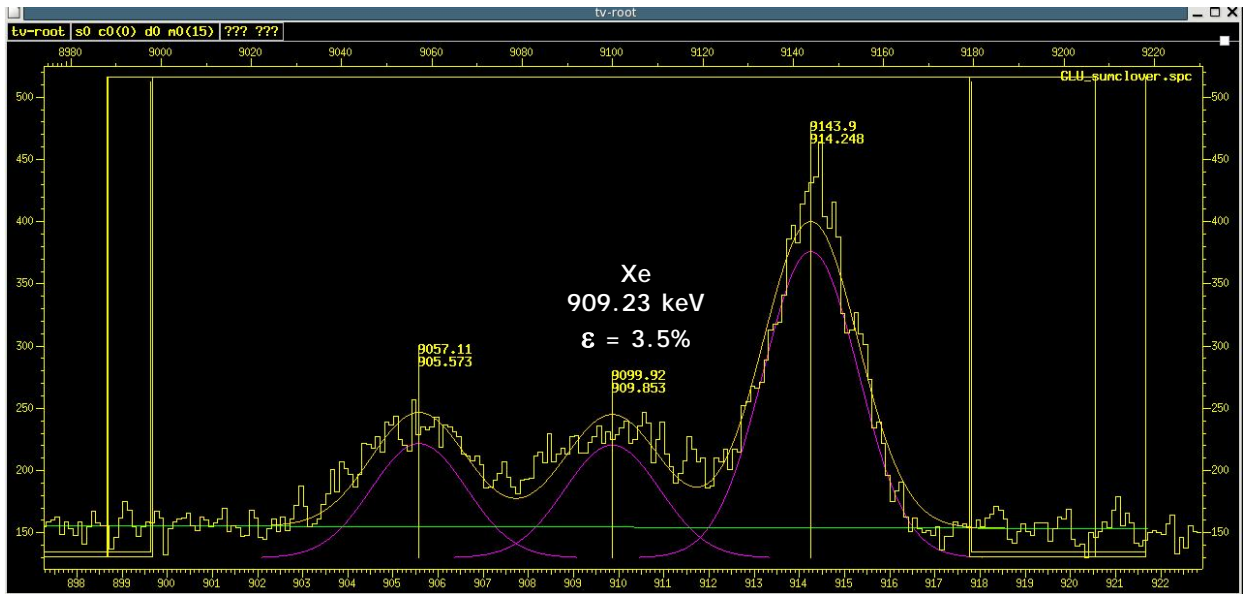


FIG. 4.6 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 141$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 53$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.

4.5 Corrections expérimentales systématiques

Afin de déterminer les rendements isobariques $Y(A, q_i, E_{k_j})$ et isotopiques $Y(A, Z, q_i, E_{k_j})$, un certain nombre de corrections sont à prendre en compte sur les mesures $Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})$ et $Y_{exp}(A, Z, q_i, E_{k_j})$.

Ce paragraphe énumère toutes les corrections communes aux expériences avec la chambre à ionisation et par spectrométrie γ .

4.5.1 Temps d'acquisition des spectres

La première correction qu'il faut prendre en compte pour pouvoir comparer les différents résultats entre eux est le temps d'acquisition des spectres. Il suffit pour cela de diviser les rendements $Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})$ et $Y_{exp}(A, Z, q_i, E_{k_j})$ par les temps de mesure T_{mes} .

4.5.2 Dispersion en énergie du spectromètre

Comme on intègre les produits de fission selon une dispersion $\Delta E_{k_{LOH}}$ d'environ 1% pour une énergie cinétique de 1 MeV, il faut tenir compte de la résolution en énergie du Lohengrin.

Son fonctionnement est tel que la dispersion en énergie $\Delta E_{k_{LOH}}$ est proportionnelle à l'énergie cinétique $E_{k_{LOH}}$ des produits de fission lorsqu'ils pénètrent dans le spectromètre : $\Delta E_{k_{LOH}} = Cst \cdot E_{k_{LOH}}$, avec $E_{k_{LOH}}$ l'énergie cinétique des produits de fission mesurée par le spectromètre après traversée de la cible et de la feuille de Nickel.

Il faut diviser toutes les valeurs mesurées par $E_{k_{LOH}}$ pour prendre en compte cet effet.

4.5.3 Perte d'énergie cinétique dans la cible et la feuille de Nickel

Lorsque les produits de fission pénètrent dans le spectromètre de masse, ils ont perdu une partie de leur énergie cinétique en traversant la cible et la feuille de Nickel.

La valeur de leur énergie juste après l'émission des neutrons prompts correspond à l'énergie $E_{k_{LOH}}$ mesurée par le spectromètre à laquelle il faut ajouter l'énergie déposée dans la cible et dans la feuille de Nickel. La perte de cette énergie est calculée par le logiciel TRIM [Z⁺85]. Pour cela, on suppose que les ions traversent en moyenne la moitié de la cible et toute la feuille de Nickel.

A titre d'exemple, pour des mesures de rendements en masse, les cibles contiennent toujours environ 150 μg d'actinide plus une feuille de Nickel de 0,25 μm d'épaisseur. Les produits de fission perdent de l'ordre de 25% de leur énergie dans la cible ($\gtrsim 2$ MeV) et 75 % dans la feuille de Nickel ($\simeq 6$ MeV).

4.5.4 Flux du réacteur

En condition de fonctionnement normal du réacteur le flux de neutrons est relativement stable. Cependant nos mesures n'ont pas toujours été réalisées dans de telles conditions, et ces instabilités ont dûes être prises en compte.

Comme le flux de neutrons thermiques à l'entrée du spectromètre n'est pas directement mesuré, une correction précise de ses variations est difficile à prendre en compte. Cependant la puissance thermique du réacteur est mesurée à chaque instant. Elle est proportionnelle au flux de neutrons global au niveau du coeur du réacteur. Même si celui-ci peut varier localement, au premier ordre ces différences peuvent être négligées. Les corrections sur les fluctuations du flux ont donc été prises en compte par rapport aux fluctuations de la puissance thermique du réacteur.

Un exemple de ces variations est donné figure 4.7, elles ont été mesurées au cours de la détermination des rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ (septembre 2007).

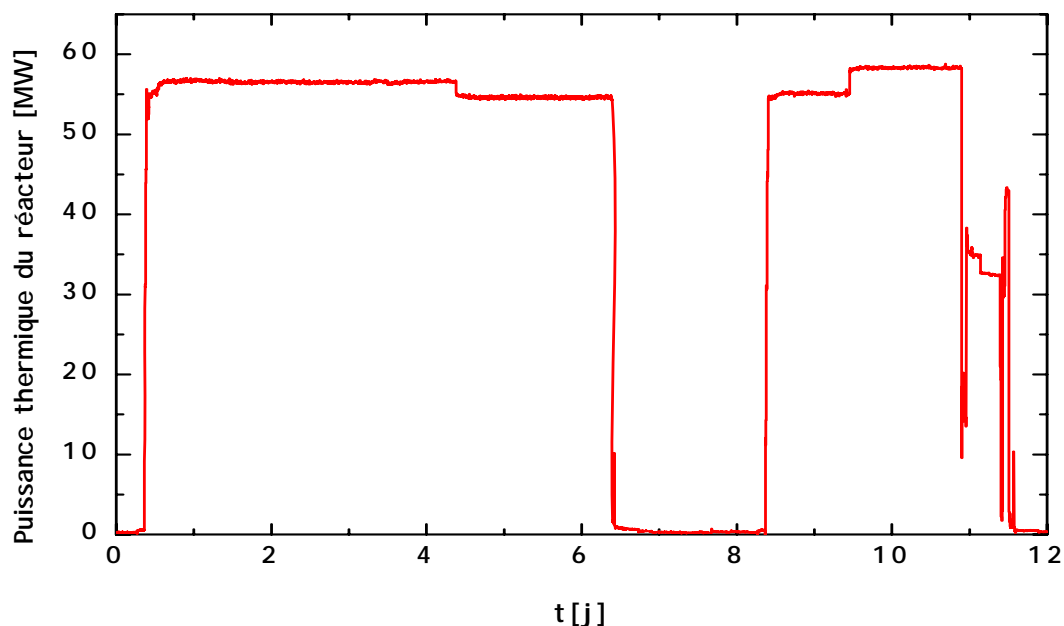


FIG. 4.7 – Variation de la puissance thermique du réacteur au cours de la mesure des rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

Afin d'améliorer la prise en compte de ce phénomène, des mesures du flux en continu par chambres à fission placées dans le canal du spectromètre sont prévues dans les cycles qui viennent.

4.5.5 Combustion de la cible

Lorsqu'une cible d'actinide est soumise à un important flux de neutrons, elle perd au cours du temps une quantité de matière non négligeable. L'origine de cette perte est double, tout d'abord à cause des atomes qui fissionnent, mais aussi à cause d'une perte dites par "sputtering". Cette dernière est due à des phénomènes atomiques où des atomes d'actinides sont éjectés de la cible par collisions.

Une cible peut perdre au cours d'une mesure jusqu'à 80% de sa matière initiale en une semaine.

Pour tenir compte de ce phénomène, la perte d'actinide est évaluée en mesurant régulièrement une masse de référence. Tracée en fonction du temps, l'intensité de cette masse correspond à la courbe dite de "burn-up". La perte de matière est alors estimée par un fit sur les points mesurés. Si la combustion strictement nucléaire de la cible suit une exponentielle décroissante (équation 4.2), le fort échauffement qu'elle subit au cours des premières heures engendre des pertes de matière importantes qui résultent de phénomènes atomiques [B⁺07]. Pour tenir compte de ces deux effets le burn-up d'une cible est ajusté par deux exponentielles décroissantes (équation 4.3). Le terme de courte durée de vie

exprime les pertes de matière au cours des premières heures de la cible alors que celui de longue durée de vie représente la combustion nucléaire à proprement parler.

$$I(t) = I_0 e^{-\alpha.t} \quad (4.2)$$

$$I(t) = I_0 e^{-\alpha_0.t} + I_1 e^{-\alpha_1.t} \quad (4.3)$$

Paramètres de fit pour les trois noyaux mesurés :

Réaction	I_0	α_0	I_1	α_1
$^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$	0,38	0,79	0,64	0,07
$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$	0,25	1,47	0,77	0,23
$^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$	0,21	6,67	0,85	0,24

La référence choisie pour les mesures avec la chambre à ionisation correspond à l'intégrale de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 à la charge ionique 21. Pour les rendements isotopiques c'est la raie γ du noyau ??? de 332,7 keV qui a été prise comme référence.

Les différents burn-up pour les mesures de rendements en masses des trois noyaux $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ sont tracés figure 4.8.

A cause des contraintes de temps de faisceau, deux expériences différentes ont été nécessaires à la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$. Les courbes de burn-up de ces deux cibles sont données figure 4.9.

En plus de la perte d'intensité de la cible deux phénomènes doivent être étudiés :

- La variation de l'énergie cinétique moyenne en fonction du temps.
- La variation des largeurs de distribution.

Ces deux quantités ont tendances à diminuer à cause de la perte de matière de la cible. Leurs variations en fonction du temps pour la masse de référence de la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ sont données tableau 4.1. Il montre que pour des temps de mesure de l'ordre de la semaine, les variations de l'énergie cinétique moyenne et des largeurs de distribution peuvent être négligées.

tps [min]	Y [cps/s]	$\langle E_k \rangle$ [MeV]	σ_{E_k} [MeV]
82	1,000 \pm 1,6 E-2	74,7 \pm 0,2	5,6 \pm 0,24
1046	0,813 \pm 1,2 E-2	74,4 \pm 0,2	5,6 \pm 0,20
1713	0,733 \pm 1,3 E-2	74,2 \pm 0,1	5,5 \pm 0,12
2355	0,671 \pm 1,1 E-2	74,3 \pm 0,1	5,6 \pm 0,11
3260	0,618 \pm 1,1 E-2	74,4 \pm 0,1	5,5 \pm 0,05
3778	0,582 \pm 1,0 E-2	74,5 \pm 0,1	5,6 \pm 0,11
4527	0,545 \pm 0,9 E-2	74,2 \pm 0,1	5,6 \pm 0,10
5214	0,518 \pm 0,9 E-2	74,2 \pm 0,1	5,5 \pm 0,11
6140	0,482 \pm 0,2 E-2	74,2 \pm 0,1	5,6 \pm 0,10
6640	0,464 \pm 0,2 E-2	74,4 \pm 0,1	5,7 \pm 0,10
6873	0,436 \pm 0,3 E-2	74,3 \pm 0,1	5,5 \pm 0,11
8217	0,416 \pm 0,2 E-2	74,2 \pm 0,1	5,8 \pm 0,13
9545	0,436 \pm 0,1 E-2	74,3 \pm 0,2	5,7 \pm 0,11
10448	0,380 \pm 0,1 E-2	74,3 \pm 0,1	5,8 \pm 0,12

TAB. 4.1 – Intensités, énergies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour les différentes distributions en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ en fonction du temps.

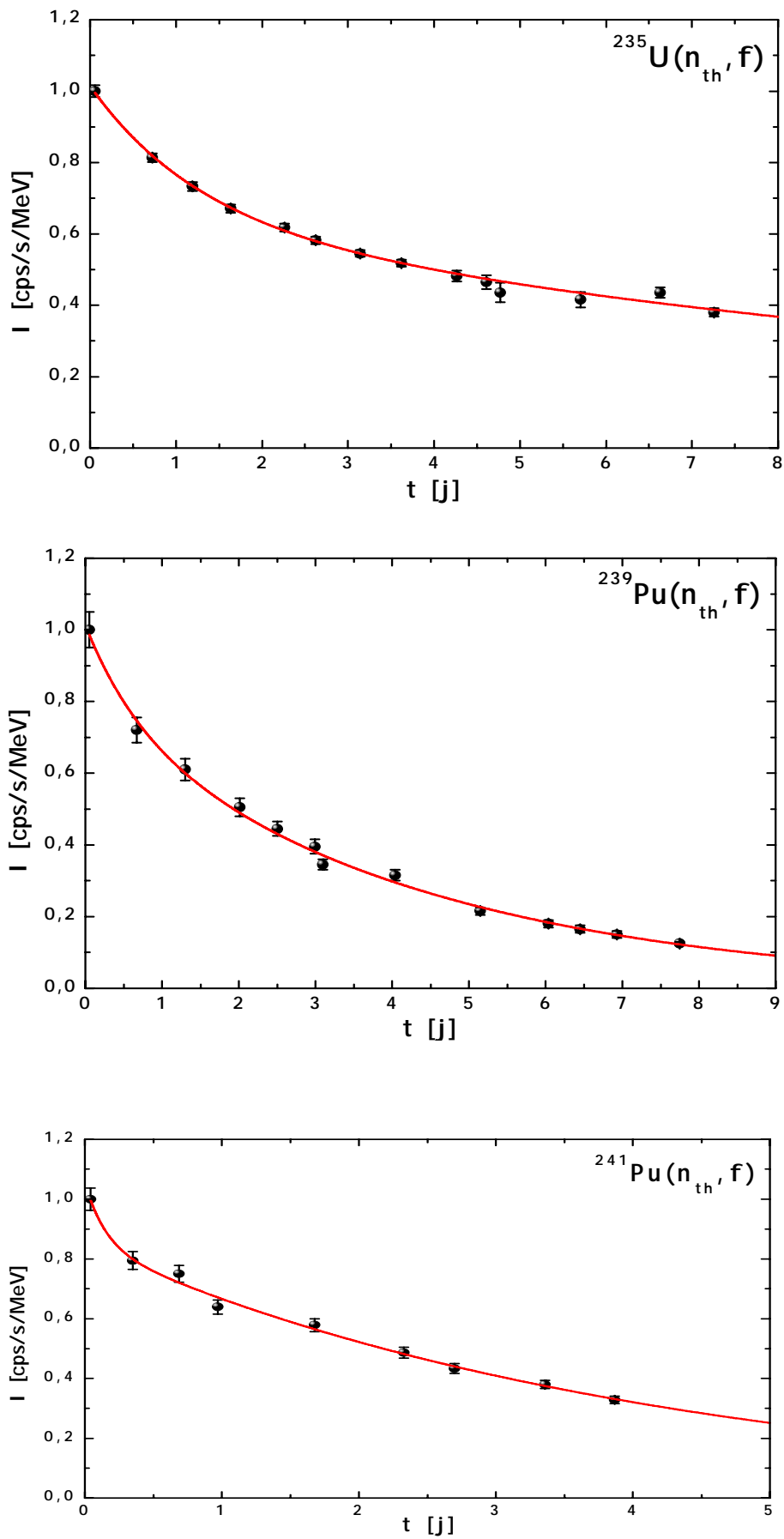


FIG. 4.8 – L'intégrale de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 à la charge 21 est tracée en fonction du temps pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$. Elles correspondent aux burn-up de ces trois cibles.

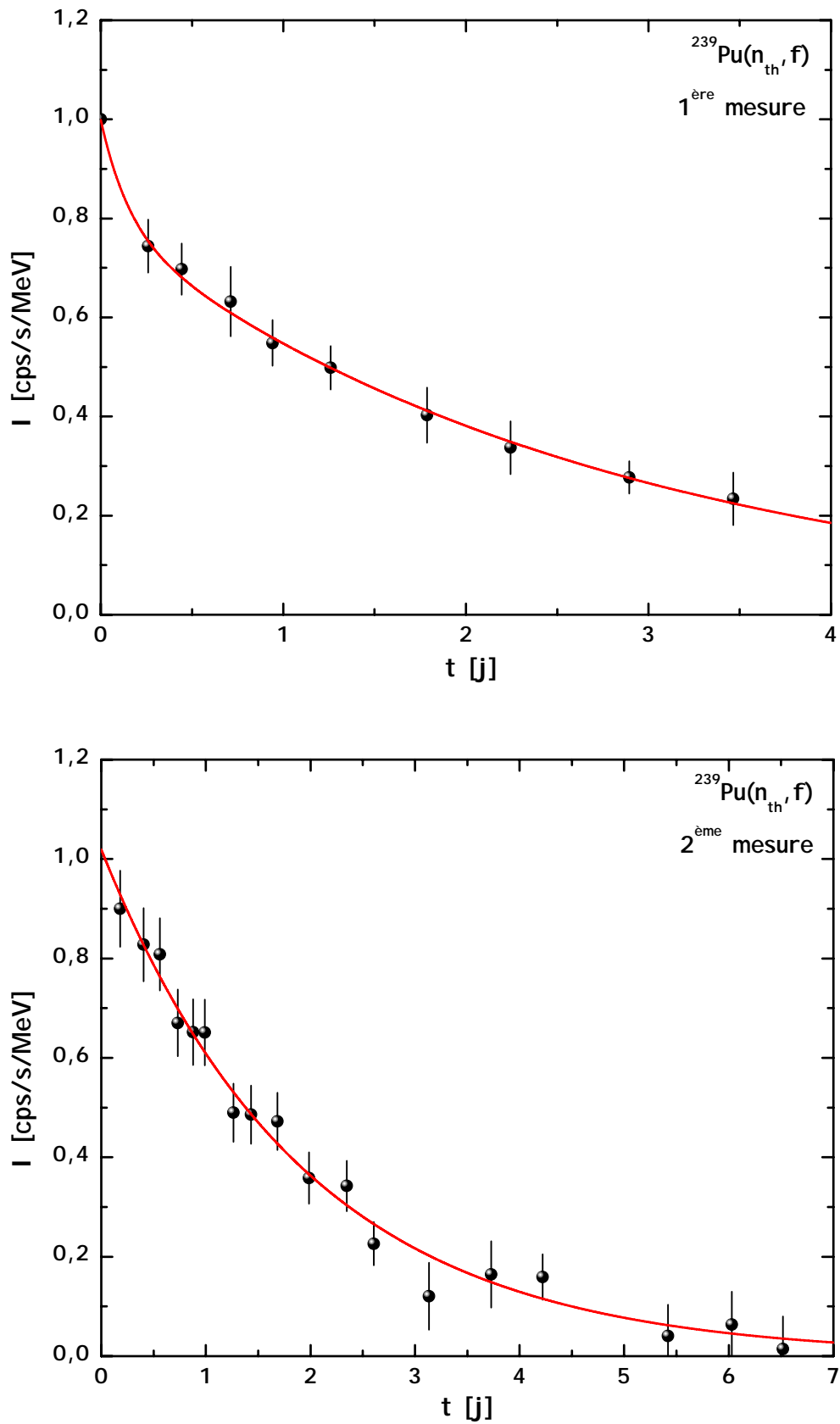


FIG. 4.9 – Burn-up des deux différentes mesures dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$: raie γ de 332,7 keV du noyau ??? en fonction du temps.

4.5.6 Conclusion

Le rendement $Y(A, q_i, E_{k_j})$ de la masse A à la charge ionique q_i et l'énergie cinétique E_{k_j} est égale à :

$$Y(A, q_i, E_{k_j}) = \frac{Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})}{E_{LOH} \times t_{mes} \times C_{BU+flux}}$$

La figure 4.10 présente l'impact des différentes corrections sur une distribution en énergie cinétique pour la masse 133 à la charge ionique 21 de la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

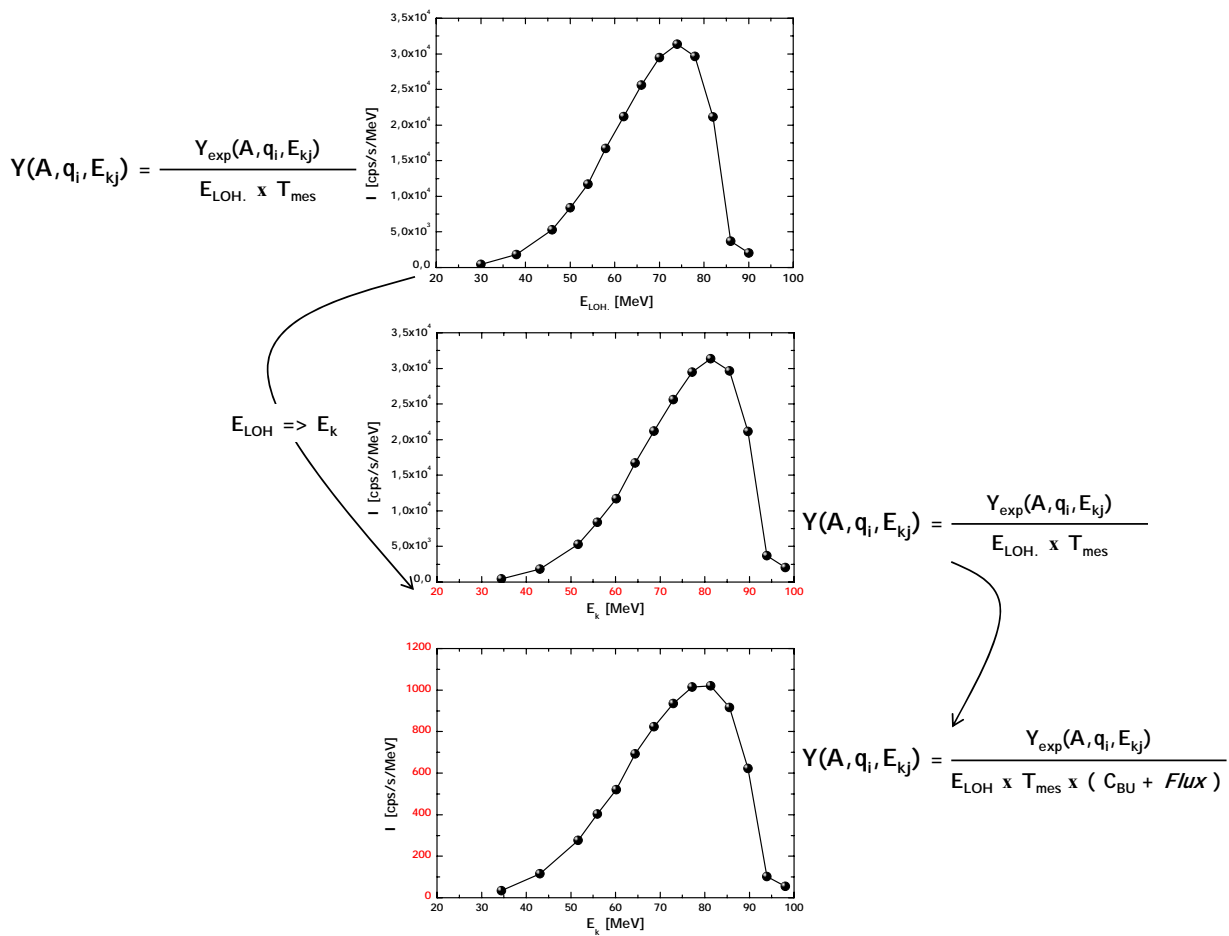


FIG. 4.10 – Impact des différentes corrections sur une distribution en énergie cinétique ($A=133$, $q=21$ pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$). La figure du milieu correspond à la distribution du haut après la prise en compte de la perte d'énergie des produits de fission dans la cible, alors que celle du bas montre l'effet des corrections du burn-up et du flux du réacteur. Ces dernières restent faibles en fonctionnement normal, puisque le flux varie peu, et que la combustion de la cible reste faible le temps d'une mesure de distribution.

Les mesures par spectrométrie demandent un nombre de corrections plus important dû à la présence des détecteurs Germanium.

4.6 Corrections expérimentales dues aux détecteurs Germanium

La détermination du rendement $Y(A, Z, q_i, E_{k_j})$ consiste à mesurer l'intensité d'une des raies γ du noyau (A, Z) issues de sa décroissance β^- . Il faut donc renormaliser cette valeur sur le rapport d'embranchement du pic γ considéré. Les données sur les rapports d'embranchement proviennent des bibliothèques nucléaires.

En plus de cette renormalisation et des corrections énumérées dans le paragraphe précédent, il faut tenir compte de l'efficacité des détecteurs Germanium pour les énergies considérées.

4.6.1 Etalonnage des détecteurs germanium

Avant d'évaluer la courbe d'efficacité des détecteurs il faut au préalable les étalonner en énergie.

La courbe d'étalonnage d'un détecteur germanium, c'est à dire la correspondance canal-énergie, n'est jamais parfaitement linéaire. L'équation qui relie les énergies des gammas aux canaux du détecteur est généralement donnée selon une loi polynomiale [Kno99] :

$$E_{\gamma_i} = \sum_{n=0}^N a_n C_i^n$$

Cependant, le degré de non-linéarité de l'énergie en fonction du canal est dans la plupart des cas très faible, et au vue de la précision de nos mesures cette dépendance a pu être négligée.

La courbe d'étalonnage des détecteurs pour chacune des expériences a été tracée pour une seule et même masse A et charge nucléaire Z choisie telle que les énergies de ses niveaux de décroissance soient très bien connues dans la littérature.

4.6.2 Efficacité des détecteurs Germanium

L'efficacité d'un détecteur germanium peut être exprimée en fonction de son coefficient d'absorption photoélectrique τ et Compton σ à l'énergie E_γ [Kno99], équation 4.4.

$$\epsilon = \frac{K[\tau + \sigma Q e^{-RE_\gamma}]}{\tau + \sigma} \{1 - e^{-P(\tau + \sigma)}\} \quad (4.4)$$

Les valeurs des paramètres K , Q , R et P sont données par le fit selon l'équation 4.4 des points mesurés (figure 4.11). Cette équation se doit, sur une gamme d'énergie qui va de quelques dizaines de keV à environ 10000 keV, de retrouver la forme typique de l'efficacité d'un détecteur germanium.

Cependant, la gamme en énergie des γ mesurés au cours des décroissances β^- des produits de fission est beaucoup moins étendue, elle va de la centaine de keV à quelques milliers. Il n'est donc pas nécessaire d'ajuster les points expérimentaux par une formule aussi complexe et complète, un fit selon une relation de puissance est suffisant [Gau] :

$$\epsilon(E_\gamma) = A.E_\gamma^B$$

La figure 4.12 montre la courbe d'efficacité de la mesure du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ de juin 2008.

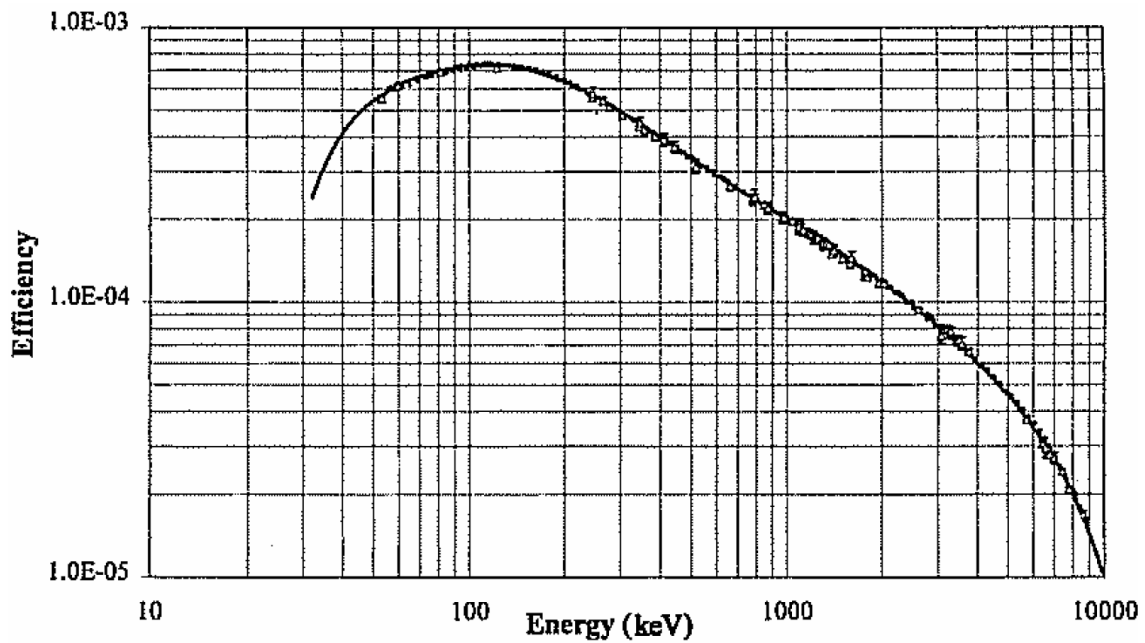


FIG. 4.11 – Courbe d'efficacité typique pour un détecteur germanium. Les points représentent les valeurs expérimentales alors que le fit est donné par la courbe continue [Kno99].

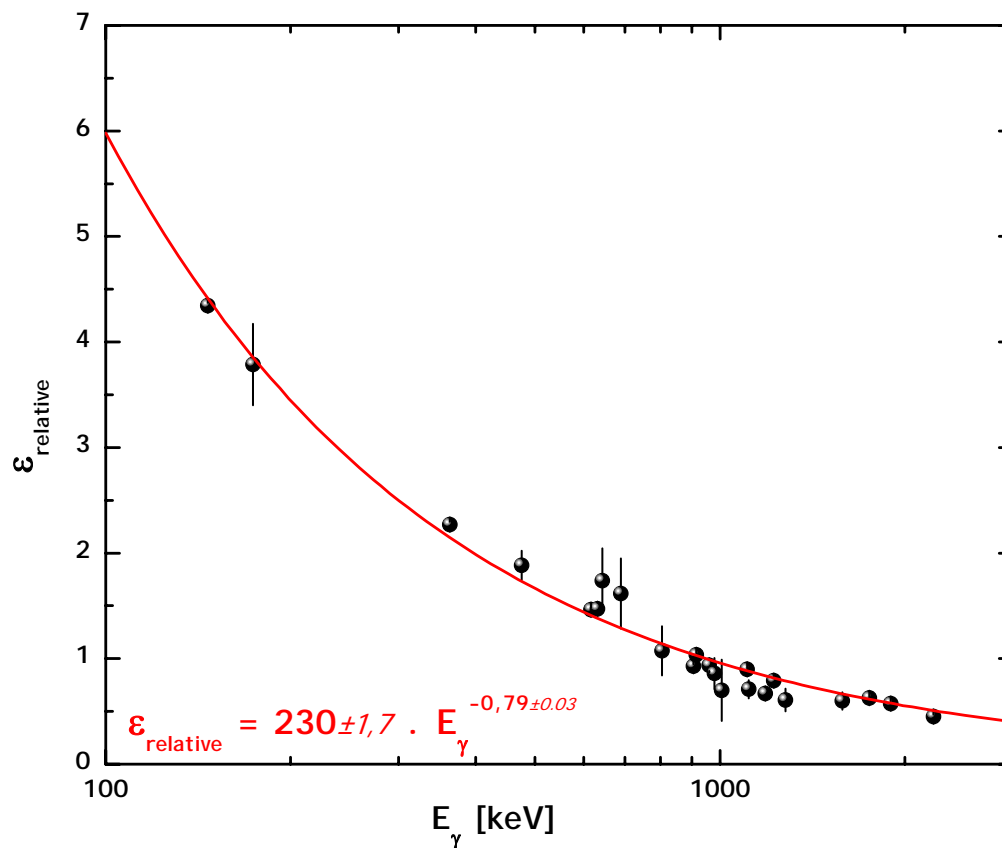


FIG. 4.12 – Courbe d'efficacité des détecteurs germanium pour la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ de juin 2008. Les points représentent les valeurs expérimentales alors que le fit est donné par la courbe continue.

4.6.3 Coïncidences β - γ

Il était envisagé, dans un premier temps, d'effectuer toutes les mesures en coïncidences β - γ .

Cependant, parce que l'efficacité du détecteur β (scintillateur plastique) n'était pas très grande, les temps de mesure nécessaires se sont avérés beaucoup trop longs. En effet, sa position, à l'extérieur de la chambre à vide, n'est pas optimum pour une bonne détection des électrons.

Il est donc envisagé pour les expériences futures de construire une chambre à vide à l'intérieur de laquelle sera fixé le détecteur.

Un tel dispositif devrait améliorer considérablement les conditions de l'expérience. En améliorant l'efficacité de la détection des électrons, il permettra des mesures en coïncidences β - γ , permettant de nettoyer les spectres γ du bruit de fond extérieur (seuls les γ qui proviennent de la décroissance β^- des produits de fission seront sélectionnés).

Chapitre 5

Distributions en énergie cinétique et charge ionique

5.1 Etude des distributions en charge ionique

5.1.1 Forme typique des distributions

La forme de la distribution en charge ionique trouve son explication en physique atomique.

En traversant la cible et la feuille de Nickel placée devant, les produits de fission échangent des électrons avec la matière. Pour les cibles utilisées sur le Lohengrin, l'épaisseur du milieu traversé est toujours suffisamment élevée pour que les ions atteignent une distribution d'équilibre, appelée ECSD (Equilibrium Charge-State Distribution). La forme de cette distribution résulte de plusieurs effets aléatoires, comme la capture électronique, la perte d'électrons et des effets de surface [BR82]. Par conséquent, l'état de charge final est déterminée par ces différentes contributions. Cet équilibre dépend du milieu traversé, mais aussi de la charge nucléaire et de l'énergie cinétique de l'ion [S⁺86]. Compte tenu des énergies typiques des produits de fission lourds, les études de Y. Baudinet-Robinet montrent que la distribution d'équilibre des charges peut être bien décrite par une fonction gaussienne [BR82, BR78]. Quelques exemples de distributions en charge ionique pour une énergie cinétique donnée obtenues pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ sont données figure 5.1. Ils confirment la forme attendue pour ces distributions, c'est à dire des distributions gaussiennes.

5.1.2 Charge ionique moyenne et largeur de distribution

Les valeurs moyennes $\langle q \rangle$ et les largeurs de distribution σ_q sont calculées par les formules du premier et du second moment respectivement.

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle q \rangle = \frac{\sum_i (q_i \times Y(A, q_i, E_{k_j}))}{\sum_i Y(A, q_i, E_{k_j})} \\ \sigma_q = \frac{\sum_i Y(A, q_i, E_{k_j}) \times (q_i - \langle q \rangle)^2}{\sum_i Y(A, q_i, E_{k_j})} \end{array} \right.$$

Les charges ioniques moyennes et les largeurs des distributions (obtenues à l'énergie cinétique qui maximise le taux de comptage) sont représentées sur les figures 5.2 en fonction des masses pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$, et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$.

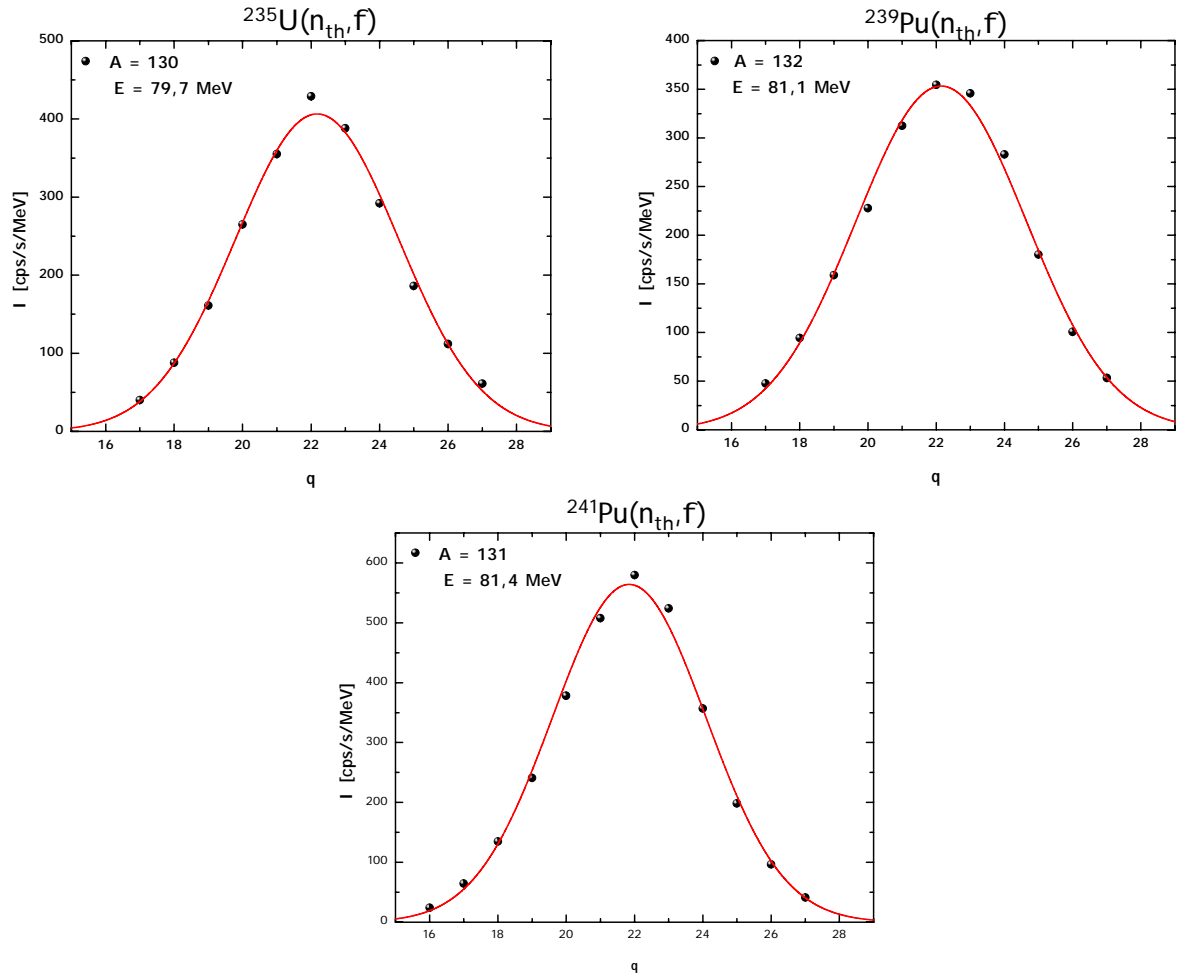


FIG. 5.1 – Exemples de distributions typiques en charge ionique ajustées par une distribution gaussienne pour les trois noyaux mesurés.

Les valeurs des charges ioniques moyennes et des largeurs de distribution résultent de deux phénomènes qui se compensent l'un l'autre.

- D'une part, le nombre d'électrons disponibles qui peuvent être cédés au milieu traversé est d'autant plus important que la masse de l'ion est grande. Ainsi la charge ionique moyenne et la largeur de distribution des produits de fission auraient tendance à augmenter avec la masse.
- Mais d'autre part, plus la masse augmente et plus l'énergie cinétique des produits de fission diminue, limitant ainsi le nombre d'échanges électroniques entre la matière et l'ion. Ce second aspect a donc un effet contraire au précédent.

Ces considérations seront discutées plus en détail dans le paragraphe 5.1.4 où ces résultats sont comparés à des modèles à même de prévoir ces caractéristiques.

A ceci s'ajoute la présence pour un certain nombre de masse d'états isomériques qui viennent perturber les distributions attendues (paragraphe 5.1.3).

5.1.3 Mise en évidence d'isomères nanosecondes

Si les distributions typiques en charge ionique correspondent à une simple gaussienne, les mesures ont mis en évidence un certain nombre de masse pour lesquelles les distributions en charge ionique semblaient être composées de deux gaussiennes.

Pour ces noyaux, la première gaussienne est centrée autour de la charge 22. La seconde, qui ne résulte plus d'un effet statistique, fluctue entre des charges ioniques plus élevées, jusqu'à la charge 27 (figures 5.3). La figure 5.4 permet de mettre en évidence cet effet pour les isotopes aussi bien que pour les masses, et par la-même exclus un biais de mesure dû à la chambre à ionisation.

Si la gaussienne de gauche représente la distribution en charge ionique de l'état fondamental du noyau mesuré, la gaussienne de haute charge correspond alors à la distribution en charge d'un état isomérique du noyau considéré, état de temps de demie-vie de l'ordre de la nanoseconde.

Des structures similaires ont déjà été observées, que ce soit dans la région des produits de fission léger [W^{+78}] ou bien dans celle des produits de fission lourds [B^{+89}] (figure 5.5).

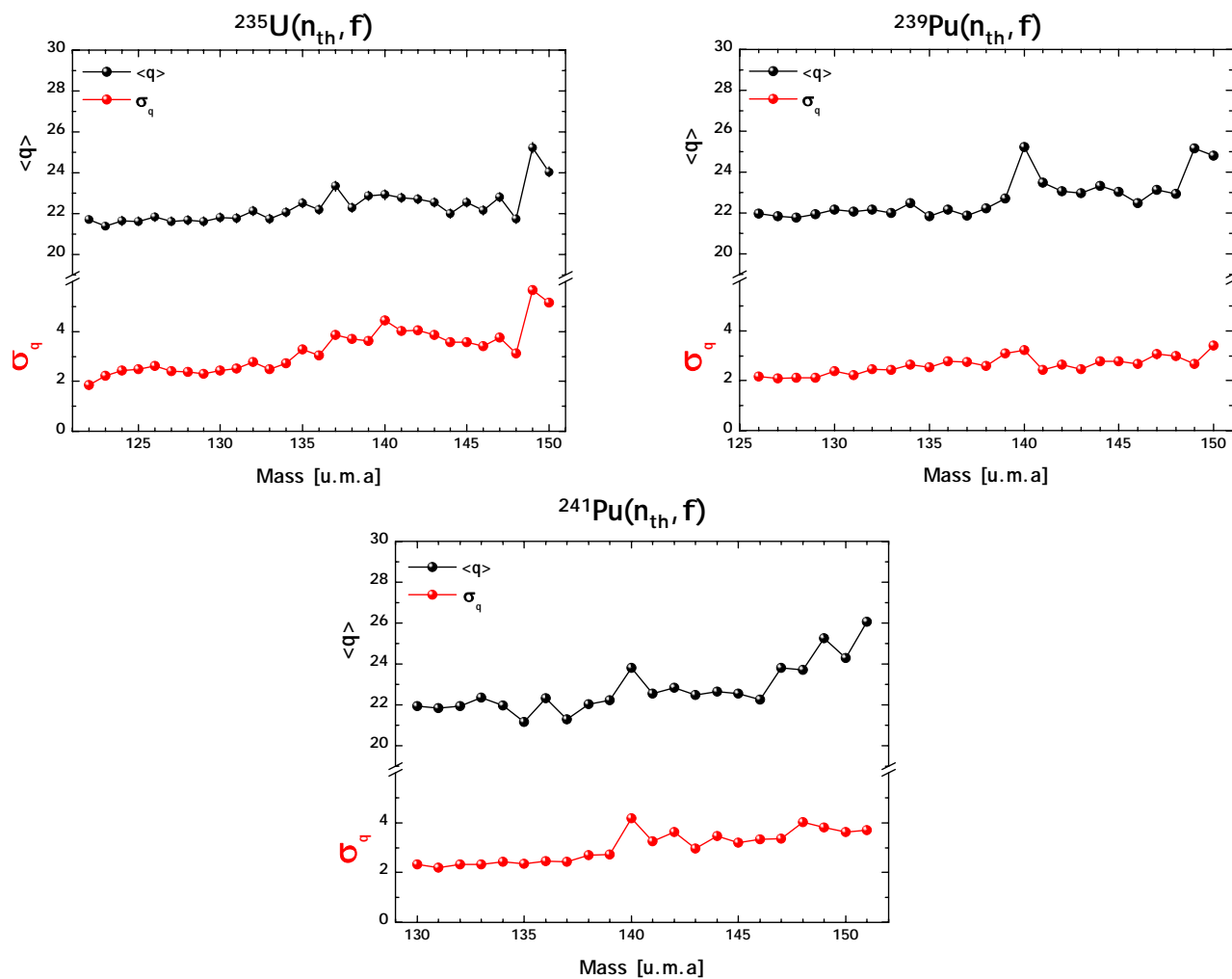


FIG. 5.2 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour les trois noyaux mesurés.

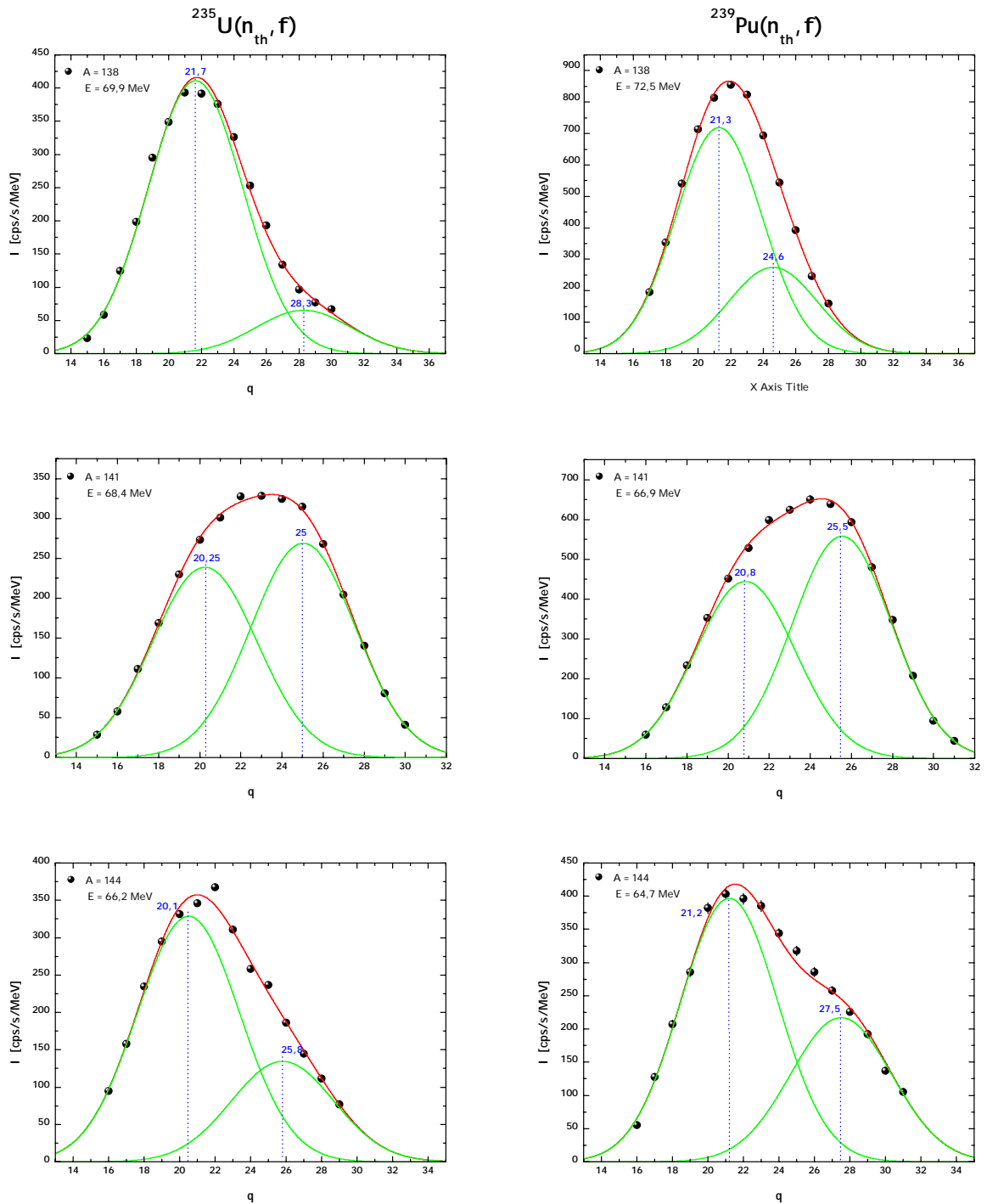


FIG. 5.3 – Exemple de distributions en charge ionique mettant en évidence la présence d'isomère nanoseconde pour les trois noyaux mesurés.

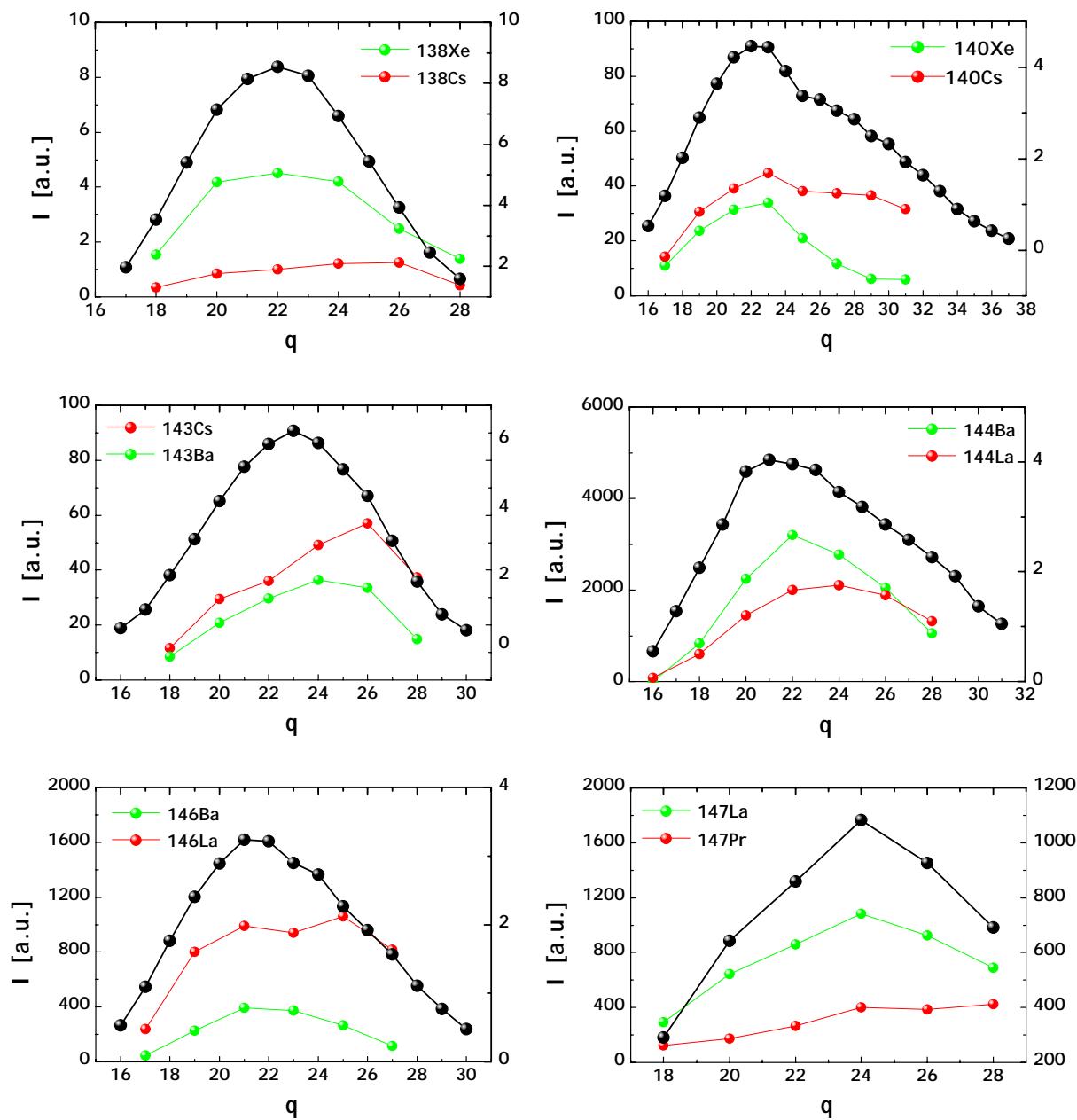


FIG. 5.4 – Mise en évidence des isomères nanosecondes pour les masses et les isotopes des produits de fission de la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

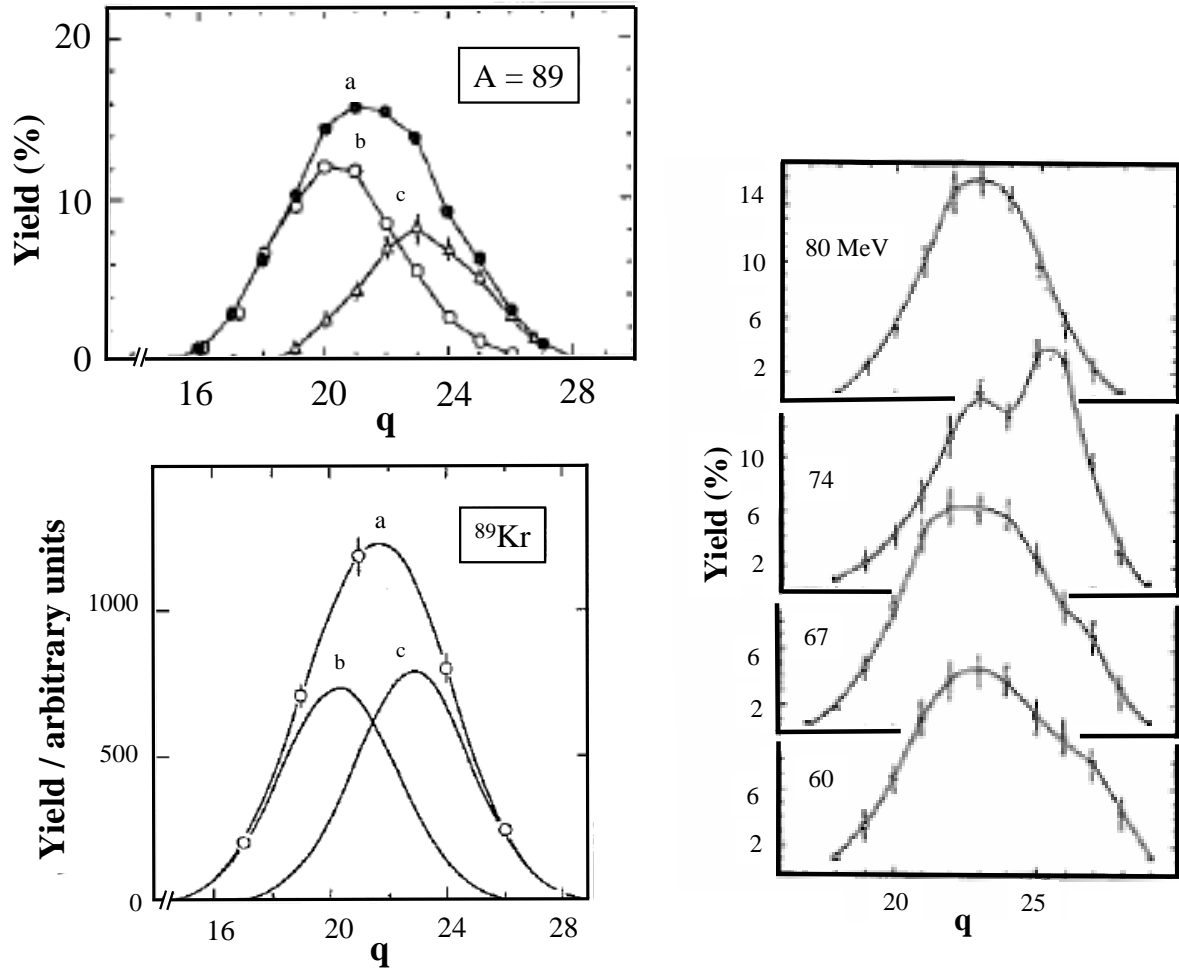


FIG. 5.5 – Distributions en charge ionique pour la région des produits de fission légers (figures de gauche [W⁺78] : $A = 89$, $E_k = 97,3 \text{ MeV}$) et pour la région des produits de fission lourds (figure de droite [B⁺89] : $A = 142$). La distribution de la masse 89 (figure en haut à gauche) : a est fittée avec deux gaussiennes, celle de gauche : b correspond à l'état fondamental du noyau alors que celle de droite : c correspond à son état isomérique. De la même façon est tracée sur la figure en bas à gauche la distribution de l'isotope de Krypton de cette même masse. La figure de droite montre la distribution en charge ionique de la masse 142 pour différentes énergies cinétiques.

Description du processus

Après avoir traversé la cible et la feuille de Nickel, l'isomère, comme tous les autres ions, a atteint sa distribution d'équilibre en charge ionique. Celle-ci est donc centrée autour de la charge moyenne 22.

Entre la sortie de la feuille et l'entrée dans l'aimant principal, l'isomère, alors dans un vide de l'ordre de 10^5 mbar, se désexcite. Dans les cas particuliers mis en évidence à la figure 5.3, le mode de désexcitation se fait, non pas par émission de γ , mais par conversion interne. C'est un mode de désexcitation qui est privilégié lorsque les différences d'énergie entre les niveaux du noyau sont faibles. En se désexcitant, l'isomère éjecte un électron d'une couche interne. Un électron des couches supérieures peut alors venir occuper la place libérée par cet électron interne par divers processus, ainsi, l'émission de photons (transition X), d'électrons (électrons de Auger), ou bien encore des émissions simultanées de photons et d'électrons ont été observées [Cra75]. Dans le cas d'une transition de Auger, l'énergie correspondante au passage de l'électron de la couche supérieure à la place du premier électron éjecté peut être libérée par l'émission d'un second électron, et ainsi de suite. De cette façon, le noyau peut alors perdre plusieurs électrons. Comme ce processus a lieu dans le vide, les produits de fission, qui ne vont plus traverser de matière, ne pourront pas atteindre une nouvelle distribution d'équilibre et garderont un état de charge élevé. Cet état de charge est donc le résultat d'une conversion interne consécutive à la désexcitation de l'isomère, suivie par une cascade de Auger. Ce phénomène a déjà été observé dans le passé, dans la région des produits de fission lourds [B⁺89], comme dans celle des produits de fission légers [W⁺78].

Pour que ces isomères soient détectables sur le Lohengrin, il faut que leur temps de demi-vie soit inférieur au temps nécessaire à l'ion pour parcourir la distance qui sépare la feuille de Nickel de l'entrée du spectromètre, mais supérieur à celui de la traversée de la cible et de la feuille, figure 5.6.

En effet, dans les cas où l'isomère se désexcite alors qu'il est encore dans la cible, la traversée du reste de la matière lui permet de rééquilibrer son état de charge. Il est alors détecté par le spectromètre dans son état fondamental avec une distribution en charge ionique centrée autour de 21. Son état isomérique, de durée de vie très courte, ne pourra pas être mesuré.

En revanche, lorsque la désexcitation a lieu après l'aimant principal, le noyau est détecté par le spectromètre avec une distribution de charge moyenne 21. Ces produits de fission n'atteindront pas la chambre à ionisation puisque les valeurs de leurs rapports A/q et E_k/q sont modifiées au cours de la traversée du Lohengrin et ne correspondent donc plus aux critères de sélection de l'instrument.

C'est parce que le temps nécessaire aux produits de fission pour parcourir la distance sortie de la cible-entrée du spectromètre est de l'ordre de la nanoseconde que ces isomères ont forcément un temps de demi-vie de l'ordre de la nanoseconde.

La figure 5.7 met en évidence qu'il est possible de détecter la présence d'isomères nanosecondes pour certaines masses avec la chambre à ionisation, cependant, pour déterminer l'isotope qui présente un tel état isomérique, il est nécessaire de mesurer ces mêmes distributions en charge ionique par spectrométrie γ . La figure 5.7 donne l'exemple de la masse 140 pour laquelle la mesure de la distribution en charge ionique (points en noir) atteste bien de la présence d'un isomère, confirmée par la mesure cette même distribution par spectrométrie (points en rouge et vert), qui confirme ce résultat et le précise en déterminant le noyau qui possède l'état isomérique, en l'occurrence l'atome de Césium.

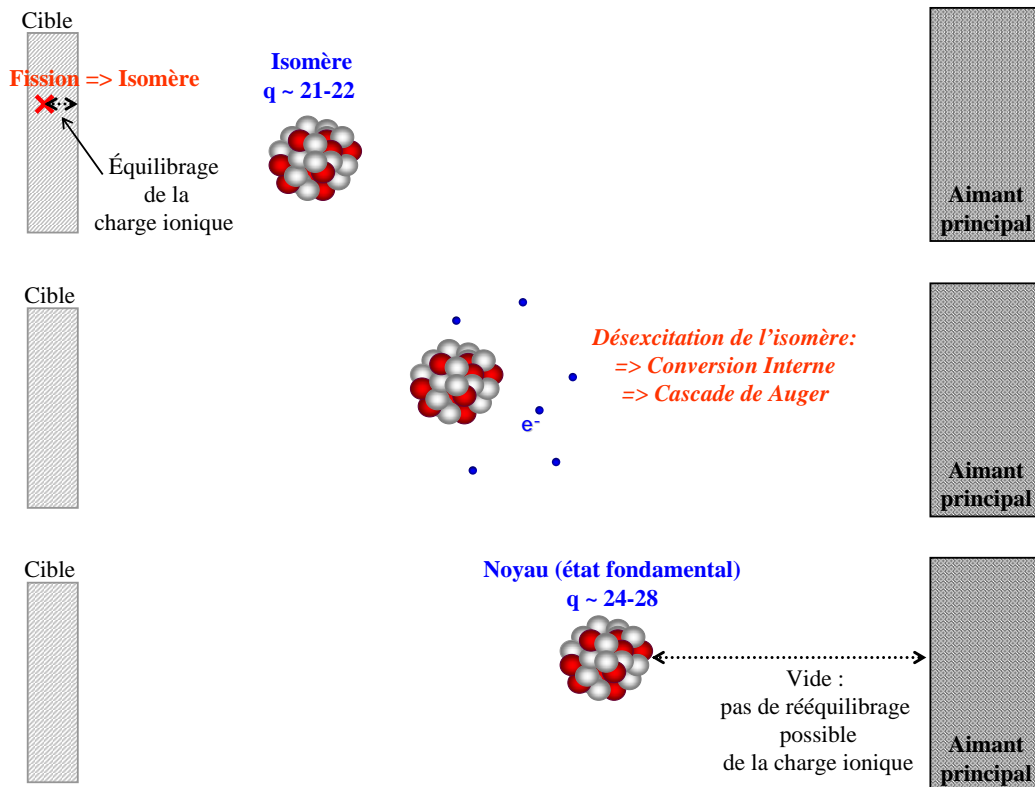


FIG. 5.6 – Représentation schématique de la désexcitation d'un isomère nanoseconde par conversion interne.

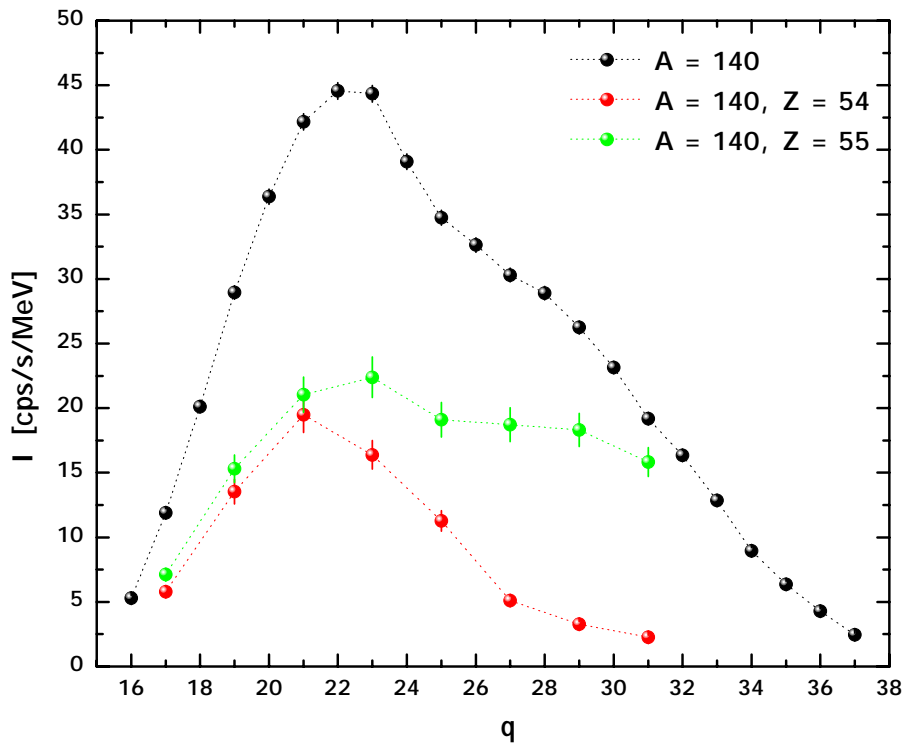


FIG. 5.7 – Mise en évidence avec la chambre à ionisation de la présence d'un isomère nanoseconde pour la masse 140 (points en noir). Les mesures par spectrométrie γ (points en rouge et vert) montrent que l'état isomérique provient du Césium ($Z=55$). Les erreurs représentées sont les erreurs statistiques.

5.1.4 Comparaison des distributions en charge avec quelques modèles

Modèle de V. Nikolaev

Les travaux de V. Nikolaev sur les caractéristiques en charge ionique pour des ions après traversée d'une feuille fournissent des formules empiriques qui prédisent les charges ioniques moyennes et les largeurs des distributions [N+68]. Elles sont de la forme suivante :

$$\begin{cases} \bar{q}(A, E_k, Z) = Z \left[1 + (1,389 \frac{\sqrt{E_k/A}}{Z^\alpha})^{-\frac{1}{k}} \right]^{-k} \\ \sigma_{\bar{q}}(A, E_k, Z) = \sigma_0 \sqrt{\bar{q}} \left[1 - (\frac{\bar{q}}{Z})^{\frac{1}{k}} \right] \end{cases}$$

Dans ce modèle, les paramètres k , α , et σ_0 sont ajustés pour reproduire au mieux les données expérimentales, et n'ont a priori aucune contrainte. Ces paramètres sont donnés dans le tableau 5.1 et à la figure 5.8.

	$^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$	$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$	$^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$
k	1,43	2,46	3,79
α	-0,07	-0,54	-1,30
σ_0	1,03	1,01	1,41

TAB. 5.1 – Récapitulatif de la valeur des paramètres de fit des équations de Nikolaev pour les noyaux mesurés.

Les tendances des charges ioniques moyennes ainsi que celles des largeurs de distribution semblent être globalement bien reproduites par ces formules.

Cependant, il est physiquement impossible que ces trois paramètres soient aussi différents d'un noyau à l'autre pour la traversée de cibles similaires par des produits de fission avec des énergies cinétiques comparables.

De plus, compte tenu de la présence des isomères, ce modèle ne devrait pas être en mesure de retrouver ces distributions puisqu'il ne prend en compte que des effets statistiques de physique atomique.

Le fait que ce modèle semble être correct comparé aux données expérimentales ne repose pas sur des considérations physiques mais uniquement sur un bon ajustement des paramètres.

Il peut donc être difficilement utilisé pour prédire les charges ioniques moyennes sur des régions non mesurées et n'est physiquement pas fiable.

On peut cependant remarquer que pour chacun des trois noyaux mesurés les largeurs de distribution en charge ionique augmentent légèrement avec les masses.

Un tel résultat a déjà été observé auparavant [Roc01].

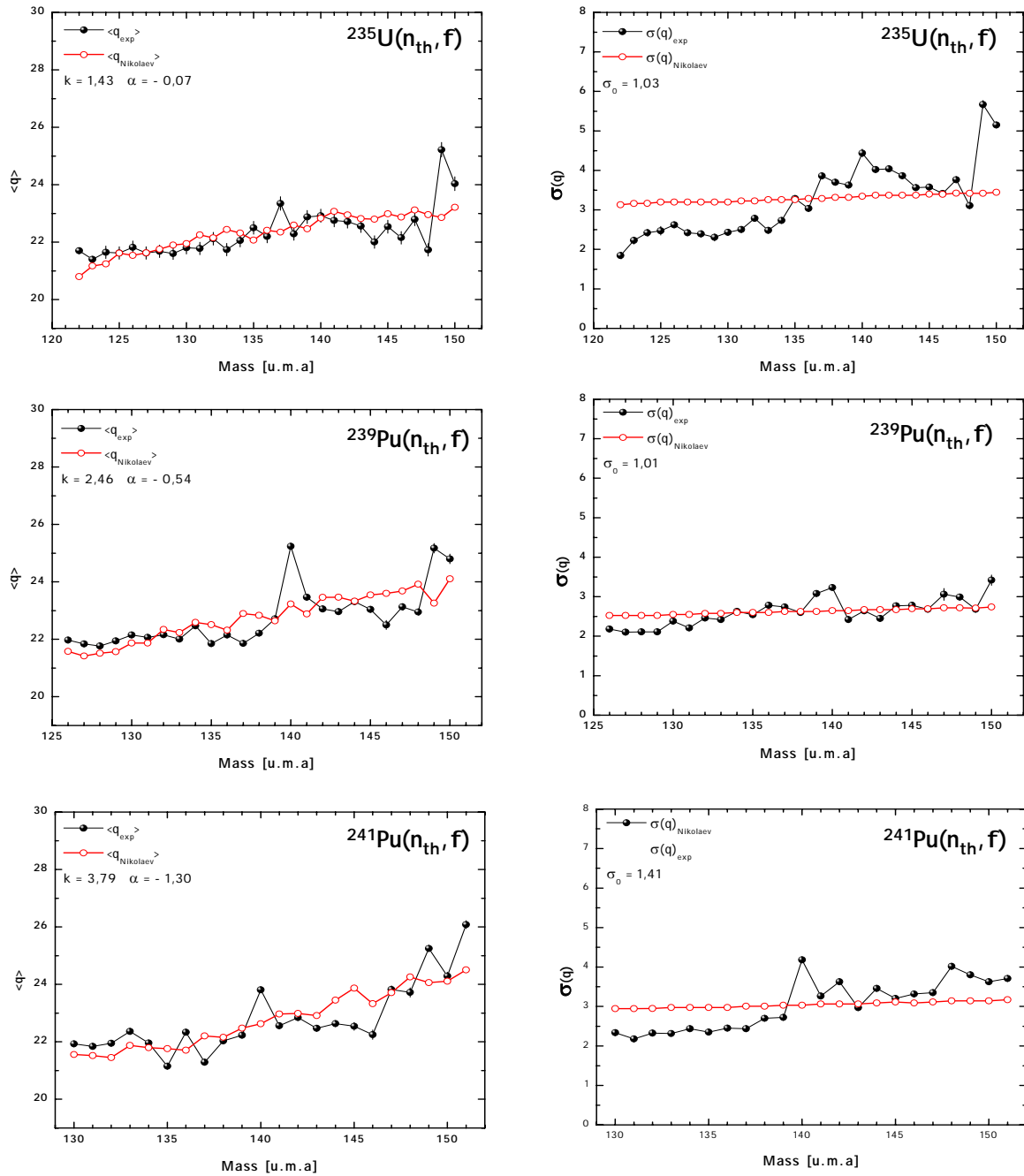


FIG. 5.8 – Charges ioniques moyennes et largeurs des distributions pour les trois noyaux mesurés comparées aux prédictions de V. Nikolaev.

Sont représentées sur la figure les charges ioniques moyennes et les largeurs des distributions entières en état de charges.

Les erreurs représentées sont les erreurs statistiques.

Modèle de K. Shima

Dans son modèle [S⁺82], K. Shima ne propose une formulation que pour les charges ioniques moyennes (équation 4.4).

Contrairement aux formules de V. Nikolaev, elle prend directement en compte la charge nucléaire du matériau traversé, et aucun paramètre n'est laissé libre pour pouvoir être ajusté sur les points expérimentaux.

$$\bar{q}(A, Z, E_k) =$$

$$Z \left[1 - \exp(-1,25(X + 0,32X^2 - 0,11X^3)) \right] \left[1 - 0,0019(Z^2 - 6)\sqrt{X} + 10^{-5}(Z_2 - 6)^2 X \right] \quad (4.4)$$

avec :

Z_2 : la charge nucléaire de la feuille traversée,

$$X = \frac{v}{3,6 \times 10^8 (\text{cm/s}) Z^{0,45}}, \quad v \text{ la vitesse de l'ion,}$$

Z : la charge nucléaire moyenne de l'ion extraite de JEFF3.1.

Les comparaisons entre les charges moyennes mesurées pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th}, \text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th}, \text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th}, \text{f})$ et les prédictions de Shima sont présentées figure 5.9 (figures de gauche).

Même si au premier abord le modèle de Shima semble moins bien reproduire les distributions mesurées que celui de Nikolaev, il est en fait plus correct d'un point de vue physique puisqu'il n'est pas sensé être à même de reproduire les états isomériques de temps de vie supérieur au temps nécessaire pour traverser la cible et la feuille de Nickel et atteindre l'ECSD.

Afin de confronter ce qui est comparable entre les mesures et les prédictions de Shima, les figures de droite (figure 5.9) comparent le modèle directement avec les distributions en charge ionique de l'état fondamental des produits de fission, représentées par les gaussiennes de basse charge dans les distributions mesurées (courbes en rouge). Ces gaussiennes correspondent à des produits de fission qui ont tous atteint un équilibre statistique à la sortie de la cible et de la feuille de Nickel.

Les courbes en vert représentent les valeurs moyennes des distributions isomériques.

On constate alors que le modèle de Shima reproduit bien les tendances de ces valeurs moyennes (hormis pour les masses les plus hautes).

Les charges ioniques ont tendance à diminuer avec la masse.

Dans ce cas, la décroissance de l'énergie cinétique avec l'augmentation de la masse joue un rôle plus important sur les distributions en charges ioniques des produits de fission après traversée de la cible et de la feuille de Nickel que le nombre d'électrons qui augmente avec Z , donc avec A .

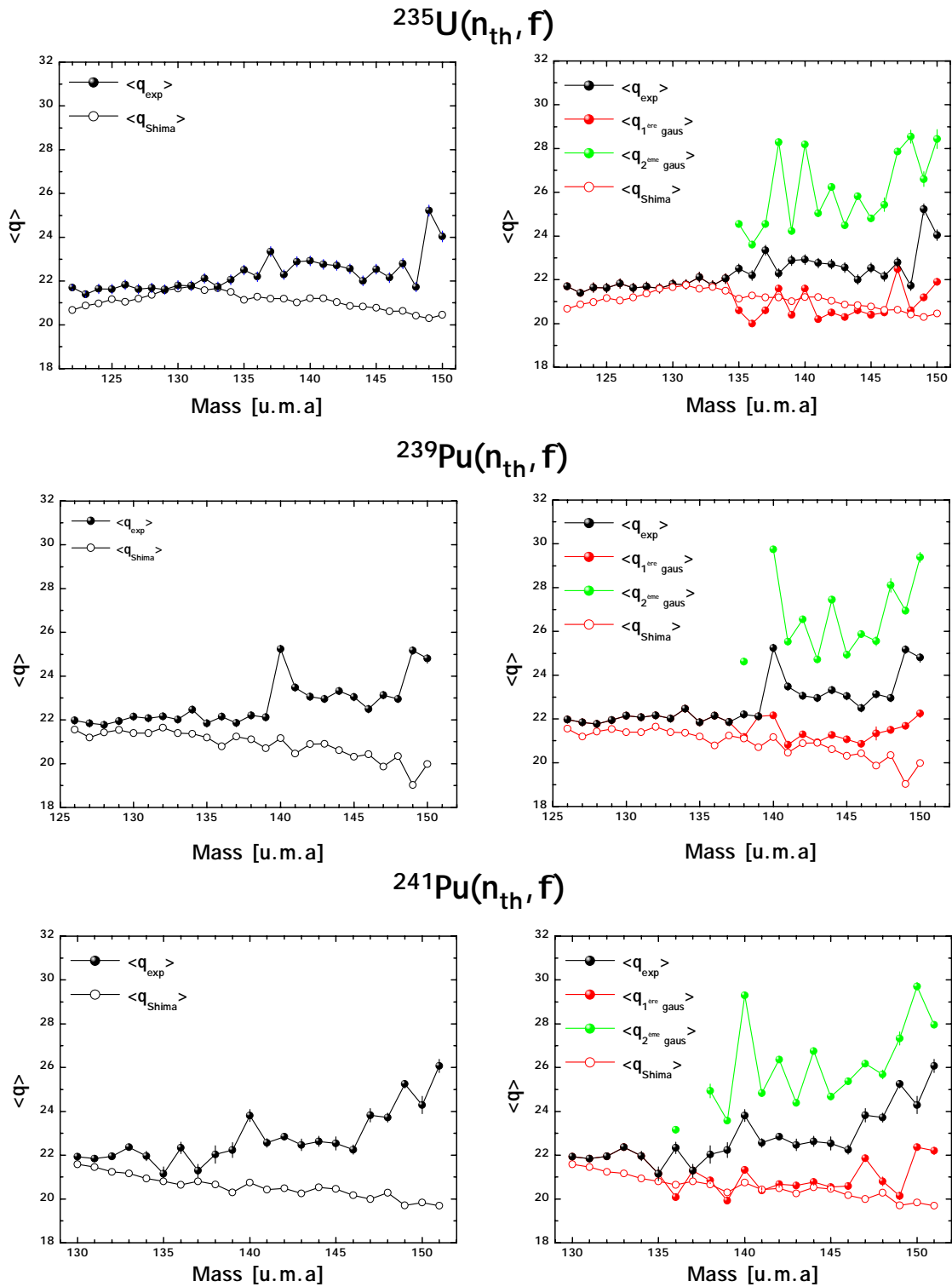


FIG. 5.9 – Charges ioniques moyennes et largeurs des distributions pour les trois noyaux mesurés comparées aux prédictions de K. Shima.

Les figures de gauche représentent les charges ioniques moyennes des distributions mesurées comparées aux prédictions de Shima.

Sur les figures de droite seules les valeurs des fits gaussiens de plus basse charge sont comparées avec les prédictions de Shima (courbes en rouge). Les distributions en charge ionique des états isomériques représentées par les gaussiennes de plus haute charge sont représentées en vert.

5.2 Etude des distributions en énergie cinétique

5.2.1 formes des distributions

La présence d'une structure dans les distributions en énergie cinétique, en particulier d'une queue dans les basses énergies, ne permet pas à un simple fit gaussien de les reproduire. C'est pourtant, vu le nombre de paramètres qui jouent un rôle dans ces distributions, la forme physique prédite avant émission des neutrons prompts par la plupart des modèles (Théorème de la Limite Centrale).

Dans la détermination des rendements seule l'intégrale de ces distributions est importante. Pour l'évaluer au mieux, elles ont été ajustées par deux gaussiennes (figure 5.10), sans y attribuer pour autant une signification physique.

De telles structures ont déjà été observées dans la région des produits de fission léger. Ces distributions asymétriques ont été soit assimilées à la perte d'énergie par les produits de fission dans la cible et la feuille de Nickel [M⁺90], soit ignorées [H⁺94, T⁺99, T⁺01, B⁺07]. Pour tenter d'éclaircir l'origine de la forme de ces distributions, une étude approfondie en a été faite, et les résultats sont exposés dans la suite de ce paragraphe.

Il présente dans un premier temps les trois premiers moments des distributions en énergie cinétique pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$, et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Les différentes hypothèses qui ont été avancées pour expliquer de telles formes de distributions y sont ensuite décrites.

5.2.2 Caractéristiques des énergies cinétiques moyennes

5.2.2.1 Moments des distributions en énergie cinétique

Les valeurs de l'énergie cinétique moyenne ainsi que des largeurs de distributions sont données par les deux premiers moments respectivement. Le troisième moment α_3 correspond au coefficient d'asymétrie. Il permet d'évaluer les tendances des structures de ces distributions :

- $\alpha_3 = 0$ pour une distribution symétrique
- $\alpha_3 > 0$ pour une distribution allongée vers la droite
- $\alpha_3 < 0$ pour une distribution allongée vers la gauche

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle E_k \rangle = \frac{\sum_j (E_{k_j} \times Y(A, q_i, E_{k_j}))}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \\ \sigma_{E_k} = \frac{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j}) \times (E_{k_j} - \langle E_k \rangle)^2}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \\ \alpha_3 = \left[\frac{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j}) (E_{k_j} - \langle E_k \rangle)^3}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \right] \cdot \left[\frac{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j}) (E_{k_j} - \langle E_k \rangle)^2}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \right]^{-\frac{3}{2}} \end{array} \right.$$

Les valeurs Lohengrin sont corrigées par des simulations TRIM : chapitre 4 paragraphe 5.3 pour les énergies cinétiques, chapitre 5 paragraphe 2.3 pour les largeurs de distribution.

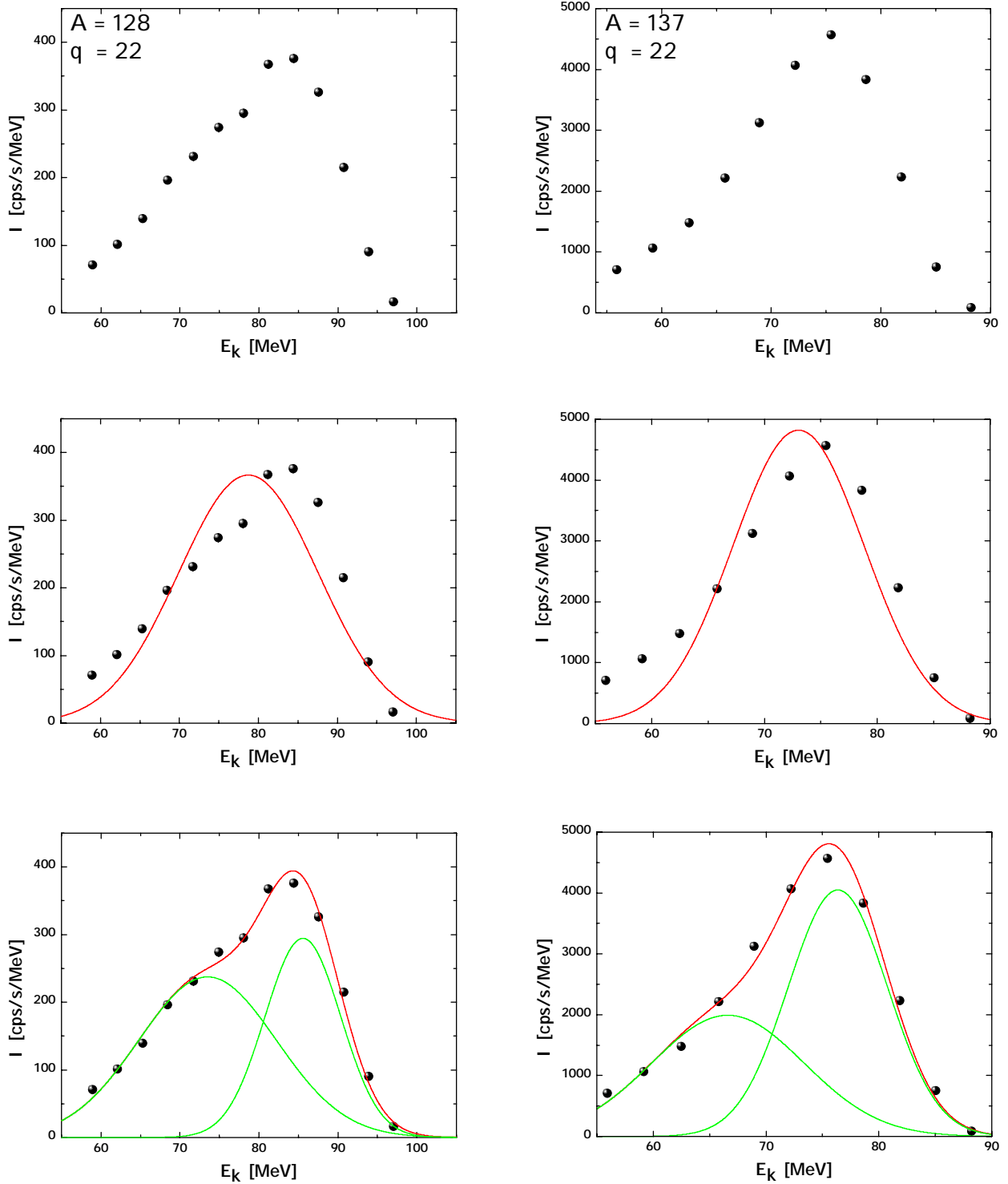


FIG. 5.10 – Exemple de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. La première ligne représente les distributions pour deux masses différentes avec comme erreur uniquement l'erreur statistique. A la deuxième ligne sont représentées ces mêmes masses fittées avec une fonction gaussienne. De même, la troisième ligne montre ces distributions fittées avec deux gaussiennes (courbes vertes, la courbe rouge étant la somme de ces deux fonctions). Tous les paramètres des gaussiennes ont été laissés indépendants.

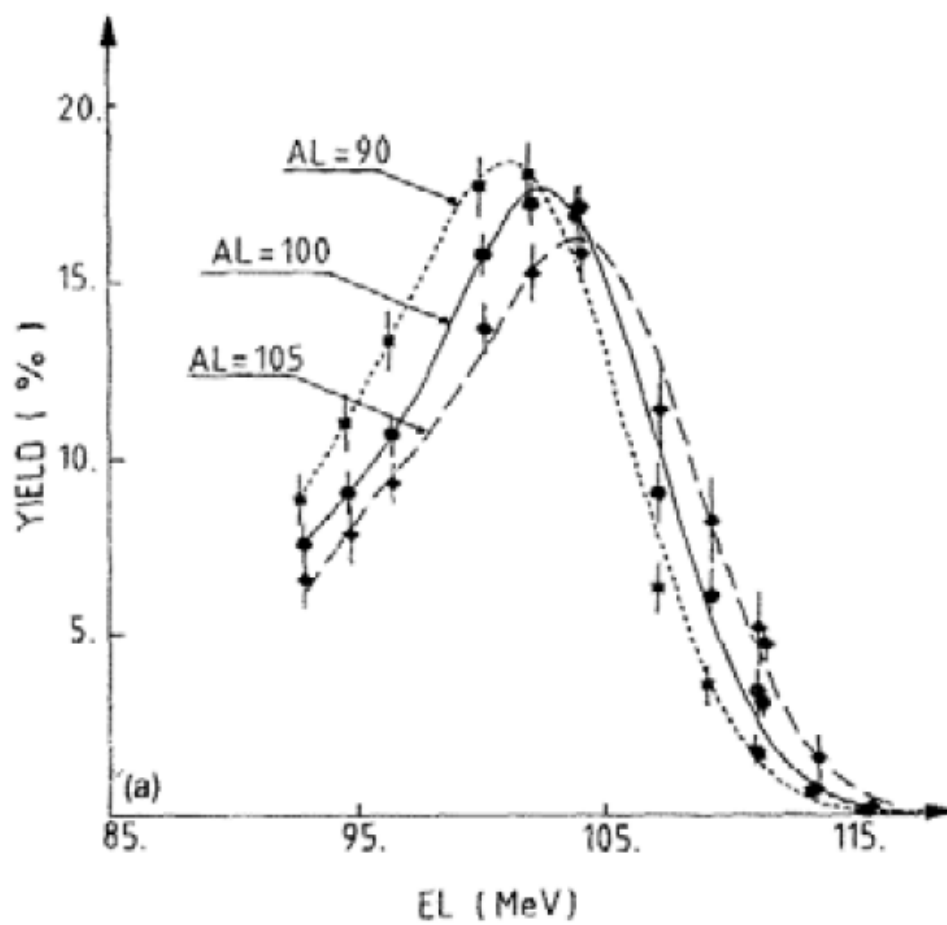


FIG. 5.11 – Distributions en énergie cinétique de la réaction $^{239}\text{Np}(n_{th},f)$ pour les masses légères 90, 100 et 105 [M^{+90}].

5.2.2.2 $^{235}\text{U}(n_{th},f)$

Les caractéristiques des énergies cinétiques de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sont données figure 5.12.

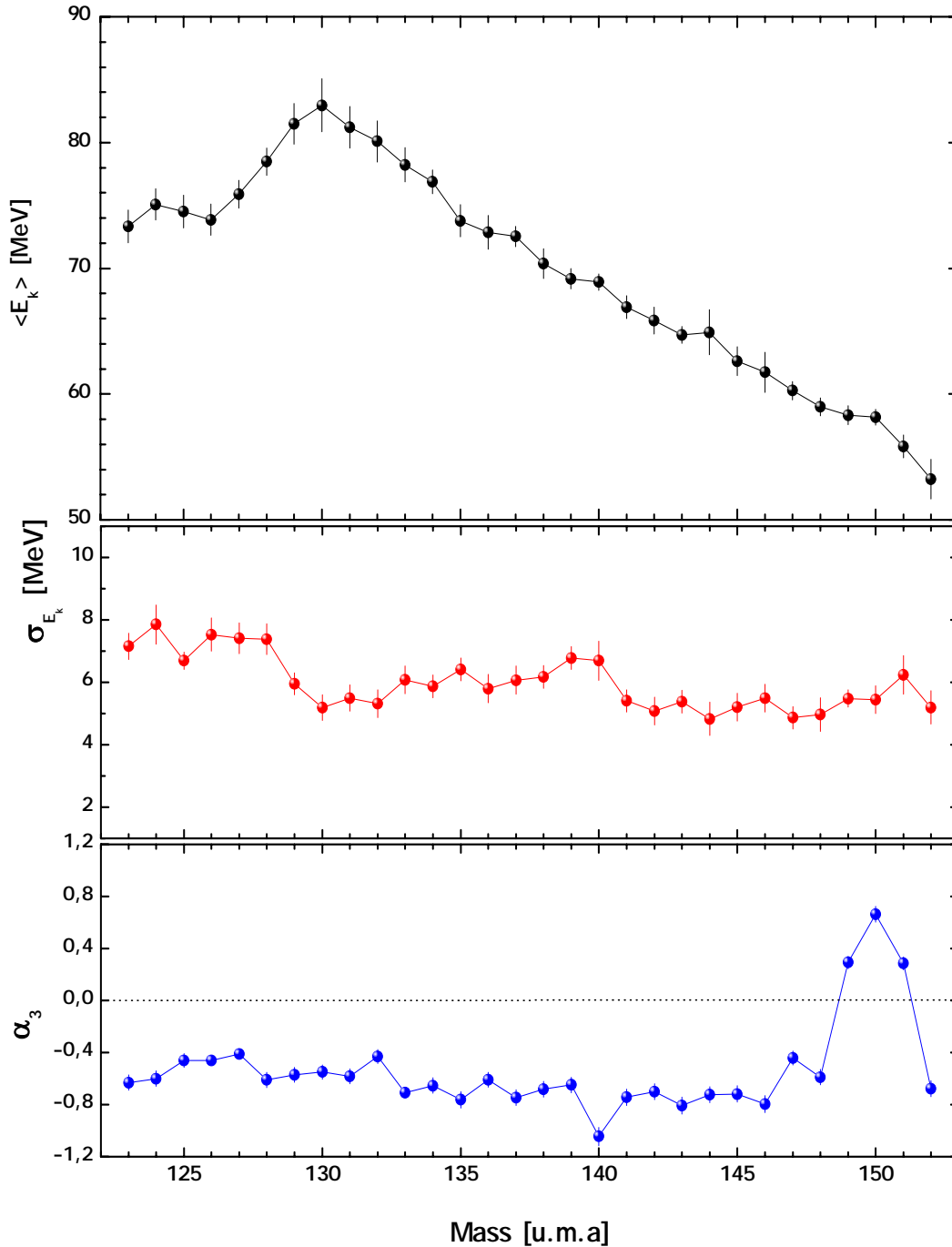


FIG. 5.12 – Valeurs moyennes (noir) et largeurs des distributions (rouge) et coefficient d’asymétrie (bleu) des énergies cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

5.2.2.3 $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

Les caractéristiques des énergies cinétiques pour le $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont données figure 5.13.

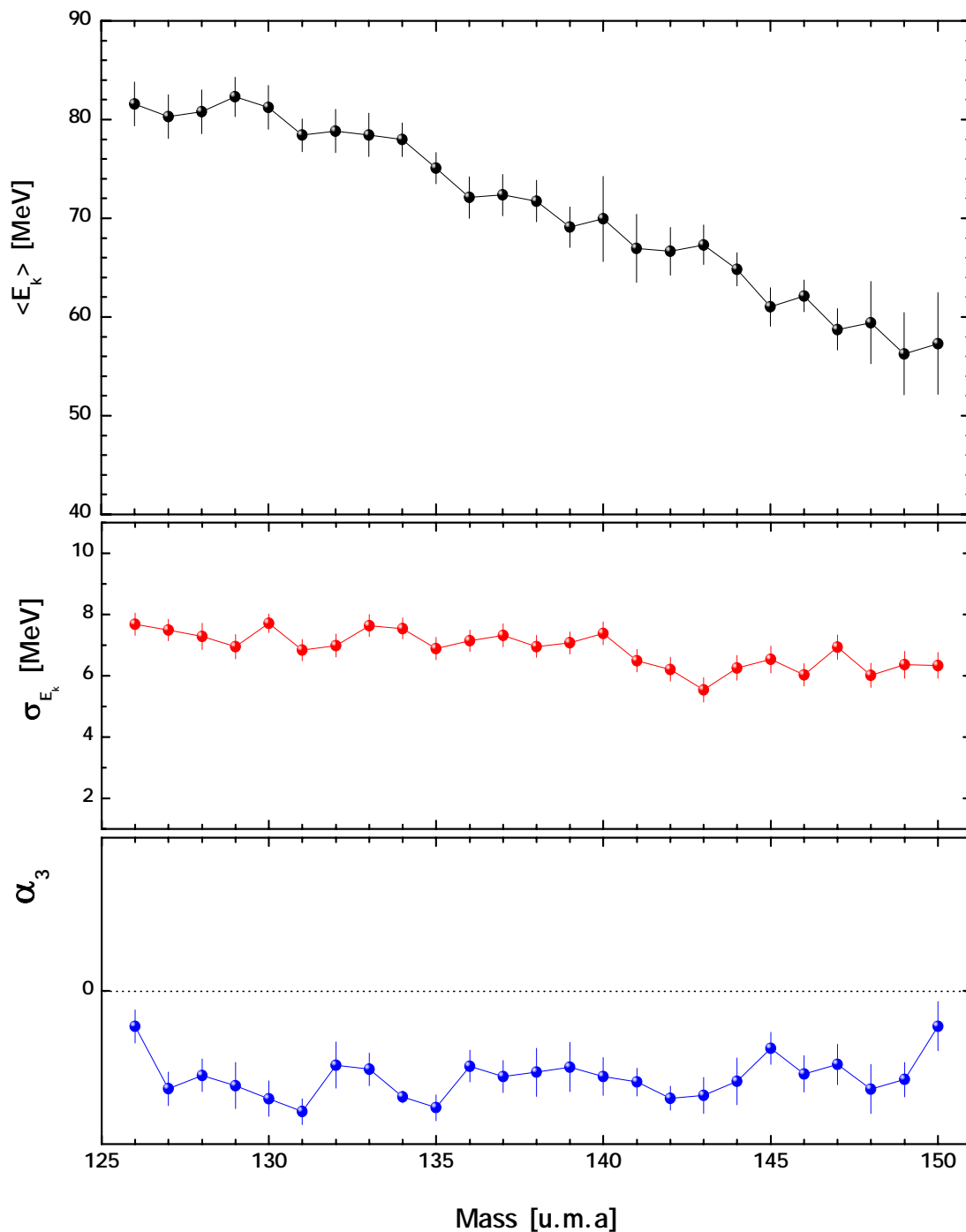


FIG. 5.13 – Valeurs moyennes (noir) et largeurs des distributions (rouge) et coefficient d'asymétrie (bleu) des énergies cinétique pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

5.2.2.4 $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$

Les caractéristiques des énergies cinétiques du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont données figure 5.14.

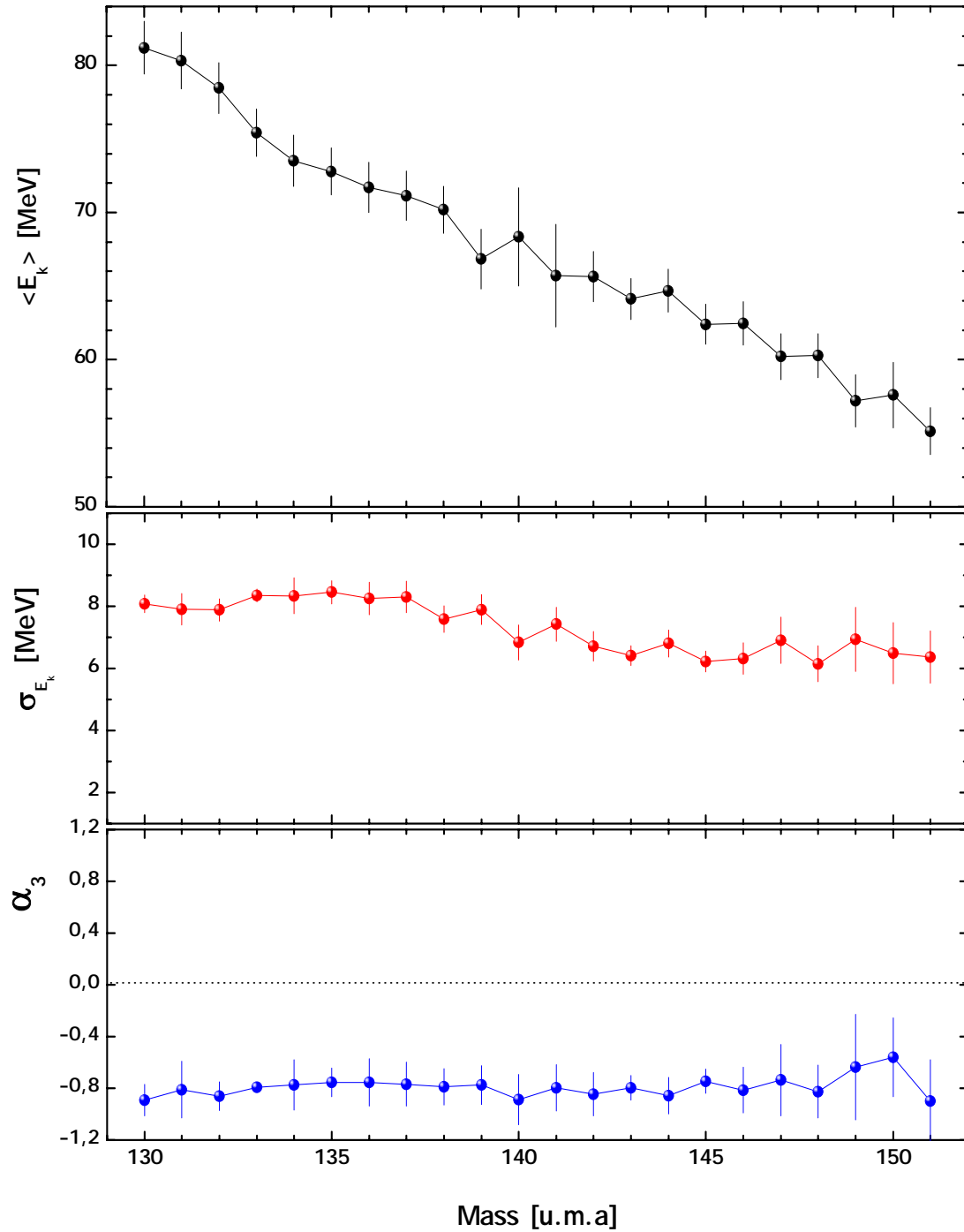


FIG. 5.14 – Valeurs moyennes (noir) et largeurs des distributions (rouge) et coefficient d'asymétrie (bleu) des énergies cinétique pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

5.2.2.5 Comparaison des mesures avec les données de la littérature

La plupart des données en énergie disponibles dans les bibliothèques nucléaires proviennent de mesures prises avec des chambres à fission. Ces valeurs correspondent donc aux énergies cinétiques des fragments de fission, avant l'émission des neutrons prompts. Or sur le Lohengrin seules l'énergie cinétique des produits de fission peut être mesurée, soit après l'émission des neutrons prompts.

Il est donc nécessaire d'effectuer un certain nombre de corrections avant de pouvoir comparer les différentes mesures.

L'équation 5.1 permet de passer de l'énergie cinétique après émission des neutrons prompts (mesurée sur le spectromètre) à l'énergie cinétique avant émission [B⁺07].

$$E_{k.pre} = \frac{A_{pre}}{A_{post}} E_{k.post} \quad (5.1)$$

$$A_{pre} = A_{post} + \bar{\nu}(A)$$

Les valeurs moyennes du $\nu(A)$ pour les noyaux ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu qui ont été utilisées pour effectuer ces corrections correspondent aux données évaluées par Wahl.

Les figures 5.15, 5.16 et 5.17 comparent les énergies cinétiques moyennes mesurées sur le spectromètre Lohengrin et corrigées de l'émission des neutrons prompts avec différentes mesures.

5.2.2.6 Conclusion

Les mesures des énergies cinétiques moyennes pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ semblent très correctes au vue des comparaisons avec les différentes expériences préalables. Les points des masses lourdes, ainsi que les quelques masses légères mesurées montrent un très bon accord avec ce qui était attendu. On retrouve bien les caractéristiques des énergies cinétiques attendues en fonction des masses lourdes, à savoir que plus la masse augmente, plus l'énergie diminue.

Cependant, les mesures sur le Lohengrin présentent plus de structures que les mesures prises avec des chambres à fission. Ce résultat n'est pas étonnant puisque la détermination des rendements ainsi que des énergies cinétiques avec les chambre à fission ont tendance à lisser les valeurs.

Les énergies du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ semblent être basses comparées aux mesures de Vorobyeva, cependant elles ont été déterminées avec la même méthode que les deux précédentes.

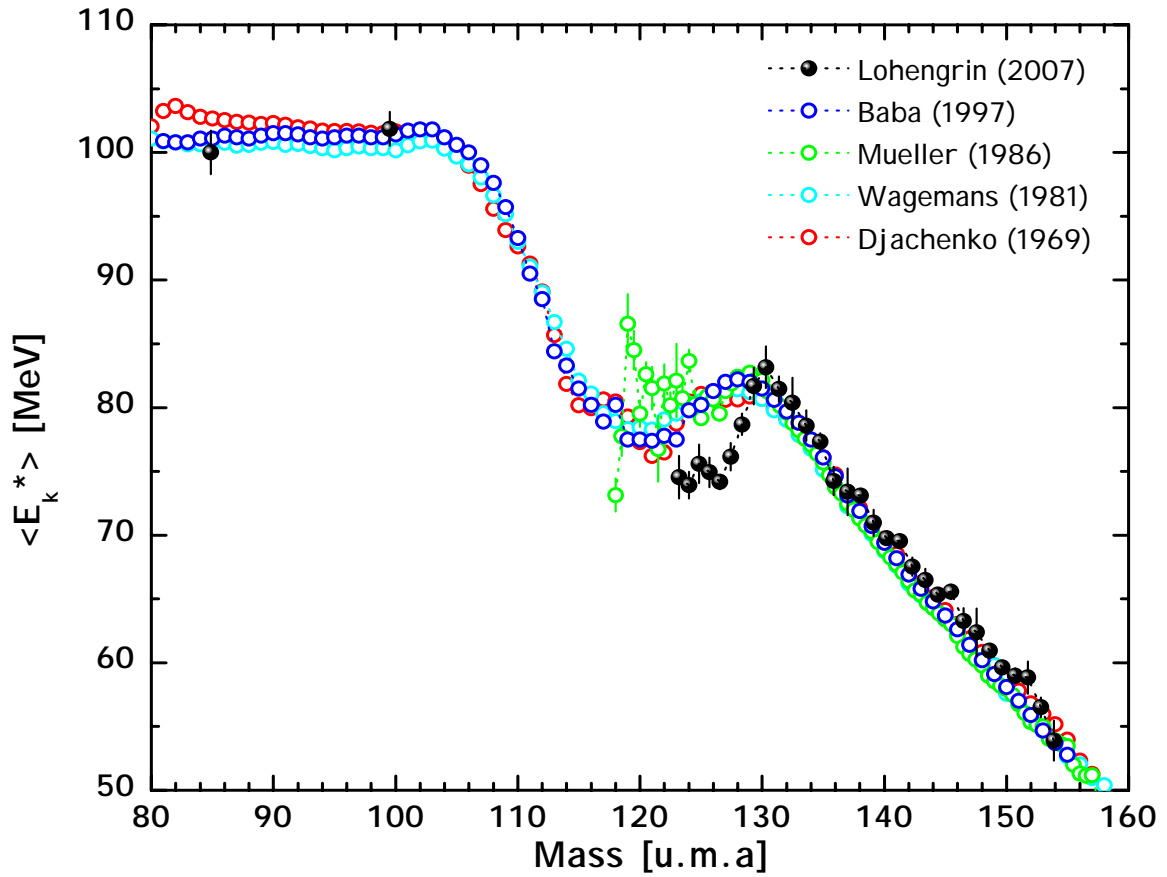


FIG. 5.15 – Comparaison des énergies cinétiques moyennes mesurées pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sur le Lohengrin puis corrigées de l'évaporation des neutrons prompts avec différentes expériences ([B⁺97, W⁺81, D⁺69]).

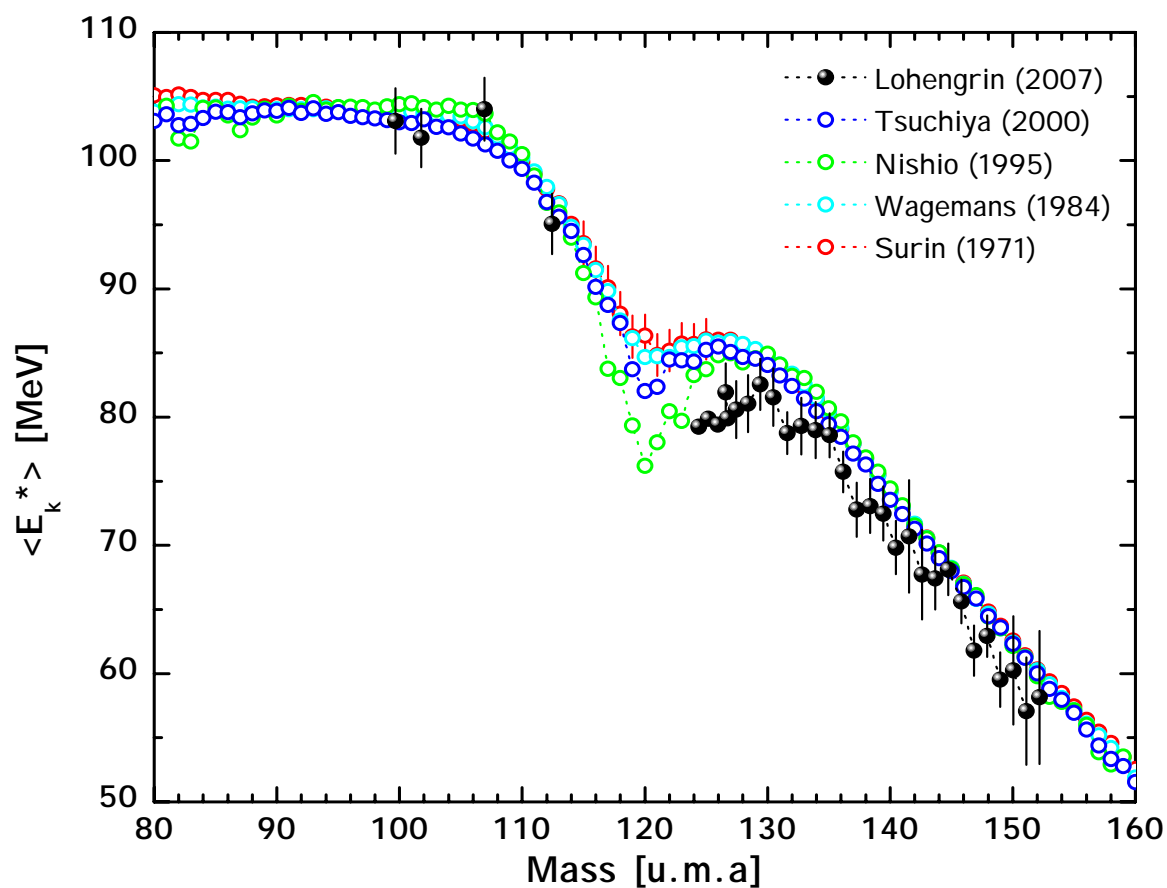


FIG. 5.16 – Comparaison des énergies cinétiques moyennes mesurées pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ sur le Lohengrin puis corrigées de l'évaporation des neutrons prompts avec différentes expériences ([T⁺00, N⁺95, W⁺84, S⁺71]).

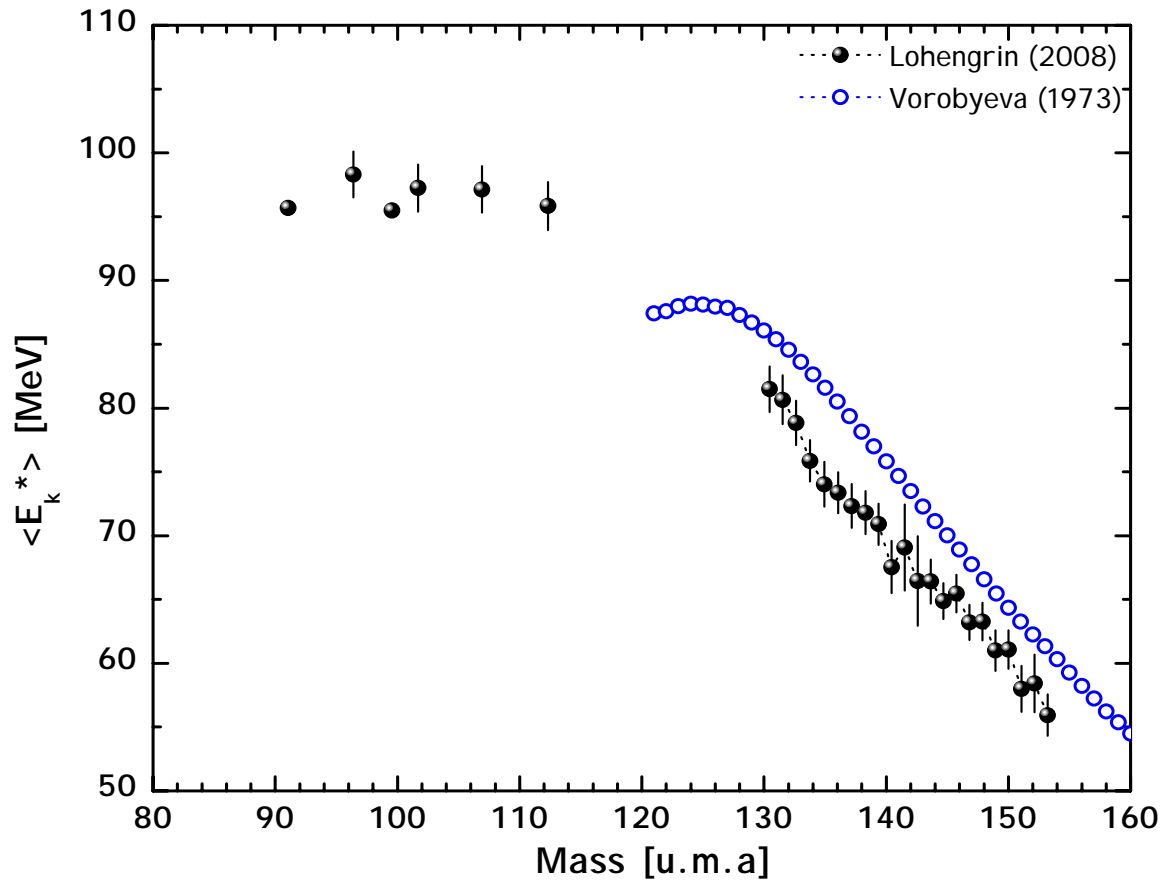


FIG. 5.17 – Comparaison des énergies cinétiques moyennes mesurées pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sur le Lohengrin puis corrigées de l'évaporation des neutrons prompts avec différentes expériences ([V⁺73]).

5.2.3 Origine de la forme des distributions

Perte d'énergie dans la cible

Comme la plupart des distributions en énergie cinétique montrent une importante asymétrie sur leur gauche, l'origine de cette queue à basse énergie a souvent été attribuée à la perte d'énergie des produits de fission au cours de leur traversée de la cible et de la feuille de Nickel [Gue83, Ara86]. Comme le montre la figure 5.18, l'ion pf_2 , émis par la fission à la même énergie cinétique que l'ion pf_1 , sera détecté par le spectromètre de masse comme ayant une énergie plus faible. De cette façon, il va venir rencherir la queue des faibles énergies sur la gauche de la distribution.

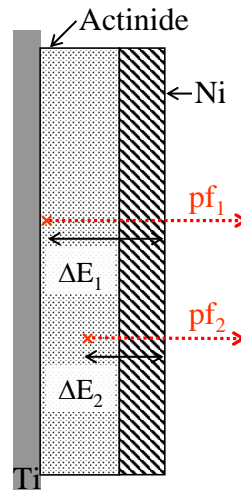


FIG. 5.18 – Schéma de la cible mettant en évidence l'influence de l'épaisseur de la matière traversée pour la perte d'énergie : $\Delta E_1 > \Delta E_2$ même si $E_{pf_1} = E_{pf_2}$.

Il semble cependant que l'asymétrie générée par de tels effets soit négligeable.

Deux résultats vont dans ce sens.

D'une part les simulations TRIM ne reproduisent pas ces queues (figure 5.19).

La figure du haut montre les variations d'une distribution en énergie cinétique pour la masse 136 supposée idéalement gaussienne de largeur 6 MeV centrée sur 65 MeV en traversant une feuille de Nickel de $0,25 \mu m$ (points en vert) et différentes épaisseurs d'Uranium : $75 \mu m$ (points en rose), $150 \mu m$ (points en jaune) et $225 \mu m$ (points en cyan).

La distribution en énergie cinétique après la traversée d'une cible composée de $150 \mu m$ d'Uranium et d'une feuille de Nickel de $0,25 \mu m$ est représentée par les points en rouge sur la figure du bas. Au cours des réactions de fission, les produits de fission traversent toute la totalité de la feuille de Nickel ainsi qu'une certaine épaisseur ε_i d'Uranium. Cette épaisseur ε_i varie de l'ordre de 0 à $150 \mu m$ d'actinide pour les mesures de rendements en masses. La distribution finale correspond à la somme sur toutes les épaisseurs d'actinide traversées qui ont toutes la même probabilité (toutes les distributions sont normalisées à 1). On remarque que si la distribution ne semble pas gagner une queue dans les basses énergies, en revanche elle s'élargit de façon non négligeable. C'est avec ces simulations qu'ont été corrigées les largeurs de distributions.

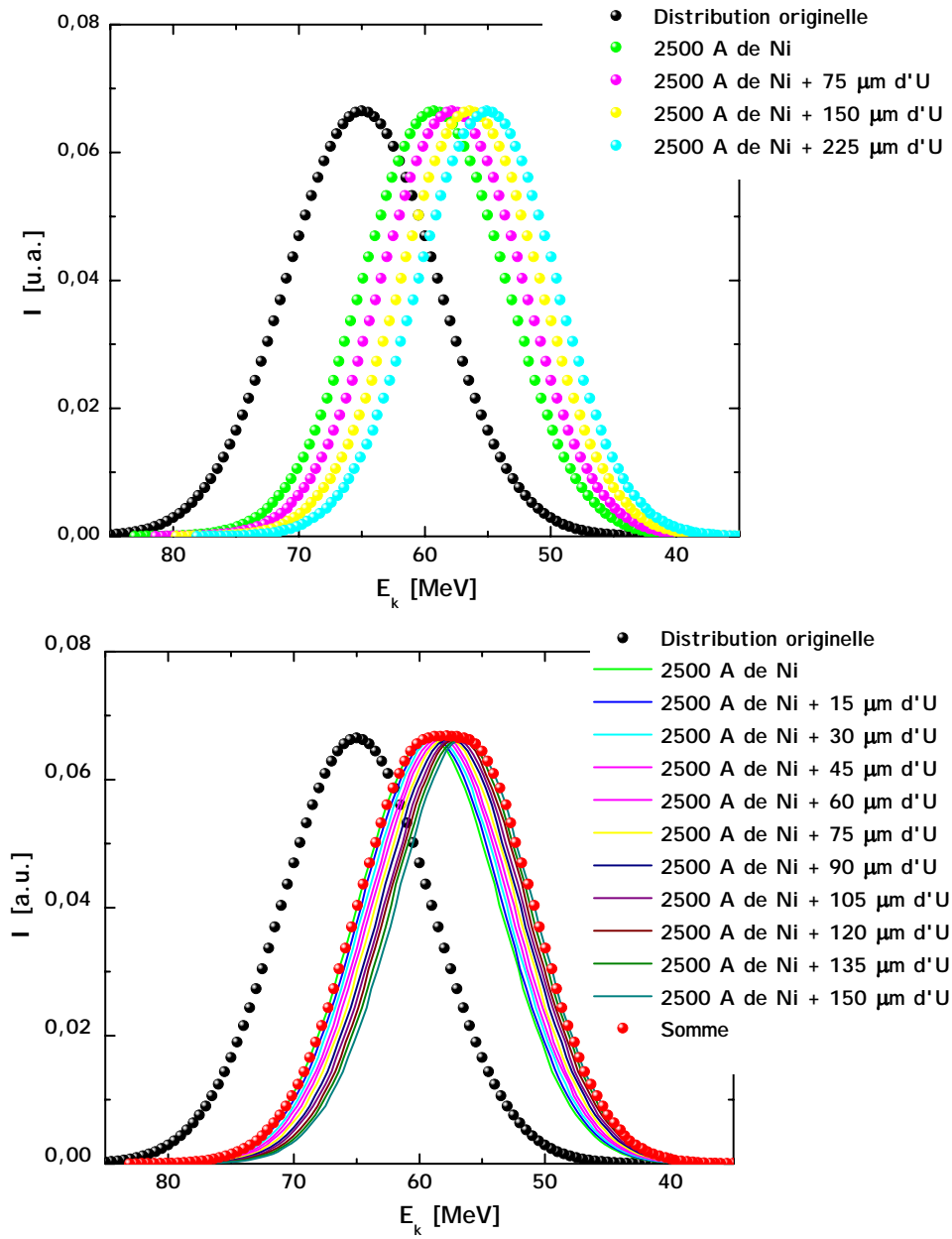


FIG. 5.19 – Variation de la distribution en énergie cinétique après traversée de matière.

D'autre part si les structures observées sur la gauche des distributions étaient dues à la perte d'énergie des produits de fission dans la cible et la feuille de Nickel, toutes les masses devraient alors présenter le même type d'asymétrie, or ce n'est pas le cas (figure 5.20).

Enfin la mesure de ces distributions a été réalisée avec une cible mince d' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sans protection par une feuille de Nickel afin de minimiser au maximum cet effet.

Les distributions en énergie cinétique pour la masse 143 (produit de fission lourd) et 94 (produit de fission léger) sont représentées figure 5.21.

Elles montrent que l'asymétrie à basse énergie persiste malgré la faible épaisseur de matière traversée pour les produits de fission.

Dans de telles conditions expérimentales, ces structures ne peuvent pas être justifiées par la perte d'énergie des ions dans la cible.

En conclusion, même si la traversée de la cible et de la feuille de Nickel par les produits de fission aurait tendance à former une queue sur la gauche des distributions en énergie cinétique, cet effet reste très négligeable au vu de l'épaisseur de matière traversée par les ions au cours de nos expériences.

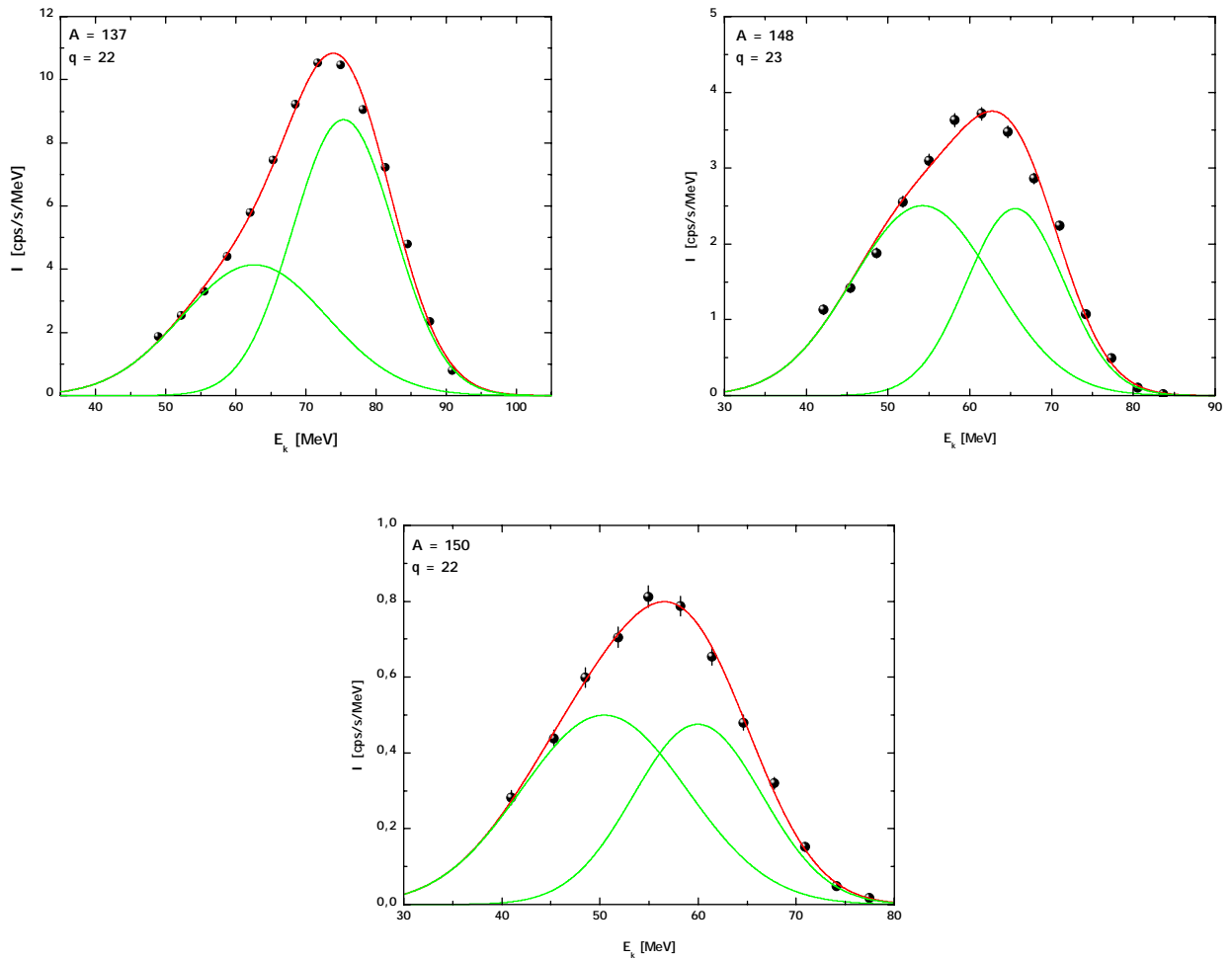


FIG. 5.20 – Exemple de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

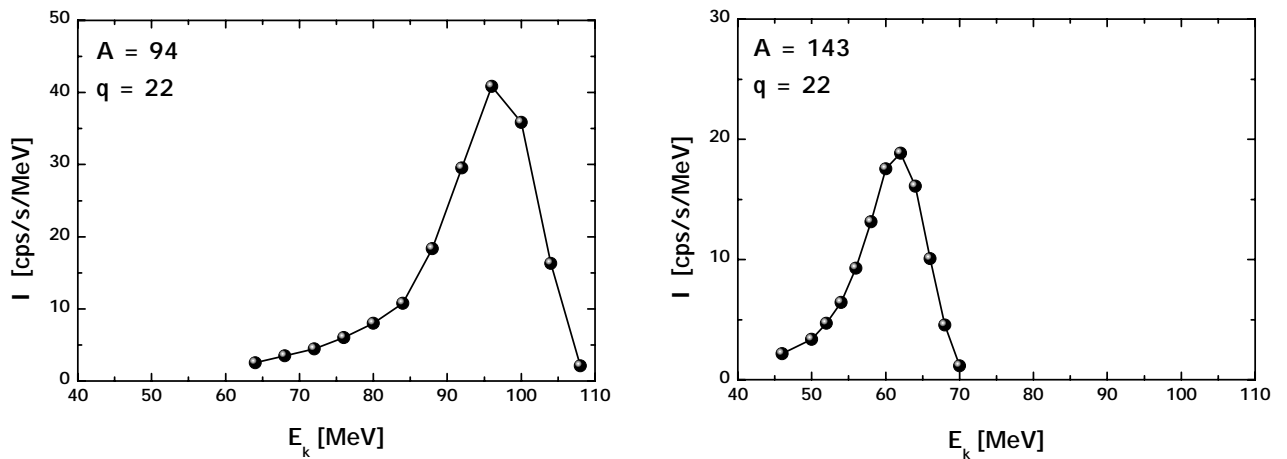


FIG. 5.21 – Exemple de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel. On remarque que ces distributions conservent une forte queue dans les basses énergies, entraînant comme conclusion que les pertes d'énergie dans la cible ne sont pas à l'origine de la forme asymétrique des gaussiennes.

Contribution des différents isotopes

La contribution des différents isotopes à l'intérieur d'une même ligne de masse ayant comme énergies cinétiques moyennes des valeurs différentes a été mise en avant afin d'expliquer l'asymétrie des distributions en énergie.

Cependant, d'une part la différence des énergies cinétiques moyennes, au maximum de quelques MeV, est insuffisante pour expliquer de telles queues dans les basses énergies (elles demanderaient une différence des énergies moyennes de l'ordre de 10 MeV), mais surtout, d'autre part, les distributions des isotopes elles-même présentent cette même forme.

Ces remarques peuvent être observées sur la figure 5.22, pour laquelle les distributions en énergie cinétique des différents isotopes pour les masses 143 et 91 pour une cible d' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sans couverture de Nickel ont été mesurées.

On peut remarquer que les valeurs moyennes des énergies cinétiques des différents isotopes, en particulier pour les masses lourdes, sont très proches.

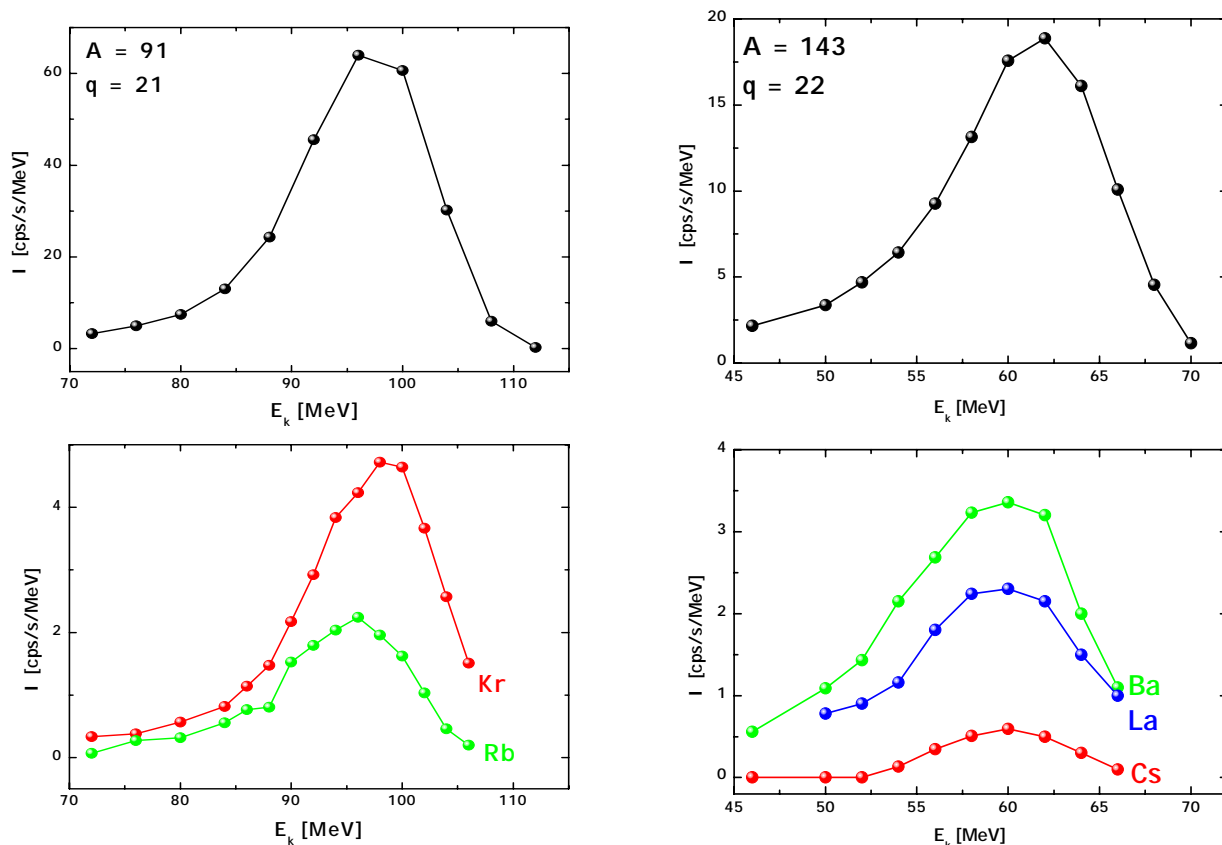


FIG. 5.22 – Exemple de distributions en énergie cinétique pour les masses (haut) et les isotopes (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel.

Modes de fission

Il est intéressant d'observer que toutes les distributions en énergie cinétiques mesurées au cours des différentes expériences sont très bien représentées par la superposition de deux gaussiennes (figure 5.20). L'origine de ces deux gaussiennes pourrait être attribuées à l'existence de modes de fission.

Dans l'hypothèse du modèle de Brosa, chacune des deux gaussiennes est attribuée à un mode de fission différent. La gaussienne de haute énergie correspondrait alors au mode

standard I, mode compact avec une énergie cinétique élevée, alors que la gaussienne de gauche représenterait le mode **standard II** plus déformé.

La figure 5.23 montre la contribution de ces deux modes dans la distribution de l'énergie cinétique moyenne des fragments de fission pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. On peut remarquer que jusqu'à la masse 142 les deux modes de fission jouent un rôle dans la distribution en énergie cinétique moyenne, mais au-delà de celle-ci seul le mode **standard II** contribue à la valeur de l'énergie. Même s'il est vrai que de telles considérations ne sont valables que pour des distributions avant émission des neutrons prompts, ce qui n'est pas le cas de nos valeurs, nous avons tout de même essayé de reproduire des figures similaires avec nos mesures.

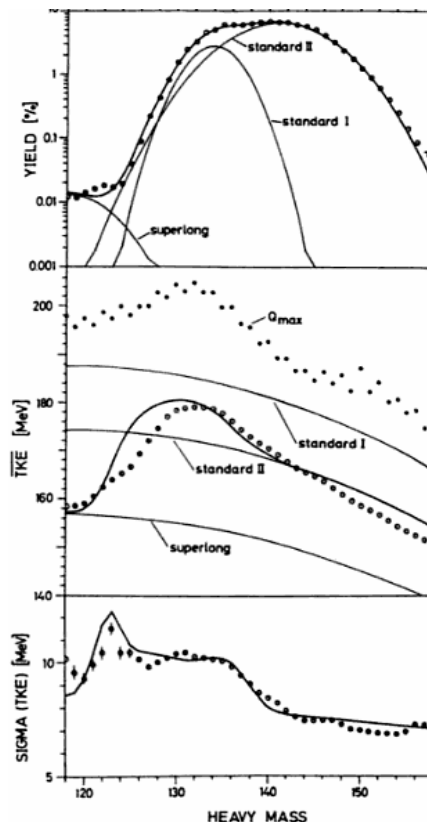


FIG. 5.23 – Rendements en masse (haut), énergies cinétiques moyennes (milieu) et leurs largeurs (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les cercles représentent les points de mesures alors que les traits pleins montrent les différentes contributions des modes de fission, [H⁺89].

La figure 5.24 représente donc les énergies cinétiques moyennes pour chacune des deux gaussiennes contribuant à la distribution en énergie cinétique, ainsi que les énergies moyennes de la distribution totale, tracées en fonction des masses pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Ces résultats ne semblent pas aller dans le sens d'une fission selon les modes **standard I** et **standard II**, puisque dans un tel cas on se serait attendu à trouver une contribution nulle du mode **standard II** après la masse 142. Prendre en compte l'émission des neutrons prompts ne suffirait pas à retrouver les tendances attendues avec le modèle de Brosa, puisqu'elles sont de l'ordre de 2%.

Cependant, le principal défaut de ces comparaisons vient du fait que les fits utilisés pour ajuster les distributions en énergie cinétique ne sont pas directement appropriés à représenter les modes, puisqu'ils sont optimisés pour reproduire au mieux la surface des distributions mesurées. Pour pouvoir étudier plus rigoureusement cette hypothèse il faudrait,

non pas fitter à une dimension seulement les énergies cinétiques, mais à deux dimensions les énergie et les masses simultanément, ce qui n'est malheureusement pas possible avec nos données.

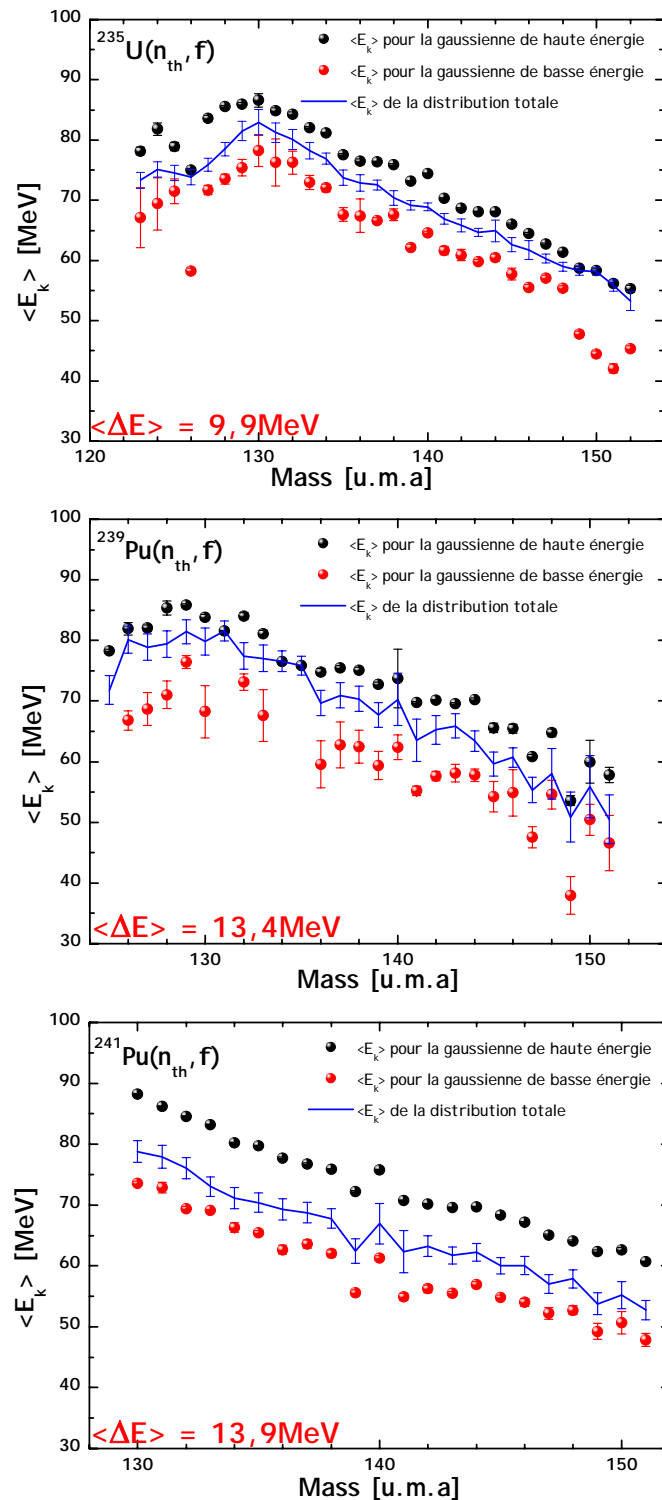


FIG. 5.24 – Énergies cinétiques moyennes en fonction des masses tracées pour les 3 systèmes fissionnants étudiés. Les points en noir représentent l'énergie cinétique moyenne de la gaussienne de haute énergie de la distribution en E_k , alors que la gaussienne de basse énergie est représentée par les points en rouge. La courbe en bleu correspond à l'énergie cinétique moyenne de la distribution totale.

5.2.3.1 Emission de neutrons prompts

5.3 Distributions en énergie et en charge ionique pour une masse A

Pour pouvoir estimer au mieux la forme de la distribution en énergie cinétique et charge ionique d'une masse A , dont son volume ϑ représente le rendement de la masse, les distributions complètes des masses 98 et 136 ont été mesurées pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. C'est à dire que pour ces deux masses, une mesure quasi-exhaustive de toutes les combinaisons énergie cinétique E_k et charge ionique q a été réalisée. Environ deux jours de mesure ont été nécessaires pour ces deux seules masses dont les distributions sont présentées à la figure 5.25.

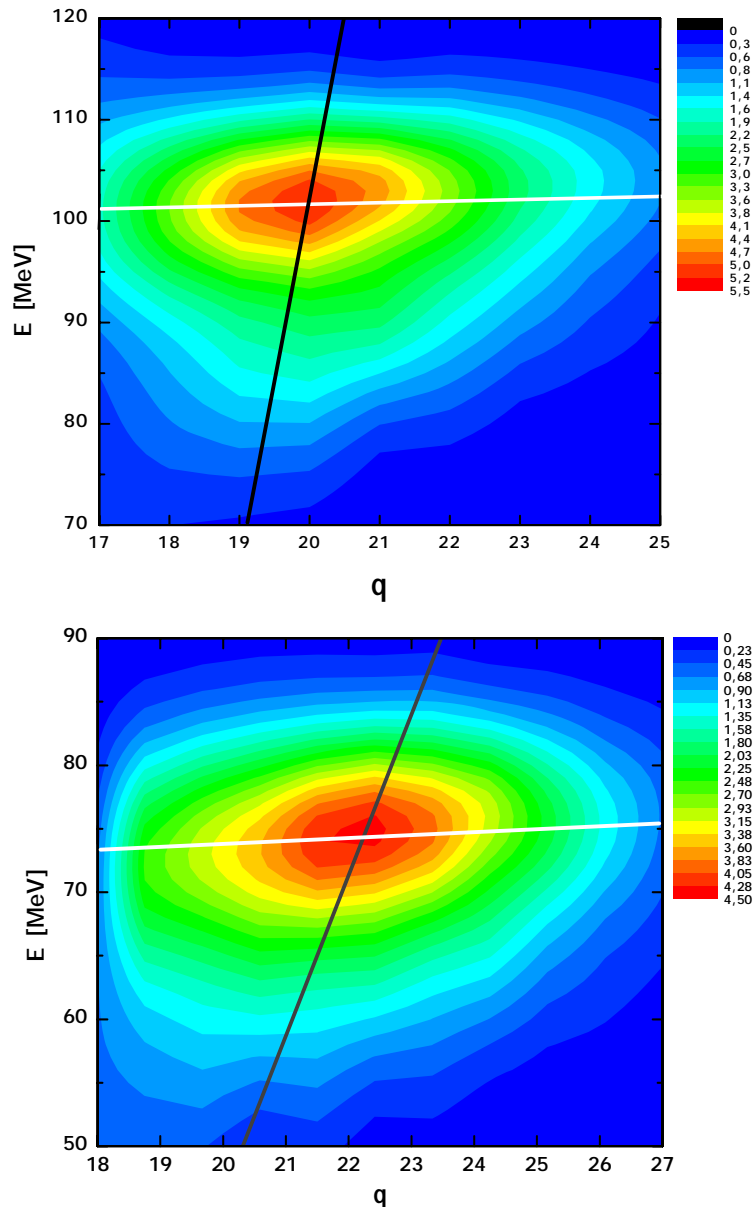


FIG. 5.25 – Forme des distributions de masses 98 (haut) et 136 (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les traits blancs représentent un fit sur les énergies cinétiques moyennes des distributions alors que ceux en noir représentent un fit sur les valeurs moyennes des distributions en charge ionique.

Dans le cas idéal où l'énergie cinétique et la charge ionique seraient indépendants, la

valeur du rendement de la masse A pourrait se calculer de façon parfaitement rigoureuse avec l'équation (4.4). Cependant, comme le modèle de Shima le laissait pressentir, la figure 5.25 met bel et bien en évidence l'existence d'une corrélation entre ces deux grandeurs, la charge ionique dépendant de l'énergie cinétique.

Un fit des énergies cinétiques moyennes représenté par les traits blancs de cette figure montre que l'énergie cinétique des produits de fission ne dépend pas de leur charge ionique. Il y a en effet aucune raison de dépendance dans ce sens.

La dépendance de la charge ionique en fonction de l'énergie semble plus prononcée dans la région des masses lourdes que dans celle des masses légères, cette tendance étant par ailleurs prédite par les équations de Shima. La figure 5.26 représente les charges ioniques moyennes calculées selon l'équation (4.4).

Afin d'estimer les incertitudes résultantes de cette approximation, les valeurs des rendements pour les masses 98 et 136, calculées par la somme des rendements de toutes les combinaisons (E_k, q) , ont été comparées à toutes les possibilités de mesure. C'est à dire que pour chacune des distributions en charges ioniques prises séparément, les rendements des deux masses ont été calculés suivant l'équation (4.4) pour toutes les distributions en énergie cinétique, et inversement. Les résultats sont reportés dans le tableau 5.2.

	$q_m - 3$	$q_m - 2$	$q_m - 1$	q_m	$q_m + 1$	$q_m + 2$	$q_m + 3$
$E_{k_m} - 8 \text{ MeV}$	> 15%	> 11%	> 7%	> 4%	> 7%	> 11%	> 15%
$E_{k_m} - 4 \text{ MeV}$	> 15%	> 7%	> 3%	> 2%	> 3%	> 7%	> 15%
E_{k_m}	> 15%	> 5%	> 2%	> 1%	> 2%	> 5%	> 15%
$E_{k_m} + 4 \text{ MeV}$	> 15%	> 7%	> 3%	> 2%	> 3%	> 7%	> 15%
$E_{k_m} + 8 \text{ MeV}$	> 15%	> 11%	> 7%	> 4%	> 7%	> 11%	> 15%

TAB. 5.2 – Pourcentage d'erreur généré par l'hypothèse de non-corrélation de l'énergie cinétique avec la charge ionique dans le calcul du rendement des masses. Les valeurs E_{k_m} et q_m représentent les valeurs moyennes des distributions respectives.

Ce tableau souligne en particulier l'importance du choix de la charge ionique q_i à laquelle sera mesurée la distribution en énergie cinétique $S_{E_k}(q_i)$, ou inversement.

Le choix de cette charge se réduit à la charge moyenne de la distribution \pm une charge pour garder des erreurs $< 5\%$, sous la condition d'un choix pertinent de l'énergie E_{k_j} pour la mesure de la distribution en charge.

En revanche, le choix de l'énergie cinétique E_{k_j} est moins délicat que celui de q_i , puisqu'il bénéficie d'une gamme de plus de 8 MeV pour des erreurs $< 5\%$, si toutefois la valeur q_i correspond à la valeur moyenne de la distribution.

Cependant, le choix de la charge q_i ne représente pas en soi une grande difficulté puisque les variations de la charge ionique moyenne d'une masse à l'autre sont très faibles.

En revanche, le problème se pose d'avantage lorsque la distribution en charge présente un isomère nanoseconde. Une mesure complète de la distribution en masse d'une telle masse n'ayant pas pu se faire, il est difficile d'estimer la contribution de l'isomère dans une telle formule. Dans ces cas, les erreurs seront surestimées.

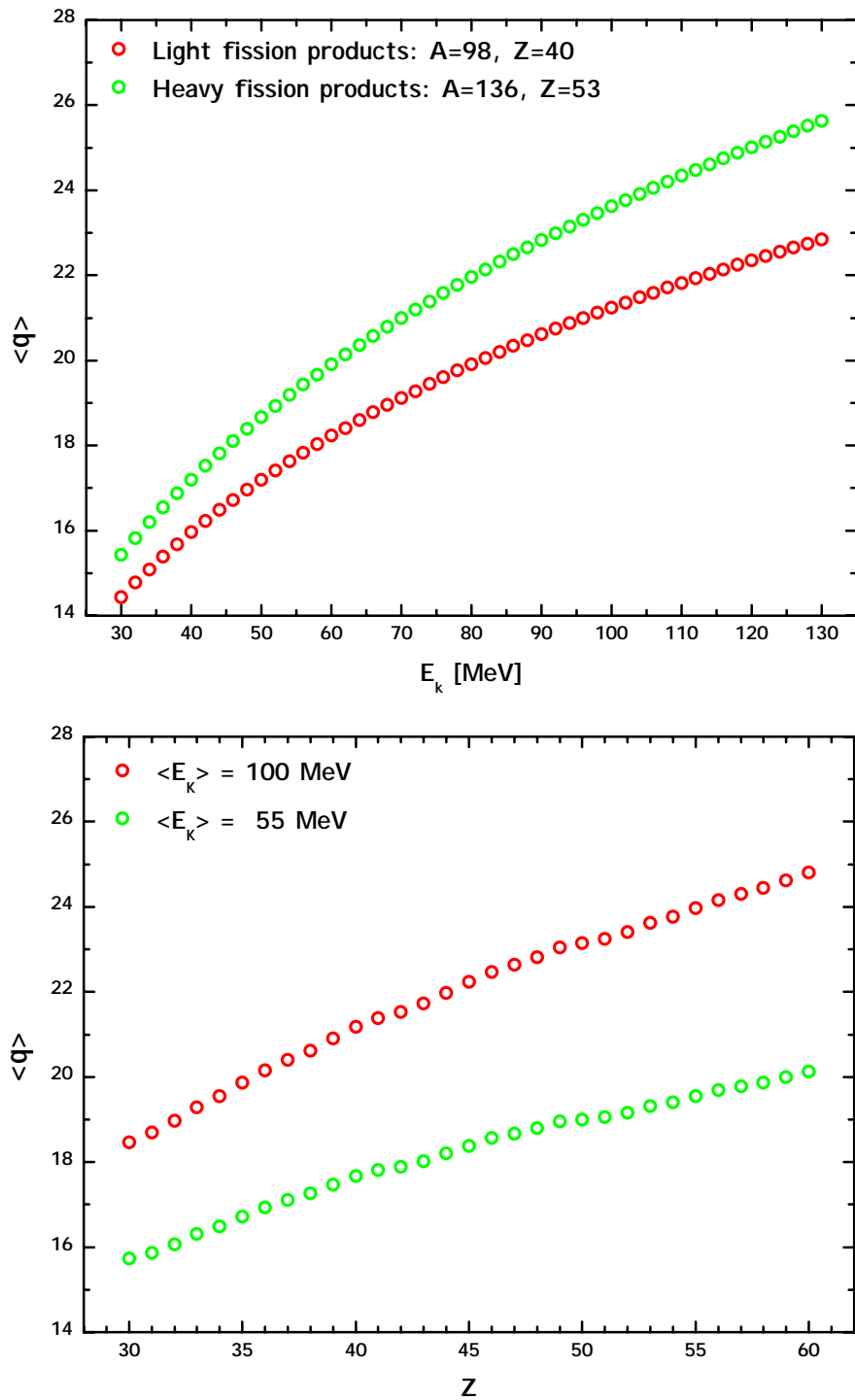


FIG. 5.26 – Dépendance des charges ioniques moyennes calculées selon le modèle de Shima des produits de fission après traversée d’une feuille de Nickel selon les énergies cinétiques (haut) et les charges nucléaires (bas) des ions.

Chapitre 6

Rendements en masse

6.1 Normalisation et calculs d'incertitude

6.1.1 Normalisation

La mesure des rendements sur le Lohengrin n'est jamais absolue.

Il est en effet impossible d'évaluer à chaque instant le nombre de fission dans la cible, puisque le flux de neutrons thermiques à l'entrée du spectromètre, la composition exacte de la cible ainsi que ses variations ne sont pas parfaitement connus en fonction du temps.

Une masse de référence mesurée régulièrement permet d'évaluer à chaque instant les corrections nécessaires à prendre en compte sur chaque point mesuré (chapitre 4 paragraphe 4.5.5). Il est ainsi possible de comparer les rendements de chaque masse les unes entre elles (rendements relatifs).

Par convention, la somme des rendements de tous les produits de fission est égale à 2. Il suffit alors d'égaliser à 1 les rendements en masse de la bosse lourde pour déterminer les rendements absolus.

Cependant une mesure exhaustive de toutes les masses lourdes n'a jamais pu être réalisée, que ce soit pour l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, le $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$, ou le $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Deux possibilités de normalisation sont alors possible :

- Renormer toute la distribution sur une seule masse pour laquelle le rendement est très bien connu dans la littérature.

Ce choix est pertinent lorsque la donnée de la littérature est très bien connu et exacte. Dans le cas contraire, l'erreur engendrée serait alors répercutée sur toutes les autres masses.

- Renormer la distribution en masse sur la somme des rendements.

Lorsque cette distribution n'a pas été entièrement mesurée, il suffit de l'égaliser à la somme des mêmes rendements pour une évaluation choisie plutôt qu'à la valeur 1.

Cette solution a l'avantage de moyennner les erreurs potentielles des bibliothèques, même si elle reste moins rigoureuse que la première lorsqu'une grande quantité de masse n'a pas été mesurée. En effet, la probabilité que les rendements des queues de distribution aient été mal estimés est au moins aussi importante que celle de s'appuyer sur une valeur fausse pour une masse choisie !

Comme au cours de nos mesures la quasi-totalité des masses de la bosse lourde ont été mesurées, tableau 6.1, c'est la seconde solution qui a été choisie pour normaliser les rendements en masse des produits de fission. Elle évite surtout de renormaliser toute la distribution sur une masse qui aurait potentiellement mal été estimée expérimentalement.

Réaction étudiée	Masses mesurées	Somme des pf (<i>JEFF3.1</i>) sur les masses mesurées
$^{235}\text{U}(n_{th},f)$	128 à 152	0,99
$^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	126 à 150	0,94
$^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$	130 à 151	0,94

TAB. 6.1 – Somme des rendements des produits de fission de la bibliothèque JEFF3.1 pour les masses mesurées des trois noyaux étudiés.

6.1.2 Incertitudes

6.1.2.1 Incertitudes statistiques

L'erreur statistique absolue ΔI est égale à la racine carré du taux de comptage I de chaque mesure :

$$\Delta I = \sqrt{I}$$

L'erreur statistique relative $\Delta I/I$ est calculée comme étant l'inverse de la racine carré du taux de comptage de chaque mesure :

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{1}{\sqrt{I}}$$

6.1.2.2 Incertitudes systématiques

Elles sont de trois types :

Incertitude due au dispositif expérimental,

Incertitude due à la combustion de la cible et au flux du réacteur,

Incertitudes liées à la méthode de calcul.

Incertitudes systématiques dues au dispositif expérimental

Elles prennent en compte les erreurs induites par le spectromètre et la chambre à ionisation.

Même si la résolution de ces deux dispositifs est très bonne, certaines erreurs systématiques qui sont générées à cause des multiples variations de champ subies par les dipôles au cours des mesures doivent être prises en compte.

A titre d'exemple, la réponse de l'aimant ne sera pas exactement la même lorsque celui-ci va se stabiliser autour d'une valeur sélectionnée selon une certaine erreur si il avait au préalable un champ inférieur ou supérieur à celle-ci. Même si ce phénomène reste faible, il est important considérer dans les erreurs que les réponses des deux dipôles ne sont pas parfaitement linéaires.

Afin de pouvoir quantifier ces incertitudes, et parce que les courbes d'hystérésis de l'aimant principal et du condensateur n'ont jamais été appréciées, chacun des points qui ont été mesurés plusieurs fois au cours des différentes expériences ont été comparés. Pour la détermination du rendement de la masse A , sa distribution en énergie cinétique est d'abord mesurée, puis ensuite celle en charge ionique (ou inversement). De cette façon au moins un point est remesuré deux fois pour chaque masse, d'abord lors de la mesure de la première distribution, puis une autre fois grâce à la mesure de la seconde distribution. Comme l'historique des variations du champ magnétique et du champ électrique sont différentes pour ces deux mesures, l'influence de l'hystérésis de ces dipôles est bien prise en compte. L'écart entre ces points de mesure permet d'évaluer les erreurs systématiques qui sont directement dues au dispositif expérimental. Elles sont inférieures à 1,5 % et

représentent une incertitude de l'ordre de 0,58 % en prenant en compte l'ajustement des distributions.

Incertitudes systématiques dues à la combustion de la cible et au flux du réacteur

La combustion de la cible, ainsi que les variations du flux du réacteur, sont deux effets pris en compte par les courbes du burn-up. Ces incertitudes sont donc données par les erreurs du fit de ces points, et sont, contrairement aux incertitudes liées au dispositif expérimental, différentes pour chaque expérience. Elles sont répertoriées dans le tableau 6.2.

Réaction étudiée	Incertitude liée à la cible et au flux du réacteur
$^{235}\text{U}(n_{th},f)$	0,2%
$^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$	0,6%
$^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$	0,5%

TAB. 6.2 – Incertitudes systématiques liées à la combustion de la cible et aux fluctuations du réacteur.

Incertitudes systématiques liées à la méthode de calcul

Déterminer les rendements simplement à partir d'une distribution en charge ionique et d'une distribution en énergie cinétique est indispensable à cause du temps que nécessiterait la mesure exhaustive de tous les rendements $Y(A, q_i, E_{k_j})$ d'une seule masse (chapitre 4). Cependant, cette méthode (équation (4.1)) n'est correcte que lorsque la distribution en énergie cinétique est mesurée pour une charge ionique très proche de sa valeur moyenne, et vice-versa, lorsque la distribution en charge ionique est mesurée à une valeur proche de l'énergie cinétique moyenne. Dans le cas contraire les incertitudes deviennent très vite démesurées.

L'étude de la distribution en masse a permis de mettre en évidence l'importance de se placer sur la charge ionique moyenne lors de la mesure de la distribution en énergie (chapitre 4 paragraphe 3). Pour la mesure des distributions en état de charge, la gamme en énergie pour laquelle cette distribution doit être mesurée est de plusieurs MeV autour de la valeur moyenne.

Bien que ce résultat soit contraignant, il reste cependant encourageant quant à la pertinence de cette méthode puisque la charge ionique moyenne varie très peu d'une masse à l'autre et qu'il est donc ainsi facile de respecter ces conditions de mesure.

6.1.2.3 Incertitudes totales

L'incertitude systématique totale est égale à la somme linéaire des trois différentes incertitudes systématiques présentées auparavant. Parcequ'elles ne sont pas de la même nature, elles ne peuvent pas être sommé quadratiquement.

Les incertitudes totales représentées sur les figures sont la somme des incertitudes statistiques avec l'incertitude systématique totale.

6.2 Résultats

6.2.1 $^{235}\text{U}(n_{th},f)$

Les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sont données dans le tableau 6.3 et représentés sur la figure 6.3.

Masse A	Rendement	Incertitude statistique (%)	Incertitude systématique (%)
123	1,26 E-04	1,5	3,0
124	2,41E-04	1,5	3,0
125	3,64 E-04	1,5	3,0
126	5,78 E-04	1,5	3,0
127	1,52 E-03	1,5	3,0
128	5,10 E-03	0,5	2,3
129	9,16 E-03	0,5	2,1
130	1,97 E-02	1,2	2,0
131	3,11 E-02	0,8	2,0
132	4,40 E-02	0,4	2,0
133	6,90 E-02	0,4	2,0
134	7,82 E-02	0,4	2,0
135	6,16 E-02	0,4	3,1
136	6,54 E-02	0,4	3,1
137	7,04 E-02	0,4	7,0
138	6,42 E-02	0,4	3,1
139	6,26 E-02	0,4	3,1
140	5,91 E-02	0,4	5,3
141	5,92 E-02	0,4	2,1
142	5,36 E-02	0,4	6,4
143	5,76 E-02	0,4	3,1
144	5,26 E-02	0,4	2,3
145	4,09 E-02	0,4	2,3
146	3,03 E-02	0,4	3,0
147	2,28 E-02	0,4	2,2
148	1,76 E-02	1,0	2,3
149	9,43 E-03	1,2	2,3
150	6,82 E-03	1,2	3,6
151	4,73 E-03	0,6	3,5
152	2,60 E-03	0,6	3,4

TAB. 6.3 – Rendement en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$.

Au cours de ces travaux, de gros problèmes quant à la stabilité du spectromètre ont été détectés. Il a dans un premier temps été nécessaire d'identifier le module défaillant et d'établir la cause du problème. Le générateur de haute tension en était responsable. La réparation a été longue et laborieuse, photo. 6.1.

Finalement, ce module de haute tension a été complètement remplacé, et afin de certifier de l'exactitude et de la reproductibilité des mesures du spectromètre, la fission de $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ a été mesurée à deux reprises.

La comparaison de ces deux résultats confirme le bon fonctionnement actuel du Lohengrin, comme le montre la figure 6.2. Elle représente, en rose, les rendements en masse mesurés pour une puissance thermique du réacteur de 35 MW (fonctionnement anormal), et en noir, ces mêmes rendements mesurés pour une puissance de réacteur de 53 MW (puissance nominale).



FIG. 6.1 – Thomas Materna (gauche) et Herbert Faust (droite) pendant la réparation d'une des résistance du générateur de haute tension.

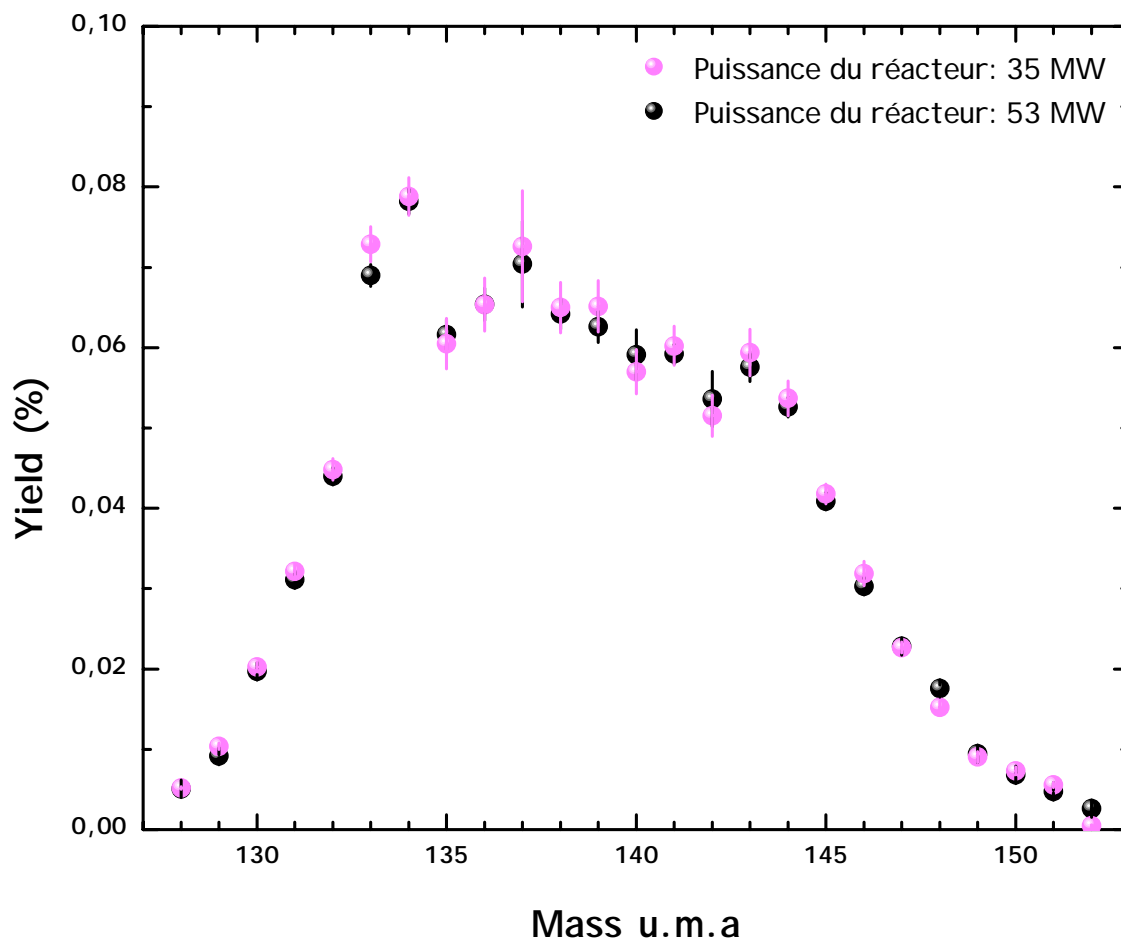


FIG. 6.2 – Rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

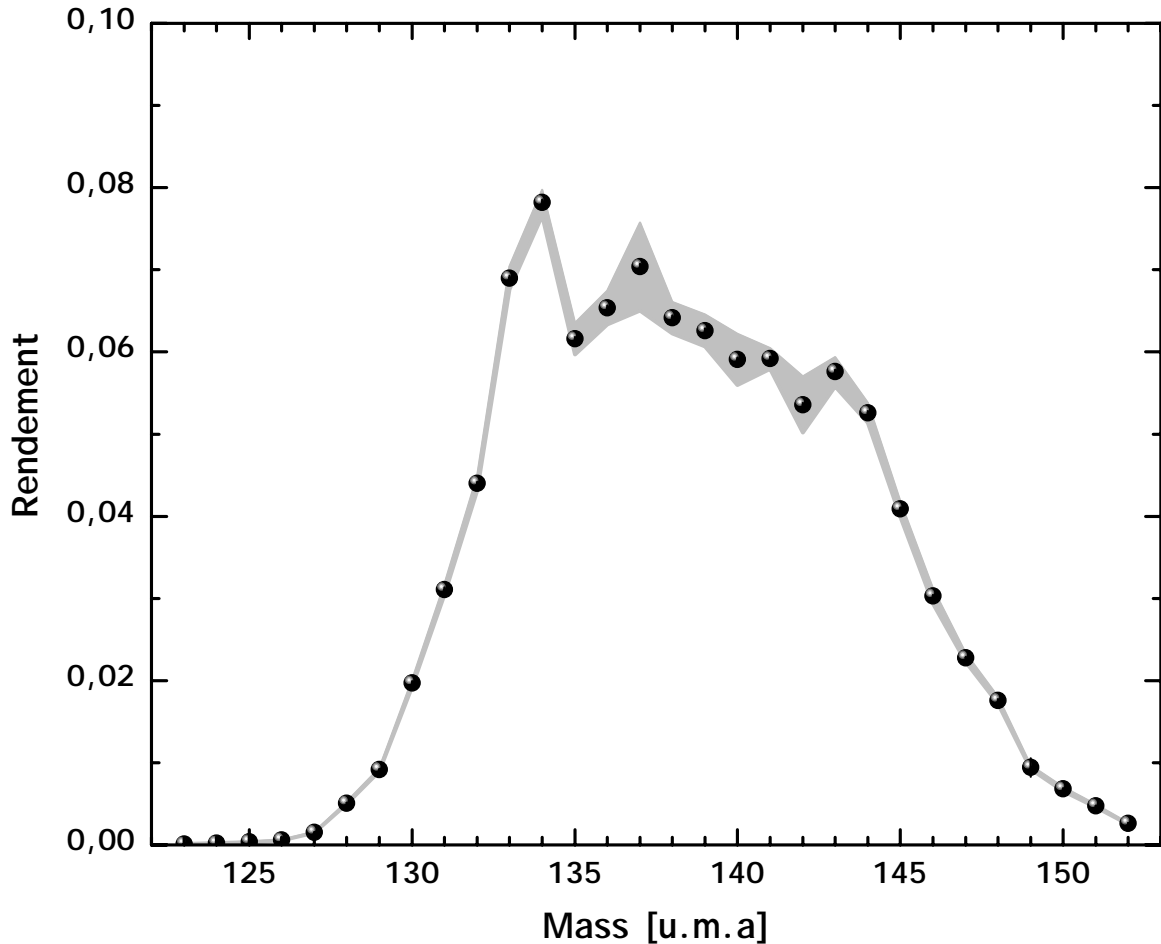


FIG. 6.3 – Rendement en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques sont représentées par des barres verticales sur chaque point, alors que les valeurs des incertitudes systématiques sont données par la courbe hachurée.

L'intérêt de comparer ces deux mesures prises pour deux conditions différentes de fonctionnement du réacteur se trouve plus dans la différence des conditions expérimentales qu'elles impliquent (temps d'acquisition/combustion de cible) que dans le fonctionnement du réacteur même.

Comparaison de ces résultats avec différentes bibliothèques de données nucléaires.

Les résultats sont ici comparés avec les trois bibliothèques les plus courantes, qui sont la bibliothèque européenne, *JEFF3.1* (figure 6.4), américaine, *ENDFB-VI* (figure 6.5), et japonaise, *JENDL-3.3* (figure 6.6).

Les incertitudes des rendements en masse des bibliothèques de *JEFF3.1* et de *ENDFB.6* n'étant pas disponibles, les incertitudes représentées sur les figures suivantes correspondent à la somme quadratique des incertitudes données pour les rendements isotopiques. Elles sont donc surrestimées. La bibliothèque *JENDL3.3* ne fournit aucune erreur sur les données.

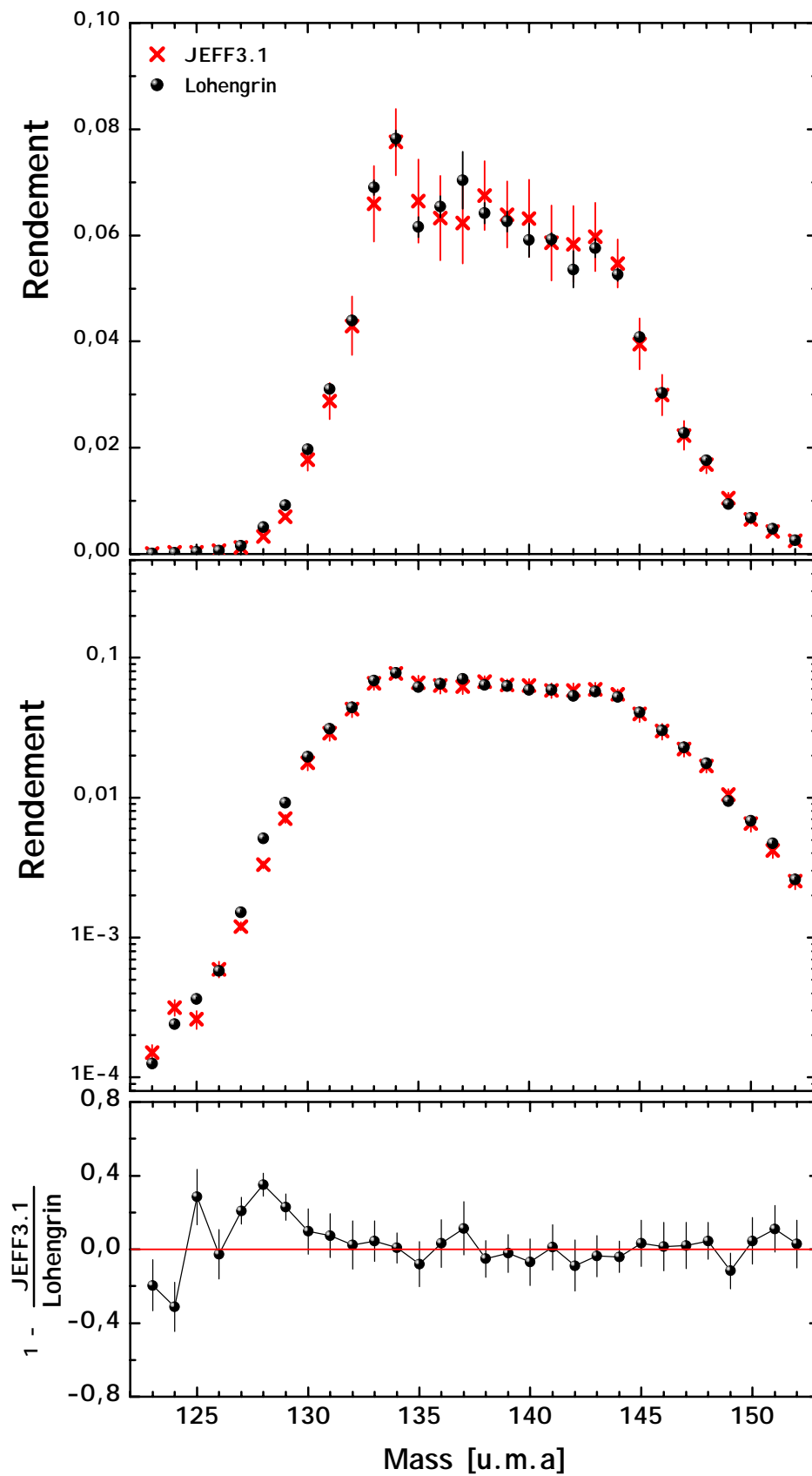


FIG. 6.4 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JEFF3.1*.

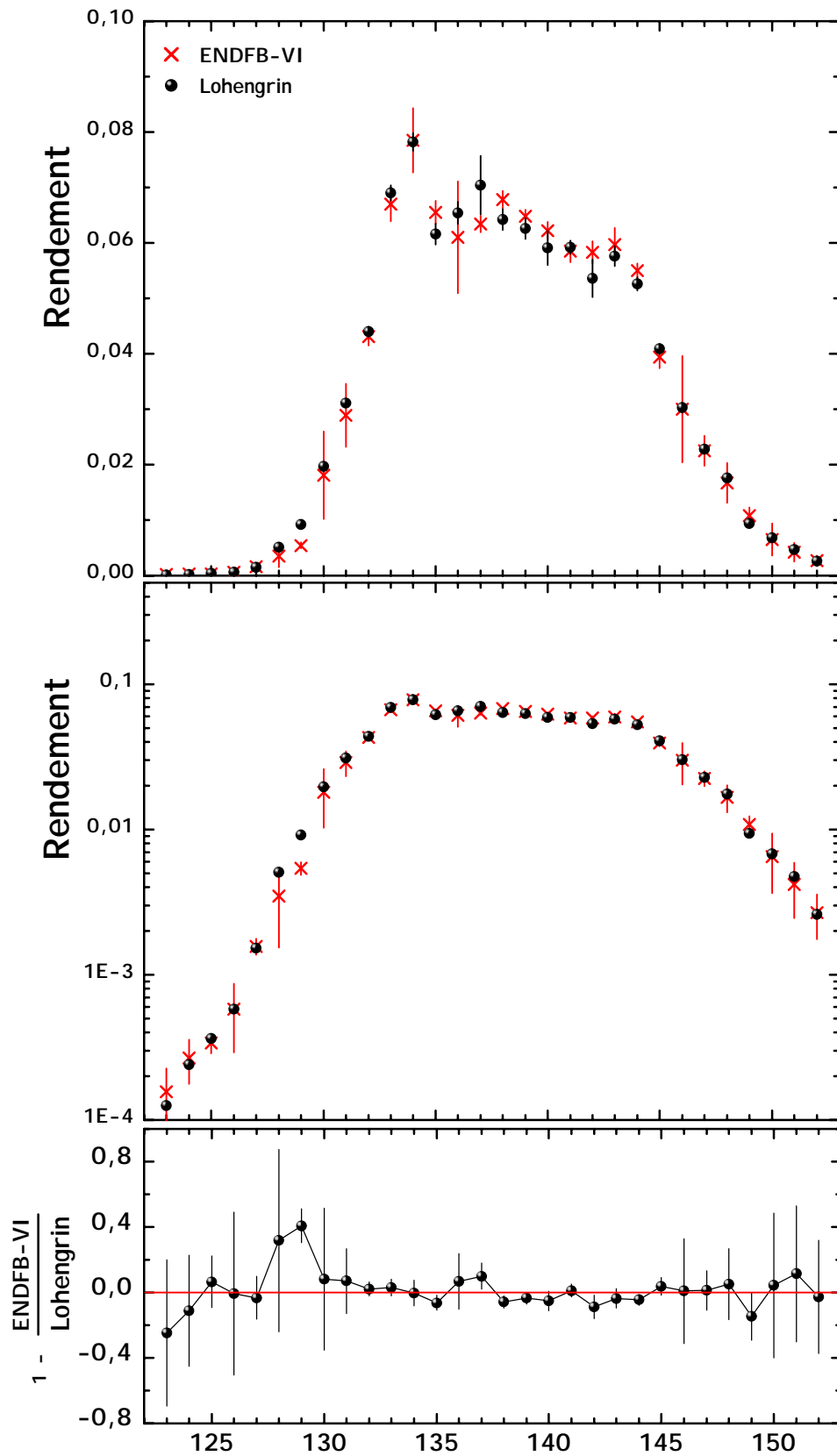


FIG. 6.5 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *ENDFB-VI*.

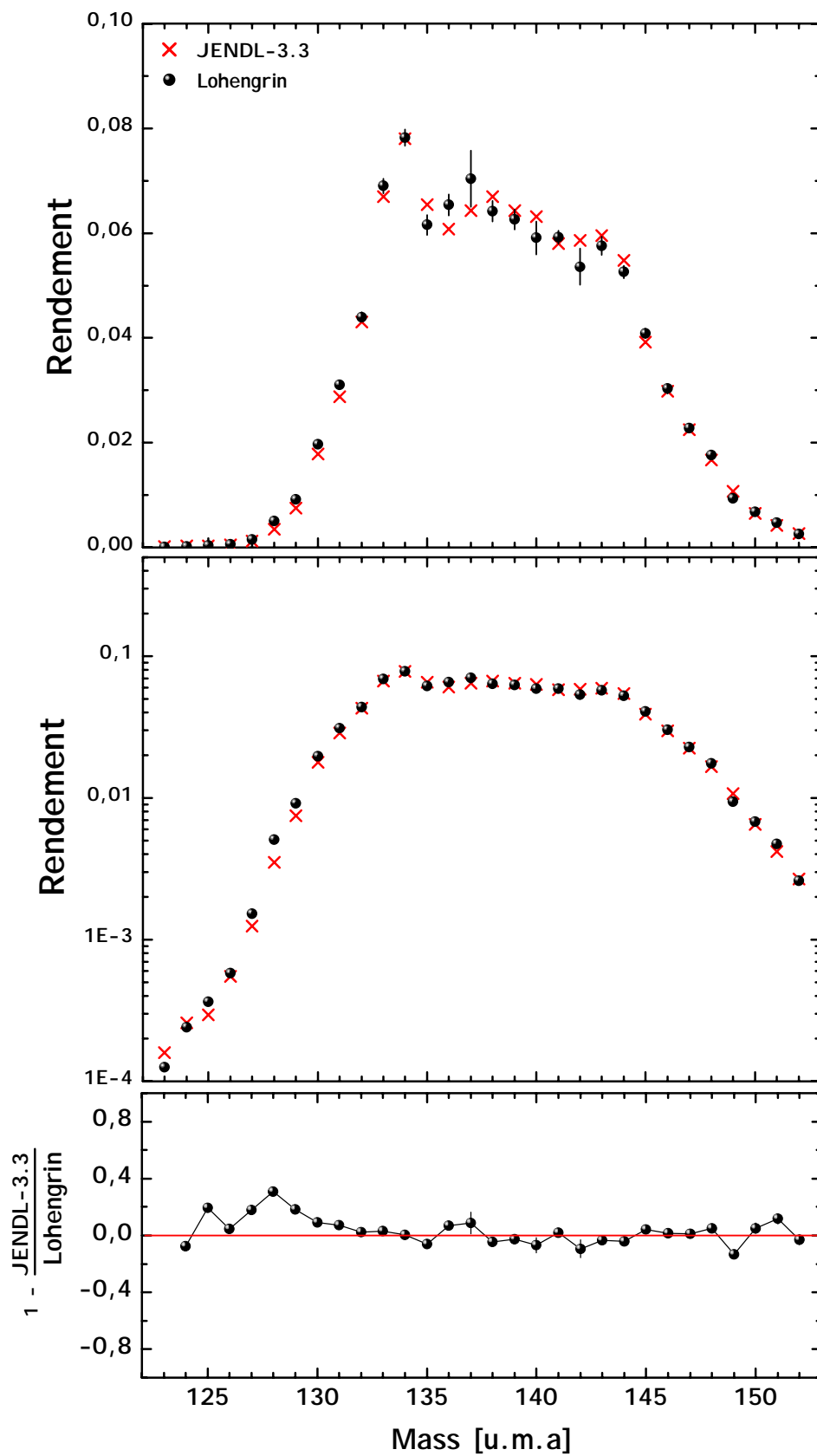


FIG. 6.6 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JENDL-3.3*.

Comme la fission thermique de l' ^{235}U a été à maintes reprises étudiée, les rendements en masse de ce noyau sont bien connus.

Ainsi, la mesure de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ a permis, et de vérifier le bon fonctionnement de la nouvelle haute tension, et de valider ce type de mesure sur le Lohengrin pour la détermination des rendements de fission lourds.

La comparaison des valeurs mesurées avec chacune des trois bibliothèques montre une très bonne adéquation entre les tendances générales de ces résultats.

Il est à noter cependant quelques différences, en particulier sur le sommet de la distribution, notamment pour les masses 137, 140 et 142.

Ces fluctuations se retrouvent pour les deux distributions des rendements mesurés sur le Lohengrin (figure 6.2). Elles ne peuvent donc pas provenir d'une erreur de mesure. Les distributions en énergie cinétique de ces masses ne présentent aucune caractéristique particulière, et s'il est vrai que leurs distributions en charge ionique révèlent, pour chacune d'entre elles, la présence d'un isomère nanoseconde, ceci explique difficilement la différence de ces valeurs avec celles des bibliothèques, ces trois masses n'étant pas les seules pour lesquelles un isomère nanoseconde ait été détecté.

Comparaison avec les données évaluées de Wahl

La figure 6.7 donne une comparaison des données évaluées par le modèle Z_p de Wahl avec les mesures du Lohengrin.

Les ailes de la distribution en masse évaluées par le modèle de Wahl ou mesurées sur le Lohengrin sont en très bon accord.

En revanche, le plateau de cette distribution présente quelques fluctuations pour les valeurs mesurées qui ne sont pas retranscrites par les données évaluées, en particulier pour les masses 137, 140 et 142. Il est vraisemblable que les structures dessinées pour les rendements mesurés sont la conséquence d'un état isomérique dont la distribution en énergie est différente de celle de l'état fondamental.

Comparaison avec la mesure expérimentale des rendements de masse avant émission des neutrons prompts

Les rendements en masse des produits de fission de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ ont été mesurés en 1968 sur le spectromètre Hiawatha du Japon par A. Tsoukatos. Contrairement aux mesures de chambre à fission qui ne fournissent que des données avant émission des neutrons prompts, ces résultats sont directement comparables à nos mesures (figure 6.8).

Il est intéressant de constater un très bon accord entre ces deux mesures, pour les masses lourdes ainsi que la masse légère 98. La masse 137 reste semble-t-il surrestimée sur le Lohengrin.

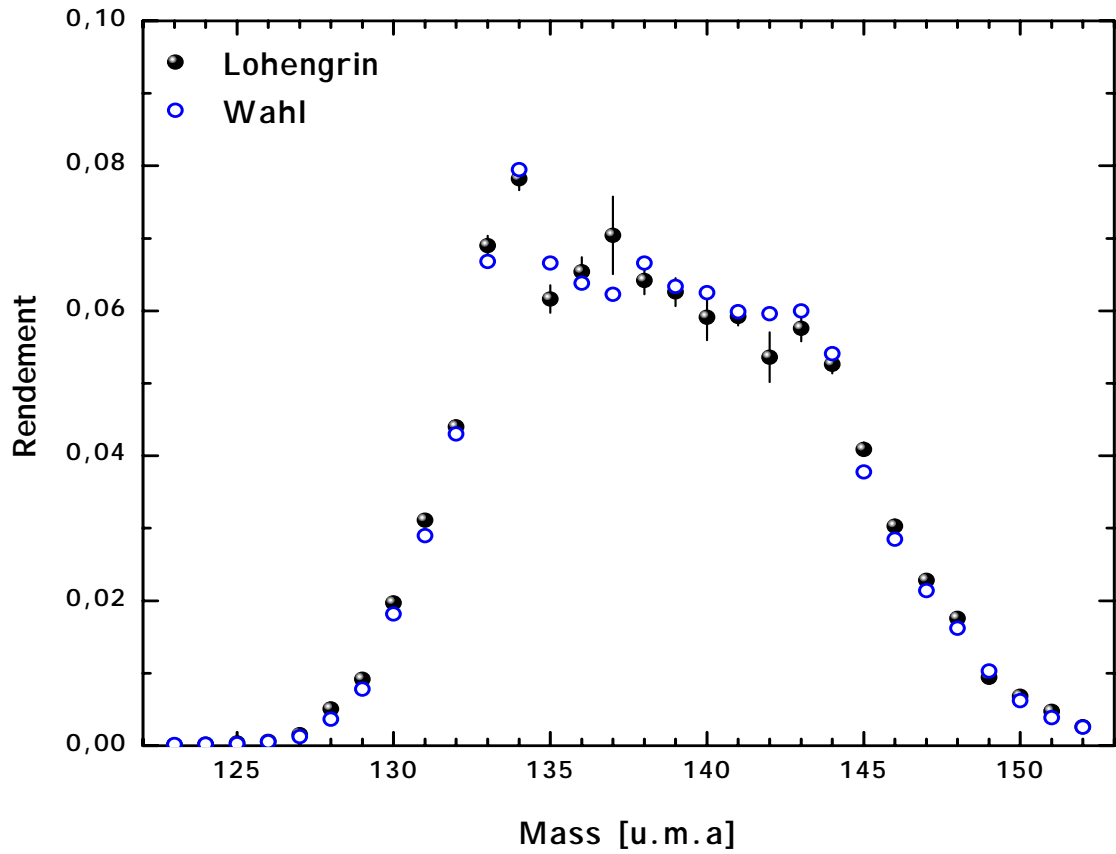


FIG. 6.7 – Rendements en masse mesurés sur le Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p .

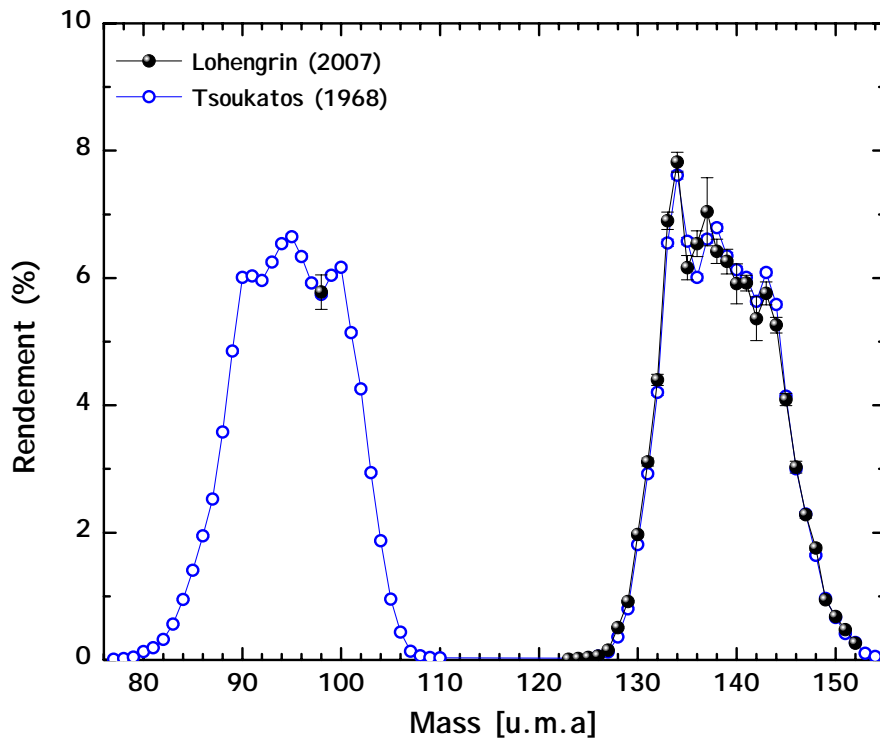


FIG. 6.8 – Comparaison des rendements en masse des produits de fission de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesuré sur le Lohengrin (points en noir) et sur le spectromètre Hiawatha (cercles en bleu).

Comparaison avec des mesures avant émission des neutrons prompts

Comme la majorité des données de rendements de fission disponibles sont des données avant émission des neutrons prompts, la figure 6.9 montre une comparaison de différentes expériences avec nos mesures. Une conversion des mesures de rendements post-neutron à des valeurs pre-neutron est malheureusement impossible.

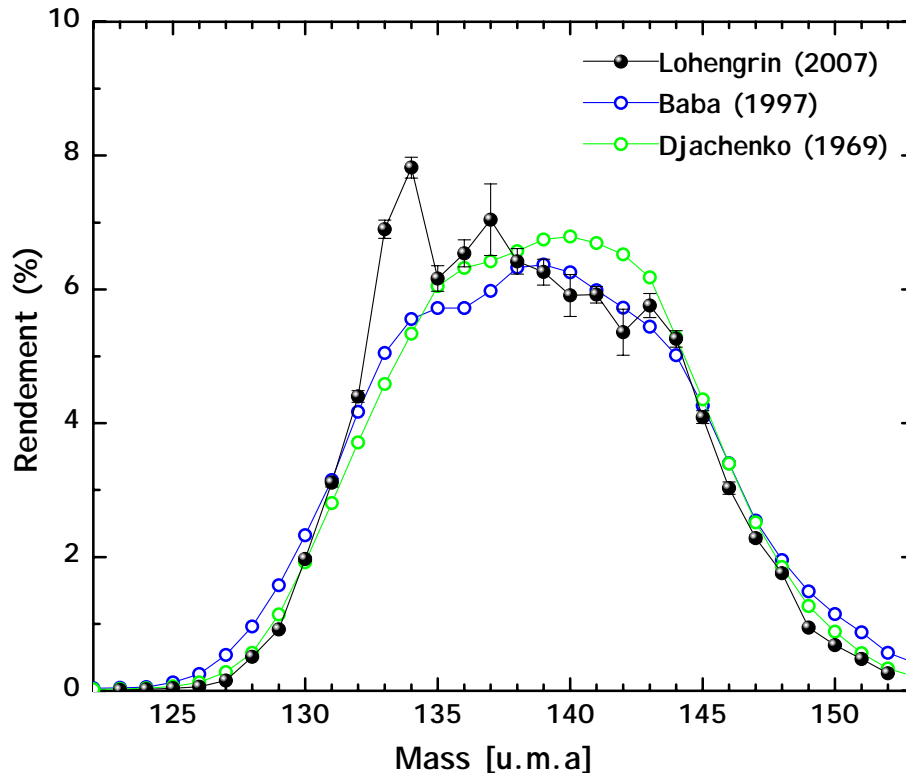


FIG. 6.9 – Comparaison des mesures de rendements de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ post-émission neutronique sur le Lohengrin avec des mesures pre-émission neutronique.

Etude des rendements en fonction des énergies cinétiques

Les figures 6.10 montrent les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ tracés selon les énergies cinétiques des produits de fission : 62 MeV, 68 MeV, 71 MeV, 74 MeV, 78 MeV et 84 MeV. Ces figures mettent en évidence la décroissance de l'énergie cinétique en fonction des masses : plus les énergies cinétiques sont faibles et plus les rendements des masses lourdes sont importants, et inversement. Les figures en haut à gauche et en bas à droite représentent particulièrement cette tendance : seules les masses lourdes sont présentes à l'énergie 62 MeV alors que ce sont les masses les plus légères qui peuplent la distribution à l'énergie plus élevée de 84 MeV.

Entre ces deux extrêmes la distribution en masse comporte des structures plus dessinées pour les énergies cinétiques les plus légères.

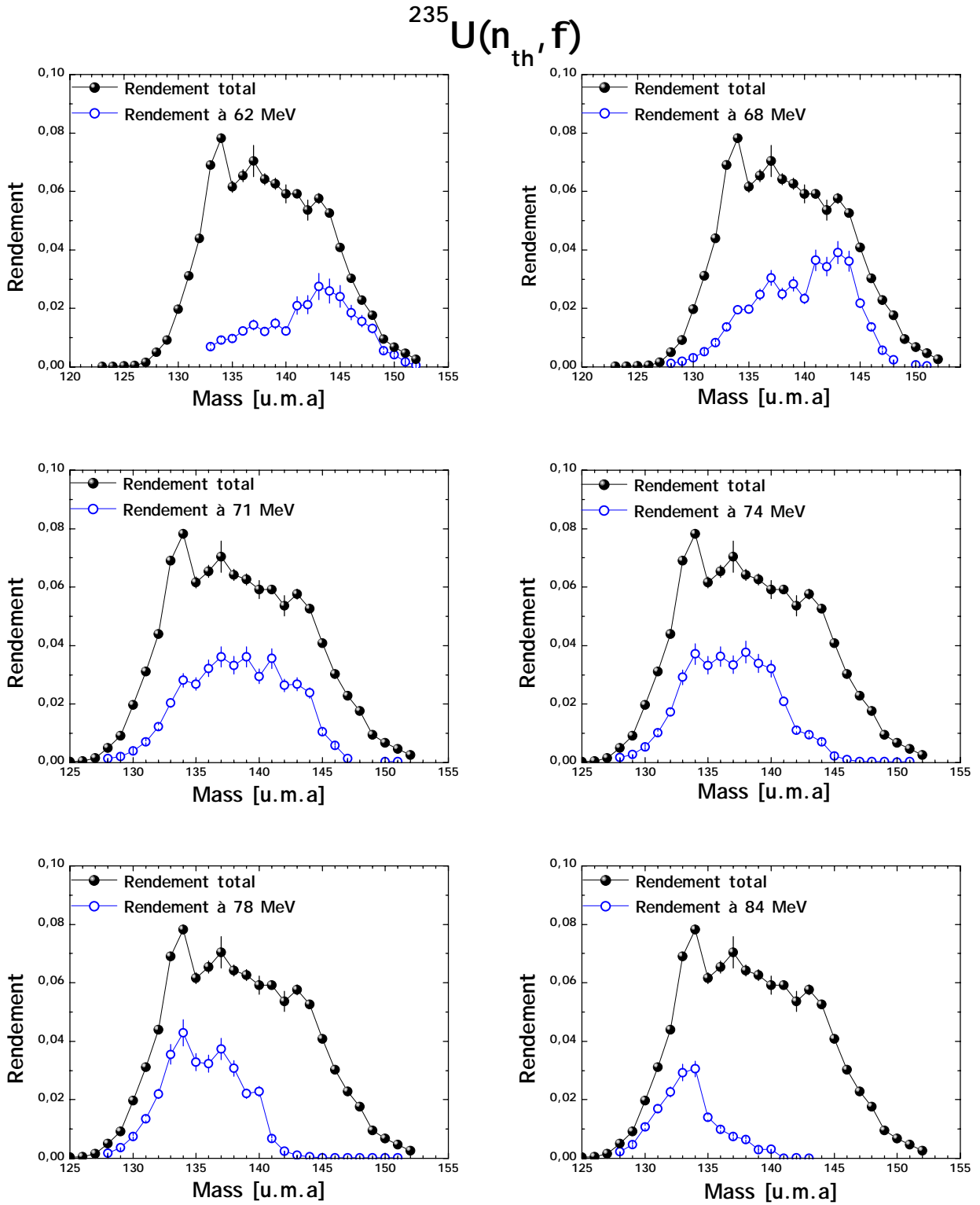


FIG. 6.10 – Rendements en masse tracés pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.

6.2.2 $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$

Les rendements en masse de la fission thermique du ^{239}Pu pour la bosse lourde sont répertoriés dans le tableau 6.4 ainsi que la figure 6.11.

Masse A	Rendement	Incertitude statistique (%)	Incertitude systématique (%)
126	3,00 E-03	0,7	1,2
127	5,48 E-03	0,5	1,2
128	9,58 E-03	0,5	1,2
129	1,70 E-02	0,5	1,2
130	2,74 E-02	0,5	1,2
131	3,85 E-02	0,5	1,2
132	5,10 E-02	0,5	1,2
133	7,22 E-02	0,5	1,7
134	6,88 E-02	0,5	1,4
135	7,59 E-02	0,5	1,7
136	7,31 E-02	0,5	2,7
137	6,91 E-02	0,5	2,6
138	6,09 E-02	0,5	1,2
139	5,71 E-02	0,5	1,3
140	4,81 E-02	0,5	5,6
141	5,13E-02	0,5	5,6
142	4,61 E-02	0,5	6,6
143	4,07 E-02	0,5	4,6
144	4,04 E-02	0,5	4,6
145	3,26 E-02	0,5	3,6
146	2,65 E-02	0,5	1,7
147	2,26 E-02	0,5	5,6
148	1,65 E-02	0,5	5,6
149	1,18 E-02	0,7	5,3
150	8,82 E-03	0,7	8,5

TAB. 6.4 – Rendement en masse pour la réaction $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$.

Comparaison de ces résultats avec différentes bibliothèques de données nucléaires.

De la même manière que pour les rendements de l' $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, les rendements du $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ sont ici comparés sur la figure 6.12 avec les données de *JEFF3.1*, sur la figure 6.13 avec les données de *ENDFB-VI*, et sur la figure 6.14 avec ceux des données de *JENDL-3.3*.

Les rendements mesurés sur le Lohengrin concordent très bien avec ceux disponibles dans les bibliothèques, puisque tous les points rentrent dans les barres d'erreurs (sauf pour la bibliothèque *JENDL-3.3* qui ne contient pas d'incertitude). Cependant, les mesures du Lohengrin mettent en évidence des fluctuations par rapport aux données des bibliothèques, en particulier pour les masses entre 140 et 145. Ces structures fines dans la distribution en masse sont probablement dues à la somme de plusieurs effets, comme aux effets de parité, ou bien à cause des états isomériques présents dans cette gamme de masse.

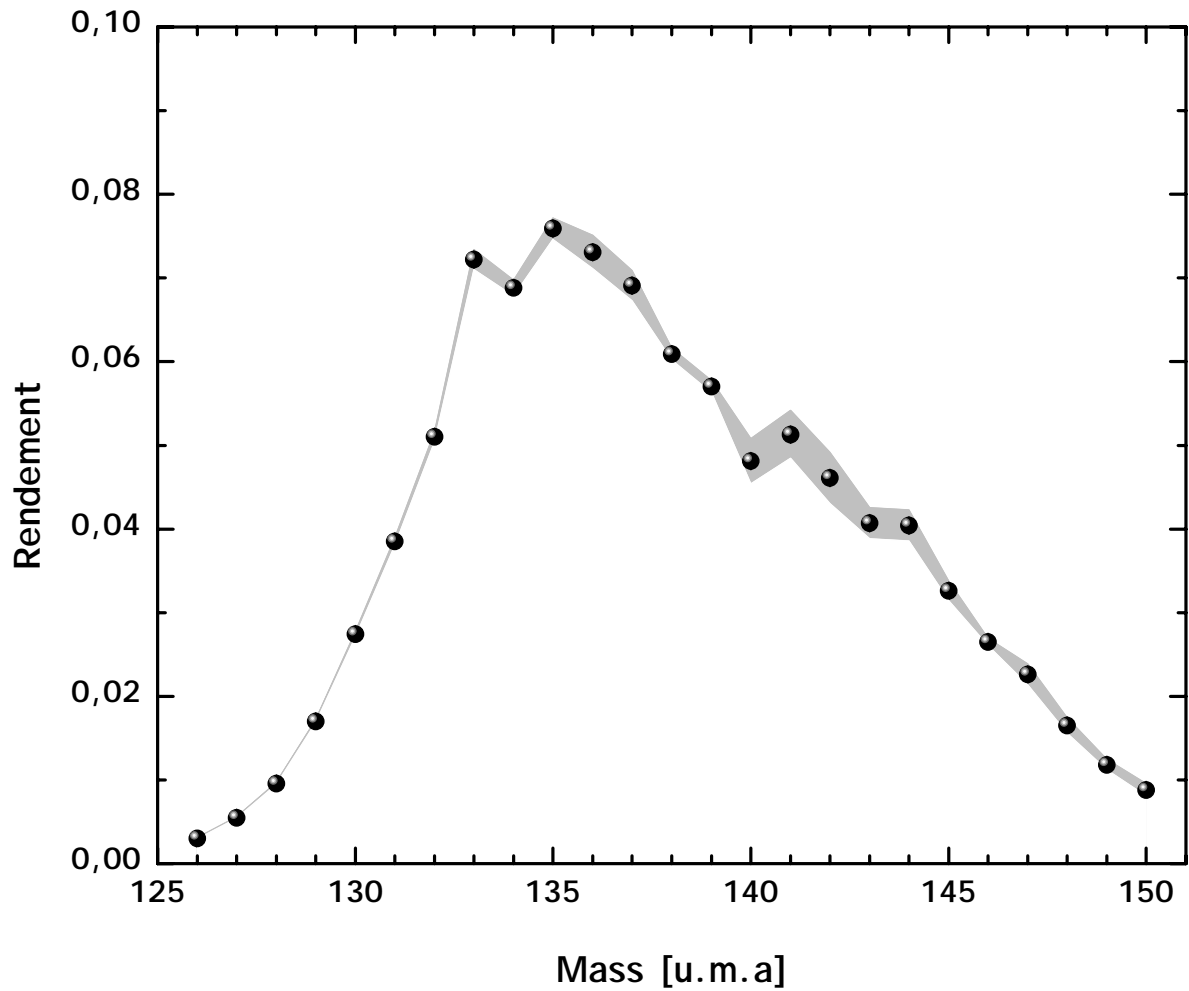


FIG. 6.11 – Rendement en masse pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$. Les incertitudes statistiques sont représentées par des barres verticales sur chaque point, alors que les valeurs des incertitudes systématiques sont données par la courbe hachurée.

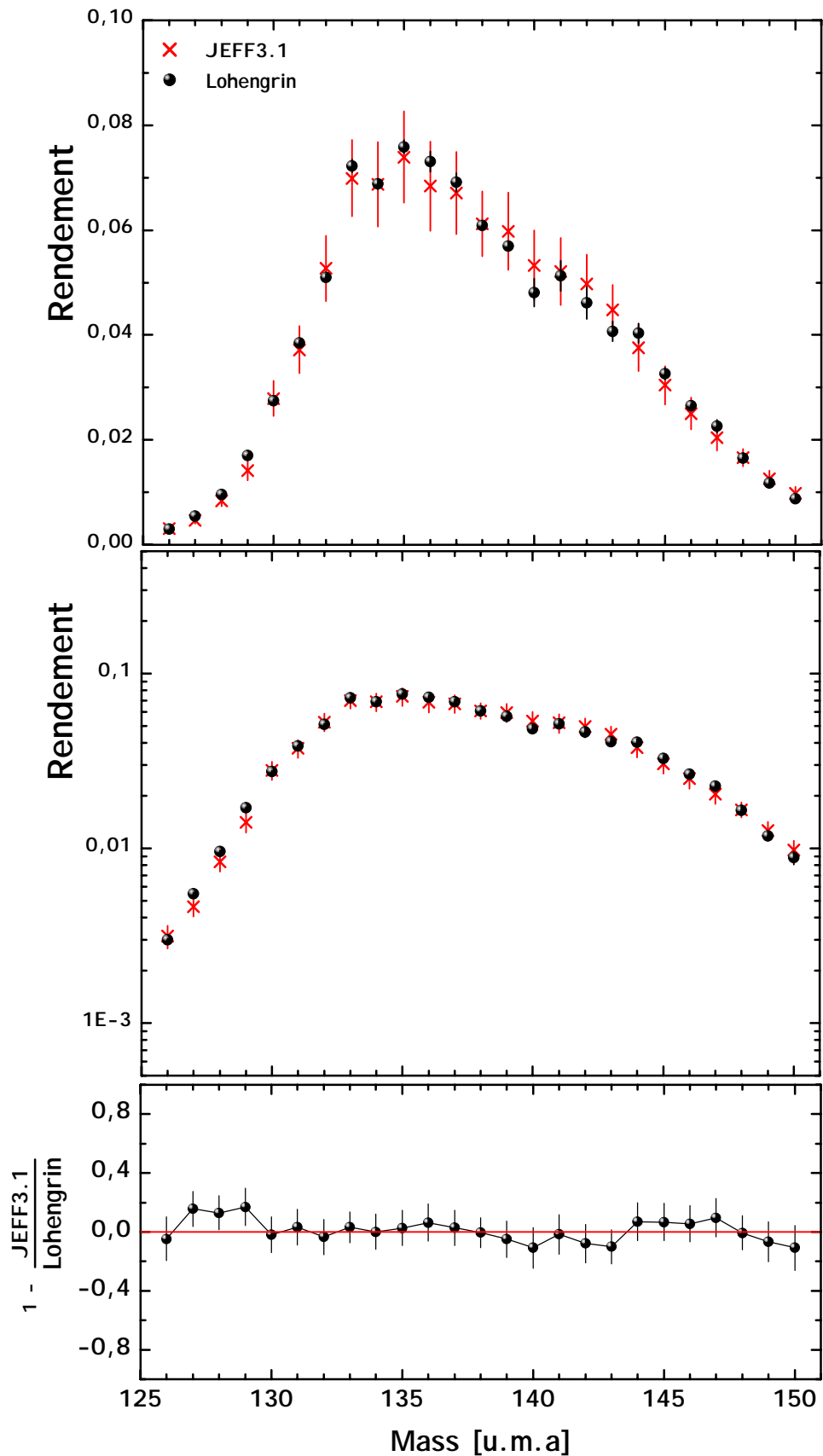


FIG. 6.12 – Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JEFF3.1*.

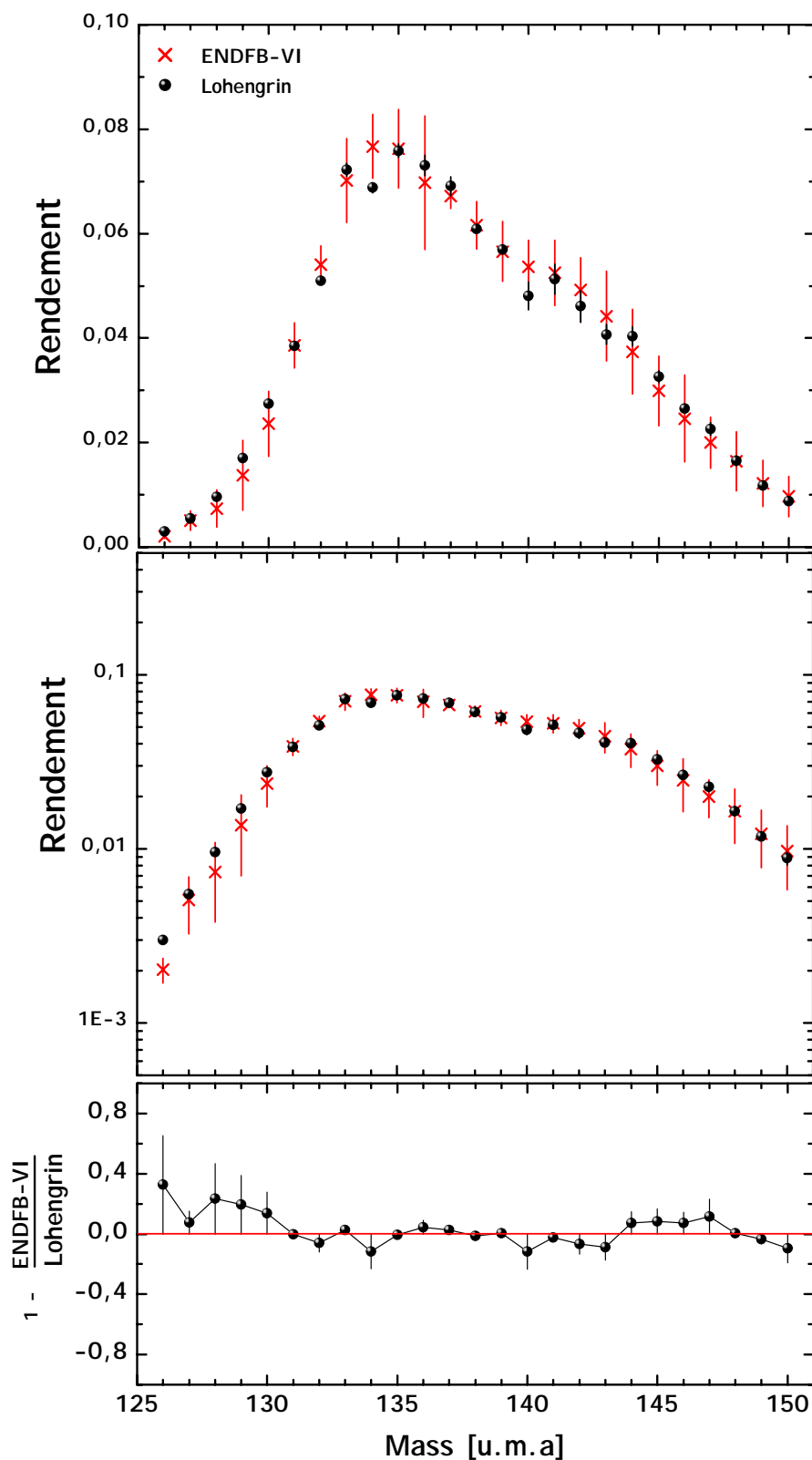


FIG. 6.13 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *ENDFB-VI*.

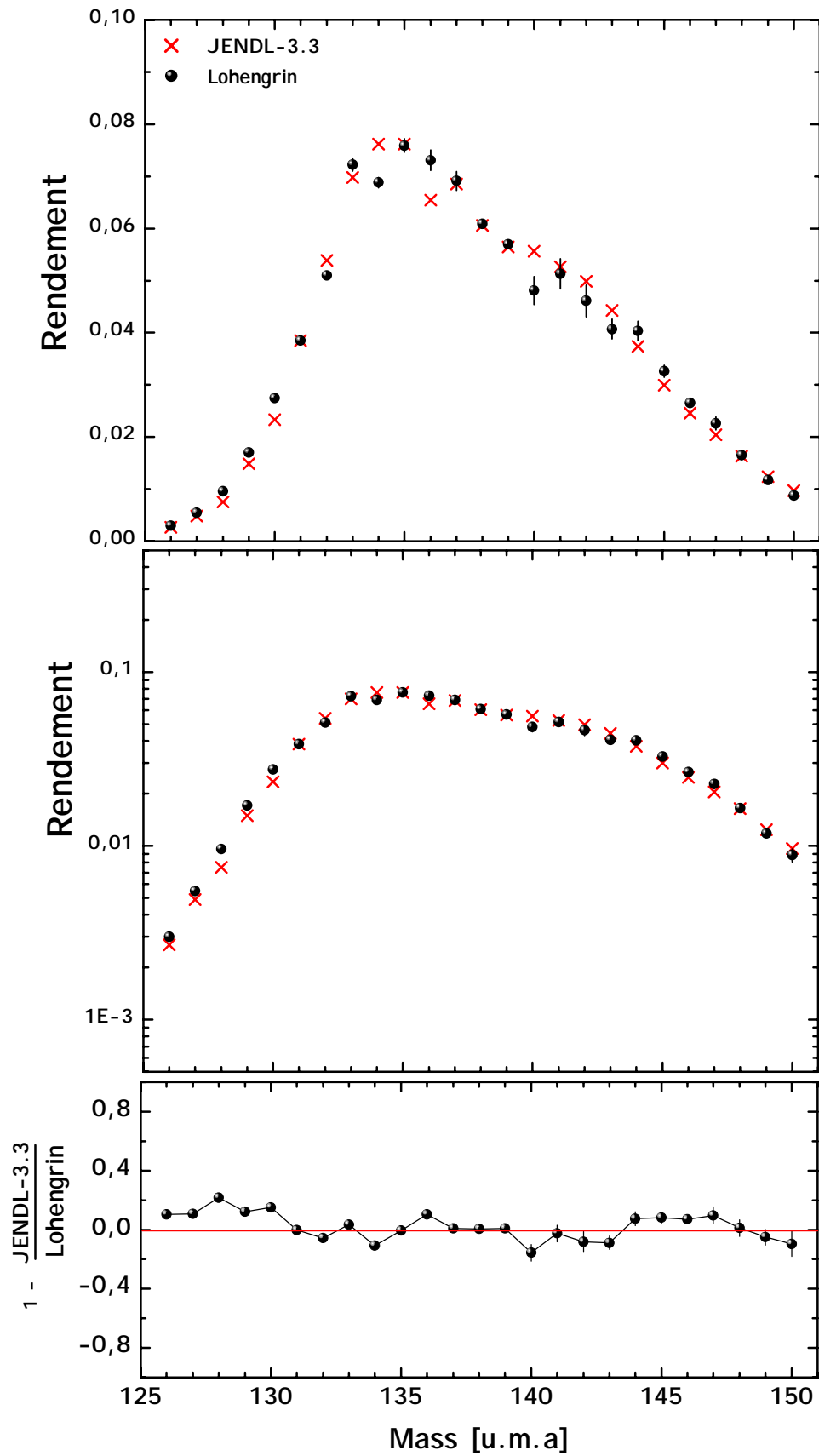


FIG. 6.14 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JENDL-3.3*.

Comparaison avec les rendements légers de la fission du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin

Les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ dans la région des produits de fission légers ont été mesurés en 1984 [S⁺84]. Ils sont montrés figure 6.15.

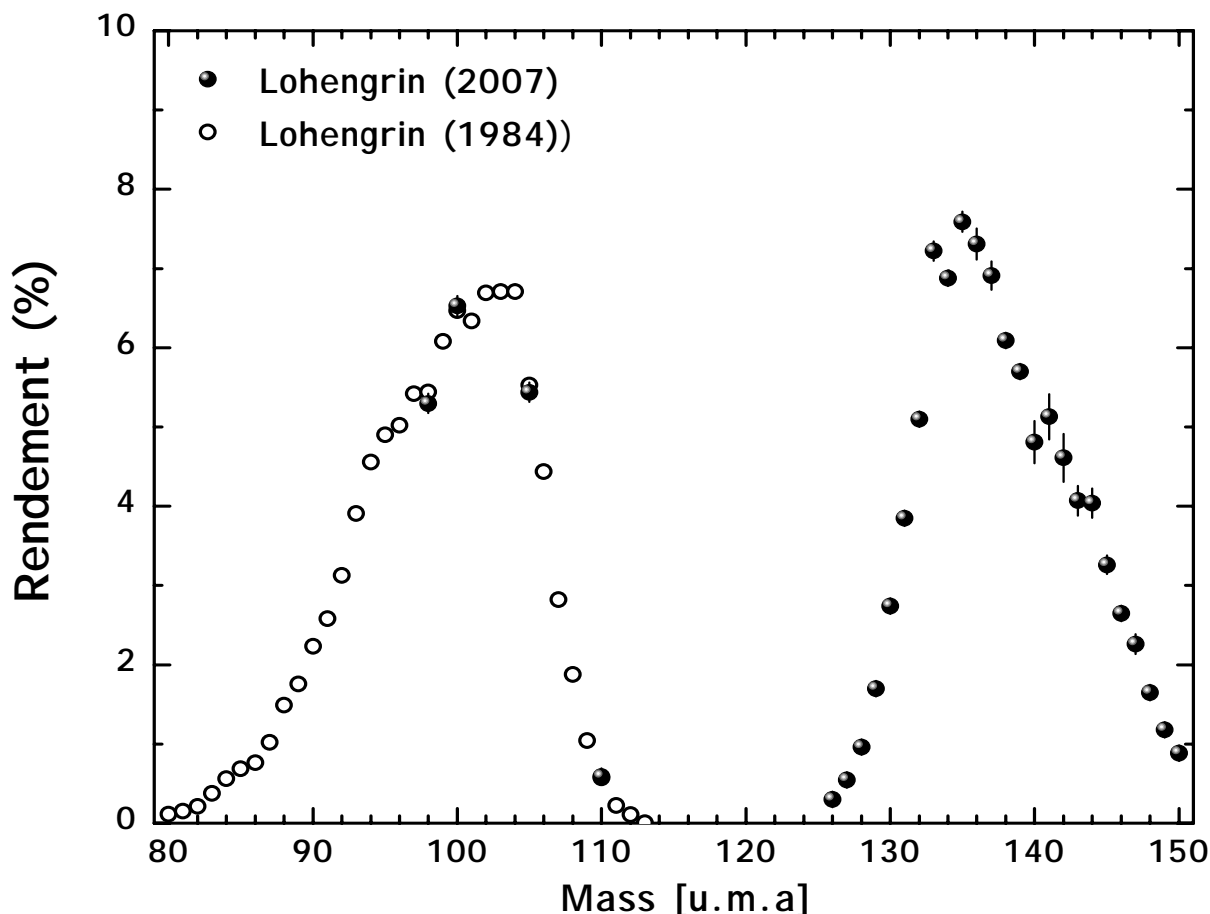


FIG. 6.15 – Rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés dans les légers (cercles) et dans les lourds (points).

Comparaison avec les données évaluées de Wahl

Les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ évalués par le modèle Z_p de Wahl sont comparés aux rendements mesurés sur le Lohengrin à la figure 6.16.

Les mêmes constatations pour ce noyau sont à faire que pour le noyau d'Uranium, c'est à dire que pour certaines masses, les données mesurées montrent des fluctuations beaucoup plus marquées que pour les données évaluées. Ces structures, sur les masses 140 à 143, sont probablement dues à la présence d'isomères nanosecondes.

Comparaison avec des mesures avant émission des neutrons prompts

Une comparaison avec différentes mesures des rendements de fission du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ avant émission de neutrons prompts avec la mesure sur le spectromètre Lohengrin est donnée figure 6.17.

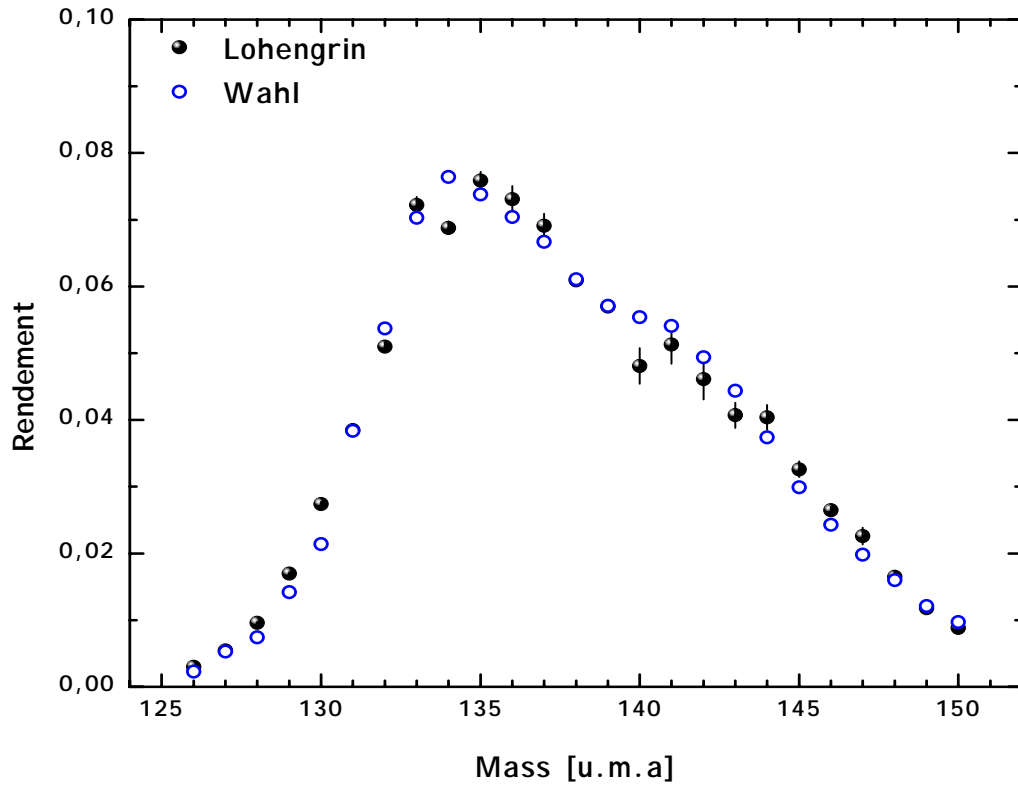


FIG. 6.16 – Rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ mesurés sur le Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p .

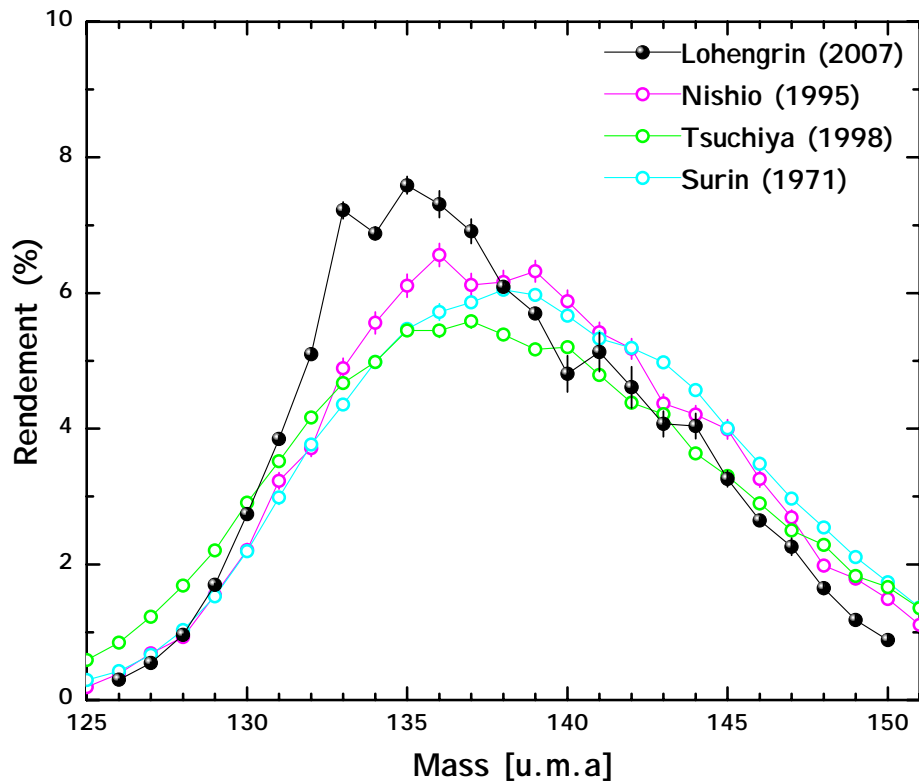


FIG. 6.17 – Comparaison des mesures de rendements du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ post-émission neutronique sur le Lohengrin avec des mesures pre-émission neutronique.

Etude des rendements en fonction des énergies cinétiques

Les figures 6.18 montrent les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ tracés selon les énergies cinétiques des produits de fission : 51 MeV, 58 MeV, 64 MeV, 74 MeV, 83 MeV et 90 MeV. Ces figures mettent en évidence la décroissance de l'énergie cinétique en fonction des masses : plus les énergies cinétiques sont faibles et plus les rendements des masses lourdes sont importants, et inversement. Les figures en haut à gauche et en bas à droite représentent particulièrement cette tendance : seules les masses lourdes sont présentes à l'énergie 62 MeV alors que ce sont les masses les plus légères qui peuplent la distribution à l'énergie plus élevée de 84 MeV.

Entre ces deux extrêmes la distribution en masse comporte des structures plus dessinées pour les énergies cinétiques les plus légères.

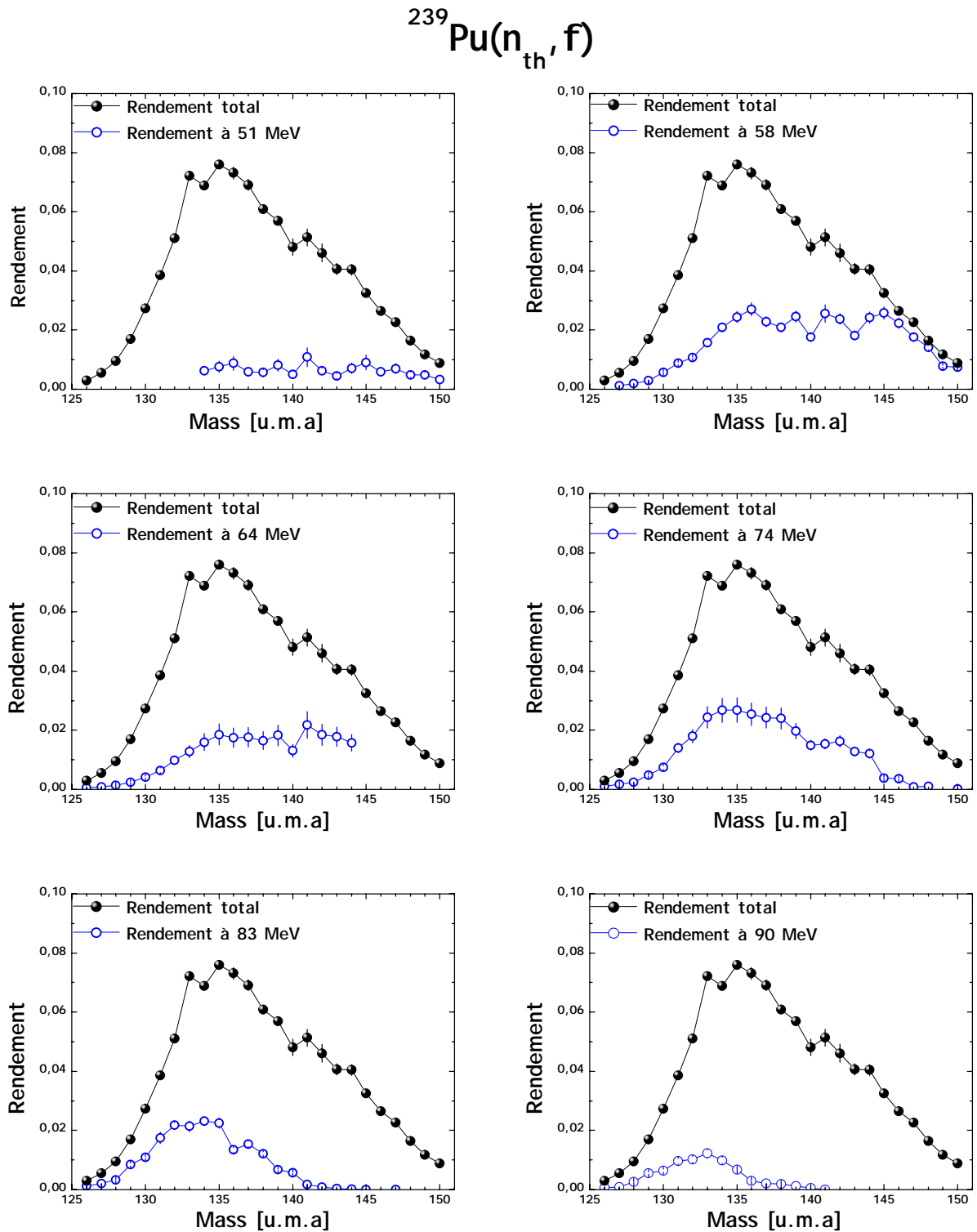


FIG. 6.18 – Rendements en masse tracés pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.

6.2.3 $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$

Le tableau 6.5 donne la valeur des rendements en masse du $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ représentés sur la figure 6.19.

Masse A	Rendement	Incertitude statistique (%)	Incertitude systématique (%)
130	1,95 E-02	0,4	1,2
131	3,14 E-02	0,4	1,2
132	4,69 E-02	0,4	1,2
133	7,37 E-02	0,4	2,2
134	8,41 E-02	0,4	4,1
135	6,78 E-02	0,4	1,2
136	7,36 E-02	0,4	2,2
137	6,95 E-02	0,4	2,2
138	5,64 E-02	0,4	4,2
139	5,40 E-02	0,4	2,2
140	5,78 E-02	0,4	6,1
141	4,71 E-02	0,4	1,2
142	4,16 E-02	0,4	3,1
143	4,03 E-02	0,4	3,2
144	3,84 E-02	0,4	2,2
145	3,31 E-02	0,4	3,2
146	2,40 E-02	0,4	3,2
147	2,18 E-02	0,4	5,1
148	1,59 E-02	0,4	7,2
149	1,88 E-02	0,4	7,2
150	1,17 E-02	0,4	4,2
151	9,25 E-03	0,4	4,1

TAB. 6.5 – Rendement en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$.

Comparaison de ces résultats avec différentes bibliothèques de données nucléaires.

La comparaison avec les différentes bibliothèques de données nucléaires et les mesures de Lohengrin sont données aux figures 6.20, 6.21, et 6.22.

Si les rendements en masse sont relativement bien connus pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$, et les bibliothèques en relatif bon accord entre elles, il n'en est pas de même pour les rendements du $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$, où, pour des incertitudes toujours très importantes, les données de la littérature sont moins convenables. Les figures 6.20, 6.21 et 6.22 mettent en évidence d'importantes fluctuations des rendements en masse mesurés sur le Lohengrin non rapportées, que ce soit dans *JEFF3.1*, *ENDFB-VI* ou encore *JENDL-3.3*.

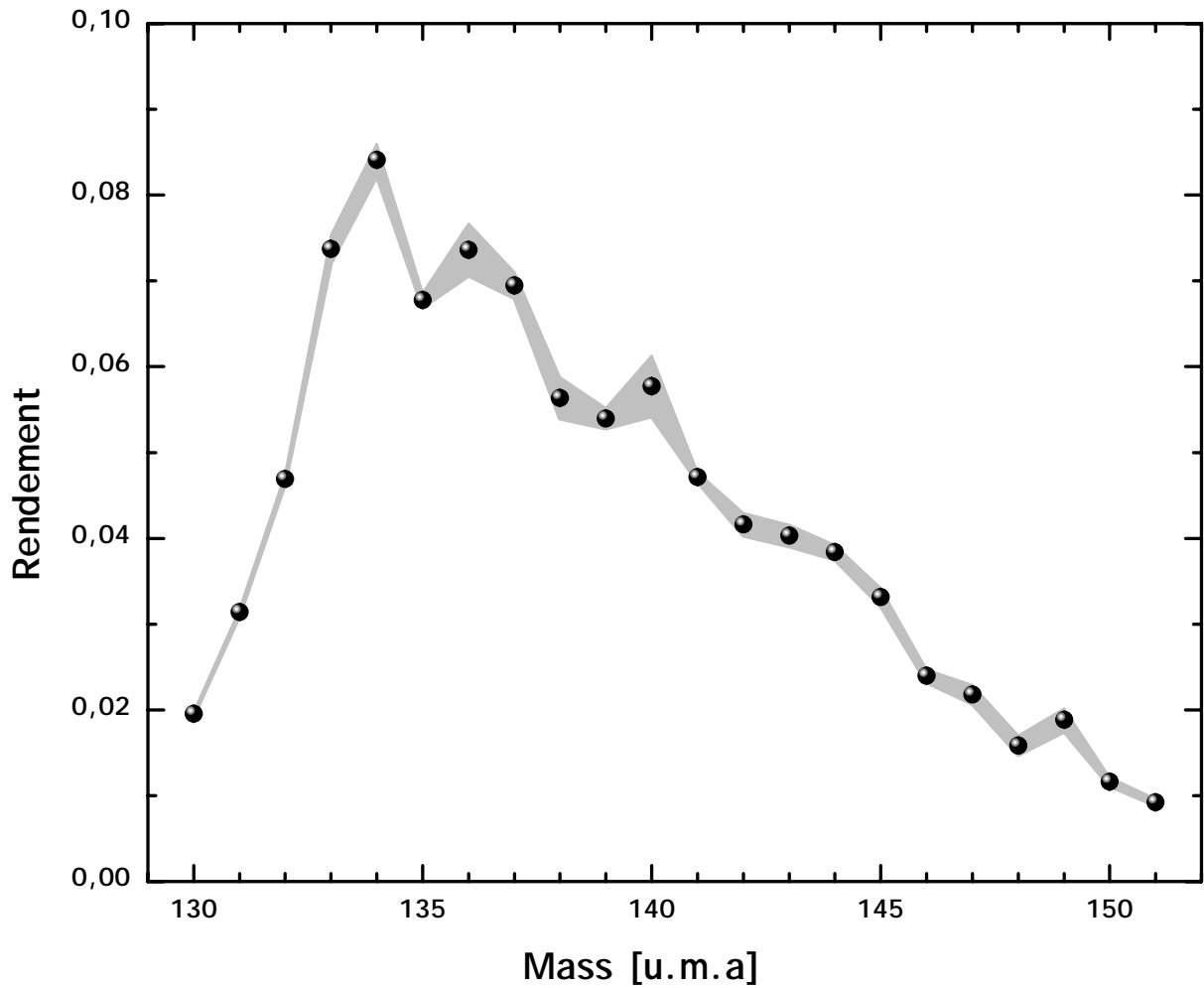


FIG. 6.19 – Rendement en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$. Les incertitudes statistiques sont représentées par des barres verticales sur chaque point, alors que les valeurs des incertitudes systématiques sont données par la courbe hachurée.

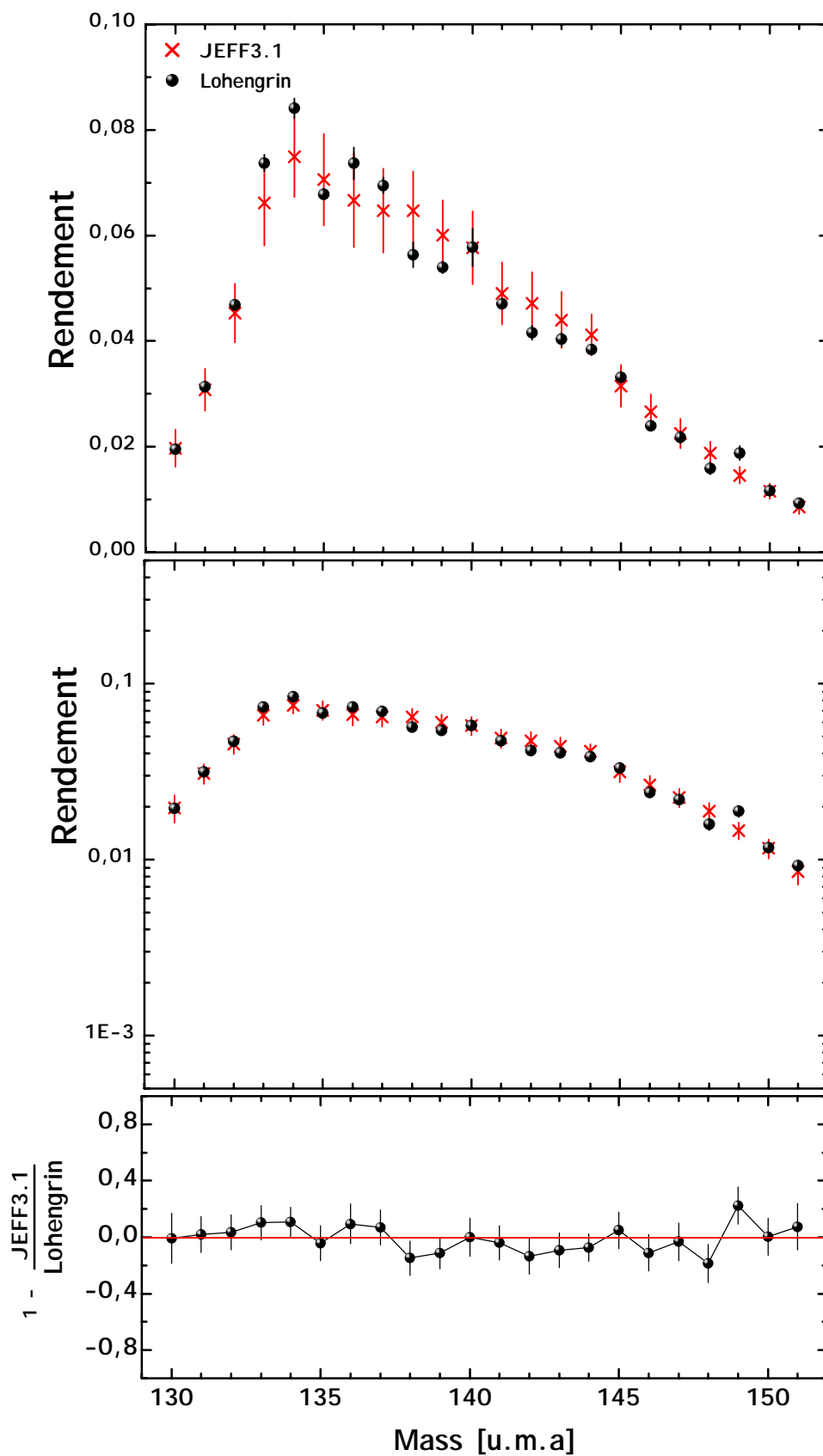


FIG. 6.20 – Comparaison entre les rendements en masse de $l^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JEFF3.1*.

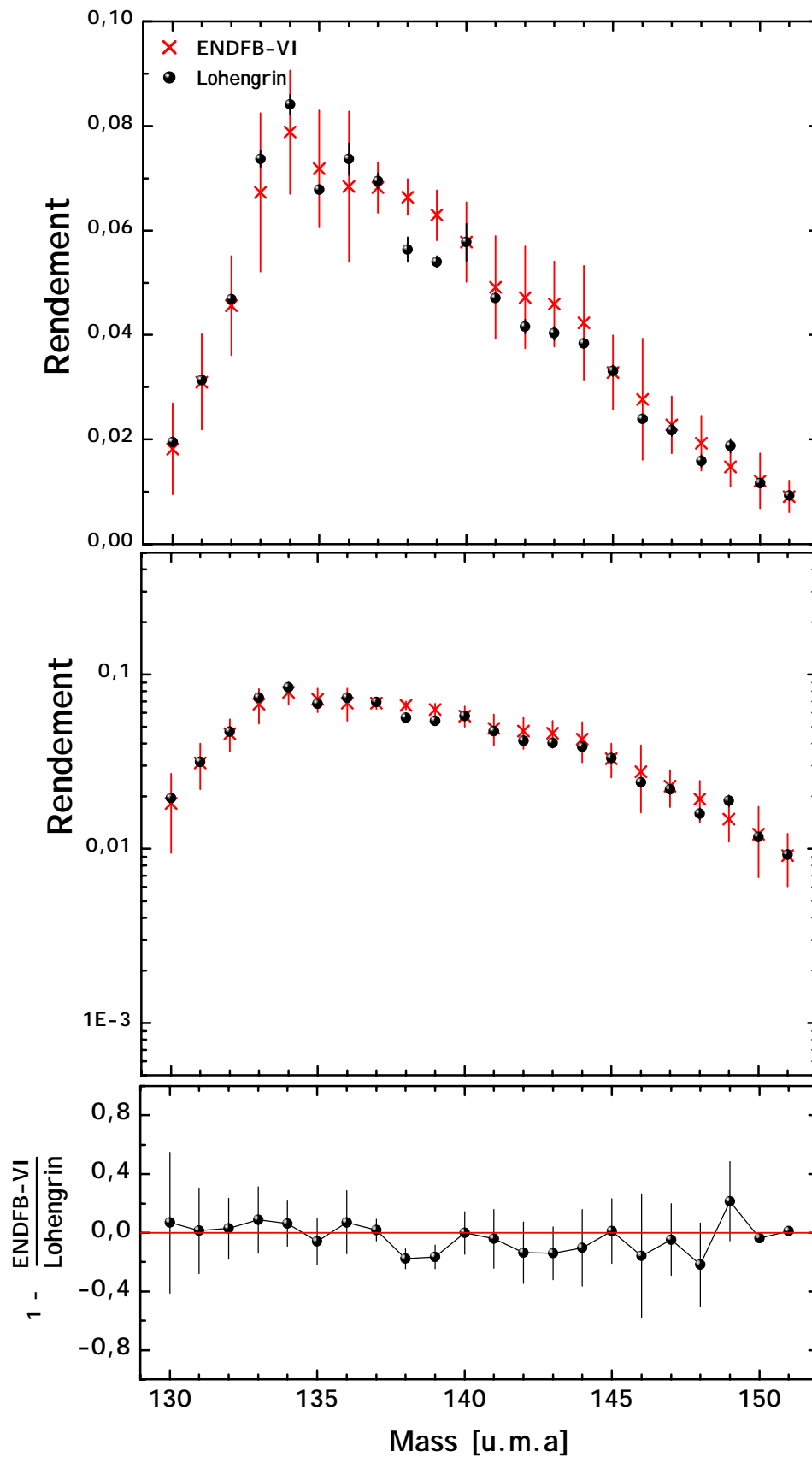


FIG. 6.21 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *ENDFB-VI*.

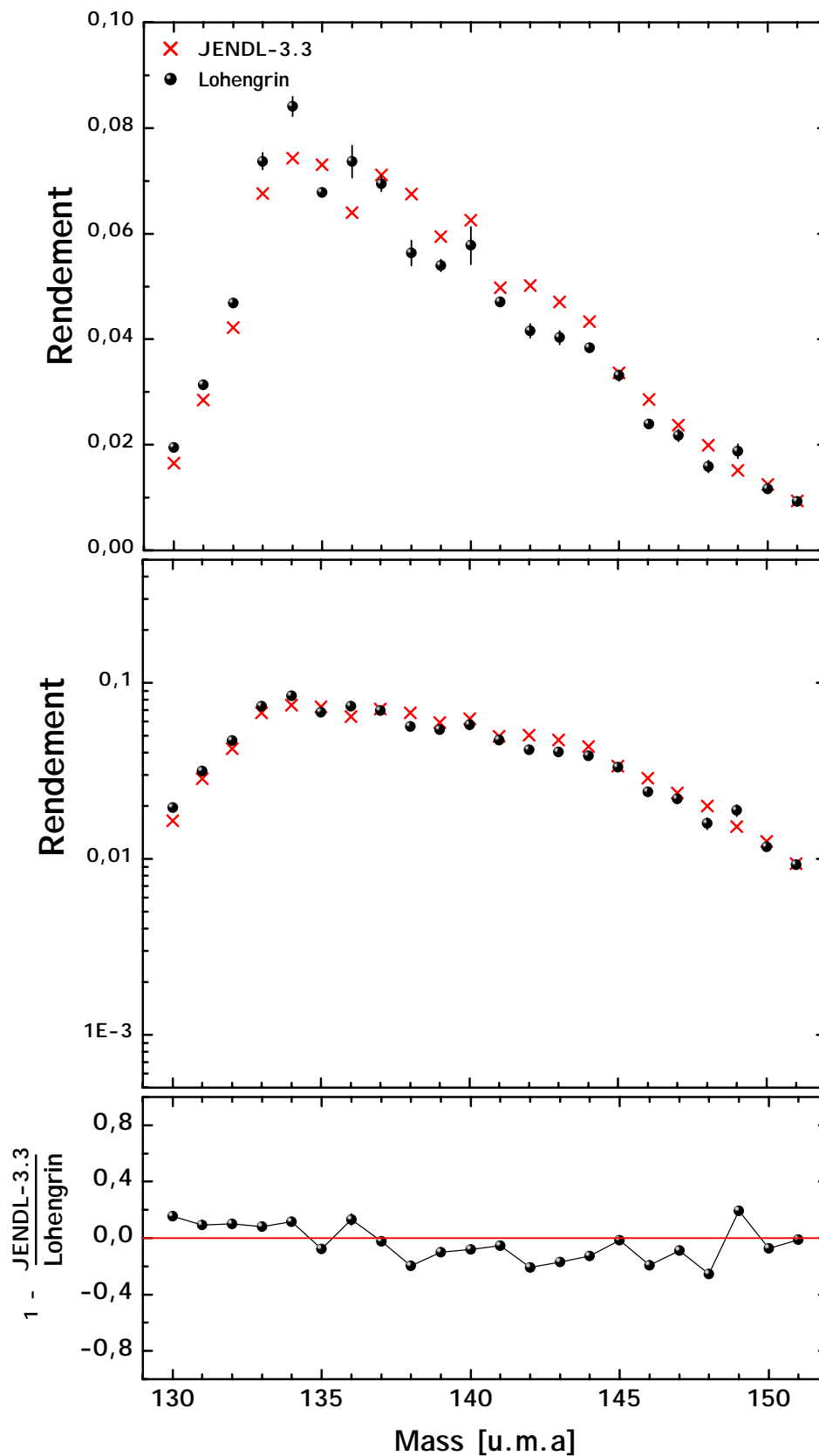


FIG. 6.22 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JENDL-3.3*.

Comparaison avec des mesures avant émission des neutrons prompts

Une comparaison avec différentes mesures des rendements de fission du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ avant émission de neutrons prompts avec la mesure sur le spectromètre Lohengrin est donnée figure 6.23.

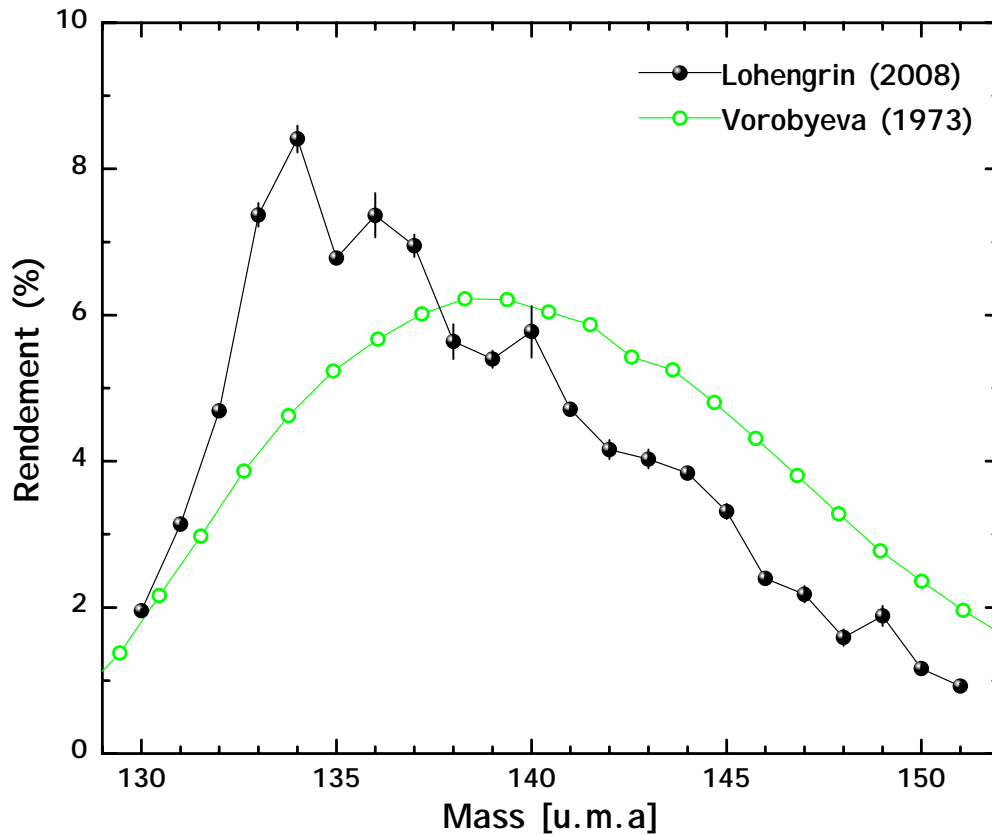


FIG. 6.23 – Comparaison des mesures de rendements en masse mesurés sur le spectromètre Lohengrin (post-émission neutronique) avec une mesure sur le Van de Graff d’Obninsk avec des détecteurs silicium (pre-émission neutronique).

Étude des rendements en fonction des énergies cinétiques

Les figures 6.18 montrent les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ tracés selon les énergies cinétiques des produits de fission : 62 MeV, 68 MeV, 71 MeV, 74 MeV, 78 MeV et 84 MeV. Ces figures mettent en évidence la décroissance de l'énergie cinétique en fonction des masses : plus les énergies cinétiques sont faibles et plus les rendements des masses lourdes sont importants, et inversement. Les figures en haut à gauche et en bas à droite représentent particulièrement cette tendance : seules les masses lourdes sont présentes à l'énergie 62 MeV alors que ce sont les masses les plus légères qui peuplent la distribution à l'énergie plus élevée de 84 MeV.

Entre ces deux extrêmes la distribution en masse comporte des structures plus dessinées pour les énergies cinétiques les plus légères.

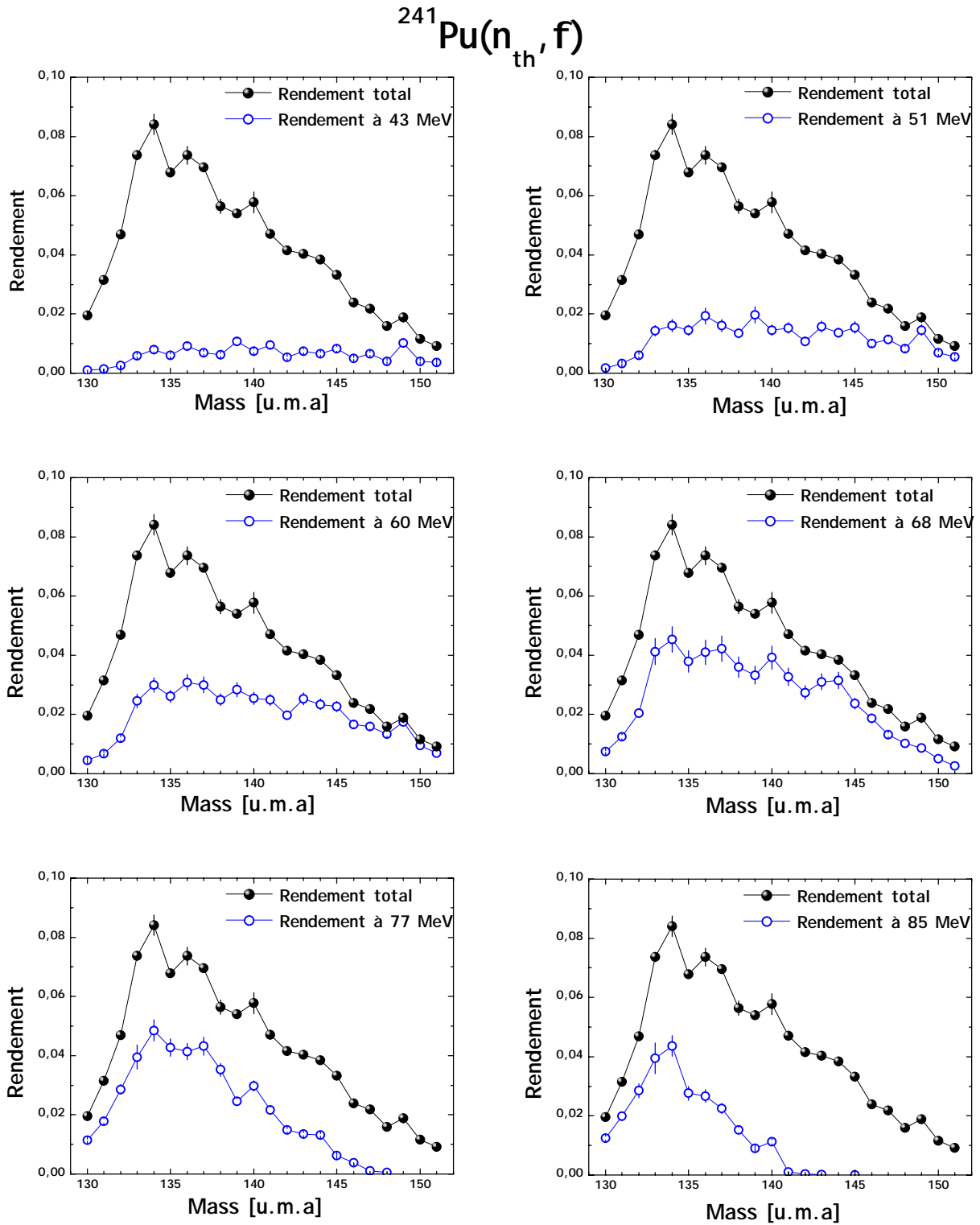


FIG. 6.24 – Rendements en masse tracés pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.

6.2.4 Conclusion

Chapitre 7

Rendements isotopiques

7.1 Désintégrations β^- des produits de fission

7.1.1 Introduction

Parce que les actinides sont des noyaux lourds, leur configuration nucléaire stable possède un rapport Z/N plus faible que celui des noyaux légers. La charte des noyaux (figure 7.1) répertorie tous les noyaux en fonction de leur charge nucléaire (Z) et de leur nombre de neutrons (N). Sur cette représentation les noyaux stables correspondent aux points en noir (vallée de la stabilité) alors que les atomes qui se situent en dessous ($Z/N < (Z/N)_{STABLE}$) sont excédentaires en neutrons et que ceux situés au-dessus ($Z/N > (Z/N)_{STABLE}$) le sont en protons.

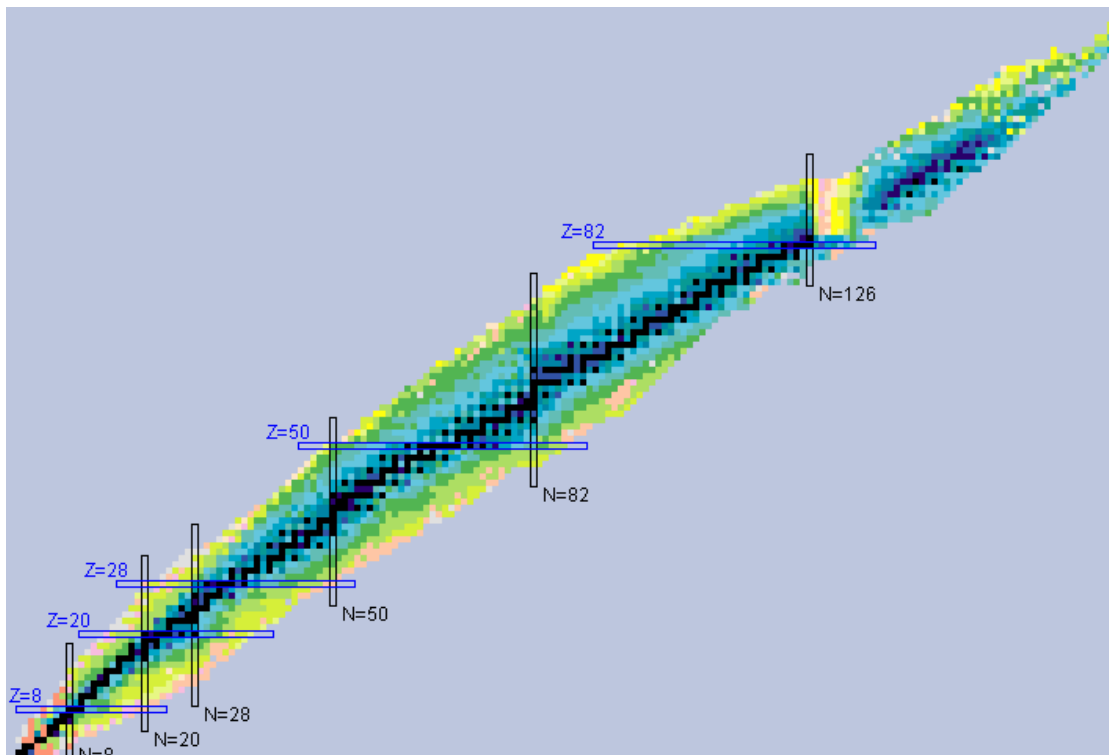


FIG. 7.1 – Charte des noyaux [www.nndc.bnl.gov].

La fission peuple donc majoritairement la région des noyaux excédentaires en neutrons. Afin de se retrouver dans une configuration stable, les produits de fission rejoignent la

vallée de la stabilité par désintégrations β^- (équation 7.1).

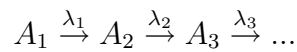


7.1.2 Equations de Bateman

Puisque le spectromètre de masse Lohengrin ne permet une séparation isotopique des produits de fission, les rendements mesurés correspondent aux rendement cumulés de chaque noyau considéré.

Les lois de désintégrations radioactives permettent d'extraire de ces mesures les rendements indépendants pour chaque isotope. Ces équations (équations de Bateman) permettent de calculer pour un échantillon donné à un instant t le nombre N_i de noyaux de l'isotope radioactif A_i .

Soit la chaîne de désintégration suivante :



Le noyau père A_1 décroît dans le noyau fils A_2 selon le temps de demie-vie $t_{1/2}$, qui lui même décroît dans le noyau petit-fils A_3 selon le temps de demie-vie $t_{2/2}$, ..., avec $t_{i/2}$ le temps au bout duquel le nombre de noyaux de l'élément radioactif N_i est réduit de moitié, et tel que $t_{i/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda_i}$.

Soit un échantillon contenant à l'instant t_0 N_{10} atomes de A_1 , N_{20} atomes de A_2 , N_{30} atomes de A_3 , ... avec A_1, A_2, A_3, \dots des éléments radioactifs. Alors, à l'instant t , le nombre de chaque élément $N_i(t)$ est donné par la résolution des équations de Bateman suivantes :

$$\begin{cases} \frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_2(t)}{dt} = -\lambda_2 \cdot N_2(t) + \lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_3(t)}{dt} = -\lambda_3 \cdot N_3(t) + \lambda_2 \cdot N_2(t) \\ \dots \end{cases} \quad (7.2)$$

Pour optimiser la statistique des spectres en fonction des temps de mesure, l'acquisition des γ se fait en continu sans couper le faisceau des produits de fission qui arrivent du spectromètre. Pour que le système d'équations 7.2 corresponde aux conditions expérimentales des mesures, il faut prendre en compte ce flux. Noté Y_i , il représente directement le rendement indépendant des différents isotopes (équations 7.3).

$$\begin{cases} \frac{dN_1(t)}{dt} = Y_1 - \lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_2(t)}{dt} = Y_2 - \lambda_2 \cdot N_2(t) + \lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_3(t)}{dt} = Y_3 - \lambda_3 \cdot N_3(t) + \lambda_2 \cdot N_2(t) \\ \dots \end{cases} \quad (7.3)$$

Le nombre N_i des noyaux A_i au temps t_0 est nul car le "start" de chaque mesure correspond au temps d'ouverture du faisceau : $N_{i0} = 0$.

Les constantes λ_i sont données par les bibliothèques nucléaires : $\lambda_i = \frac{\ln(2)}{t_{i1/2}}$.

L'intégrale $I_{\gamma exp}$ des pics γ au temps t_f est égale à :

$$I_{\gamma exp} = \int_{t_0}^{t_f} \varepsilon_{E_{\gamma_i}} \cdot BR_{E_{\gamma_i}} \cdot \lambda_i \cdot N_i(t) dt$$

C'est la résolution de cette équation couplée au système ?? qui permet de déterminer les rendements isotopiques.

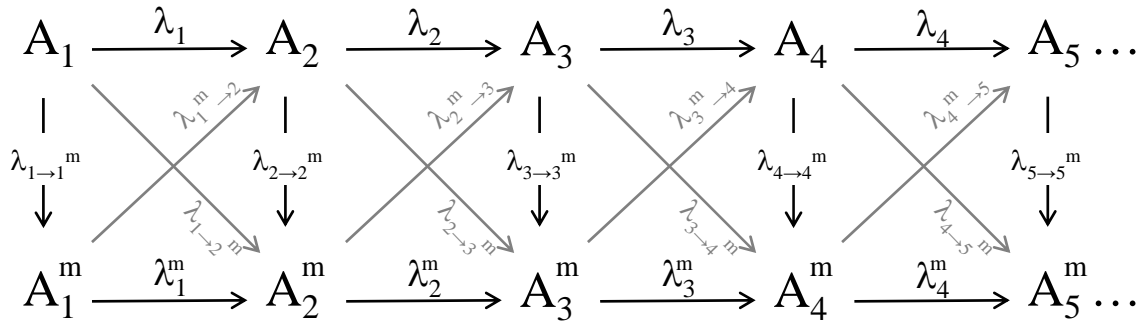
La solution des rendements pour les deux premiers noyaux de la chaîne de désintégration est donnée à titre d'exemple aux équations 7.4 et 7.5 (résolution analytique).

$$Y_1 = \frac{I_{\gamma exp1} \cdot (t_f)}{\varepsilon_{E_{\gamma_1}} \cdot BR_{E_{\gamma_1}}} \left[t_f + \frac{e^{-\lambda_1 \cdot t_f} - 1}{\lambda_1} \right]^{-1} \left[t_f + \frac{e^{-\lambda_1 \cdot t_f} - 1}{\lambda_1} \right]^{-1} \quad (7.4)$$

$$Y_2 = \left[\frac{N_{2mes.}(t_f)}{\varepsilon_{E_{\gamma_1}} \cdot BR_{E_{\gamma_1}}} \cdot Y_1 \left(\frac{\lambda_1(1 - e^{-\lambda_2 \cdot t_f})}{\lambda_2(\lambda_2 - \lambda_1)} - \frac{\lambda_2(1 - e^{-\lambda_1 \cdot t_f})}{\lambda_1(\lambda_2 - \lambda_1)} + t_f \right) \right] \left[t_f + \frac{e^{-\lambda_2 \cdot t_f} - 1}{\lambda_2} \right]^{-1} \quad (7.5)$$

Parce que très vite les solutions gagnent en complexité, les résultats donnés dans la suite de ce chapitre ont été calculés numériquement.

De plus, le cas général à considérer est le suivant :



La résolution numérique des équations différentielles a été faite par la méthode de Runge-Kutta à l'ordre 4. Une méthode de recherche par dichotomie a été utilisée pour déterminer les rendements Y_i .

Ces calculs numériques ont pu être comparés directement avec les solutions analytiques pour les trois premiers noyaux d'une chaîne sans isomères. Ces comparaisons montrent que les incertitudes générées par la méthode numérique sont négligeables.

7.2 Normalisation et calculs d'incertitudes

7.2.1 Normalisation

Comme la charge nucléaire 57 est connue avec une très bonne précision dans la littérature, la normalisation de tous les rendements s'est appuyée sur ces valeurs.

7.2.2 Incertitudes

7.2.2.1 Incertitudes statistiques et incertitudes dues à l'ajustement

Comme les erreurs statistiques et les erreurs engendrées par les fits sont données par le programme TV regroupées, il est impossible de les séparer.

7.2.2.2 Incertitudes systématiques analogues à celles des rendements en masse

À ces erreurs viennent s'ajouter les incertitudes systématiques du spectromètre, des variations de la cible et du réacteur, ainsi que de la méthode de calcul du rendement utilisée, de la même manière que dans le calcul des incertitudes pour les mesures de rendements en masse.

7.2.2.3 Incertitudes liées aux bases de données

Il faut encore rajouter à ces dernières les erreurs liées aux valeurs des constantes données par les bibliothèques de données, c'est à dire sur les λ_i et les BR_i .

7.2.2.4 Incertitudes systématiques des détecteurs

Enfin, il faut prendre en compte les incertitudes conséquentes au fit de la courbe en efficacité des détecteurs germanium.

7.2.2.5 Incertitudes totales

Les incertitudes totales sont données par la somme de toutes les incertitudes décrites précédemment. Ces incertitudes ne sont pas de la même nature, il n'y a pas de raison de les sommer quadratiquement.

7.3 Rendements isotopiques, résultats

7.3.1 $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

Les rendements isotopiques mesurés en juin et octobre 2008 sur le spectromètre sont reportés tableau 7.1 et tracés figure 7.2.

Masse A	Z	Rendement	Incertitude statistique (%)	Incertitude systématique (%)
93	36	2,25 E-03	1,0	17,1
93	37	1,28 E-02	0,9	9,1
93	38	1,96 E-02	0,9	8,1
94	37	3,96 E-03	0,9	8,1
94	38	4,20 E-03	0,9	9,1
95	37	2,33 E-03	0,9	10,1
95	38	2,88 E-02	0,9	8,1
95	39	1,20 E-02	0,9	8,1
96	38	1,85 E-02	0,9	4,4
96	39	1,65 E-02	0,9	4,2
98	38	2,06 E-03	4,0	6,3
98	39	2,40 E-02	0,9	19,1

Masse A	Z	Rendement	Incertitude statistique (%)	Incertitude systématique (%)
99	38	7,91 E-03	0,9	4,4
99	39	4,20 E-03	0,9	61,0
99	40	4,36 E-02	0,9	12,7
99	41	7,00 E-03	0,9	42,0
133	51	1,21 E-02	0,9	17,4
133	52	4,71 E-02	0,8	8,4
134	51	5,63 E-023	0,5	2,6
134	52	3,53 E-02	1,0	10,3
134	53	2,63 E-02	1,3	9,1
136	52	5,19 E-03	3,0	52,2
136	53	3,31 E-02	1,3	11,1
137	53	2,26 E-02	0,8	12,1
137	54	3,60 E-02	1,2	7,1
138	53	4,78 E-03	1,8	52,1
138	54	4,62 E-02	0,4	10,1
138	55	1,40 E-02	2,0	11,1
139	53	1,34 E-03	0,3	5,3
139	54	3,07 E-02	1,5	11,1
139	55	2,23 E-02	3,0	10,1
140	53	6,88 E-04	1,3	131,1
140	54	1,49 E-02	0,8	10,1
140	55	2,89 E-02	1,0	20,1
141	55	3,09 E-02	0,8	10,1
141	56	1,56 E-02	1,0	12,1
142	55	9,39 E-02	0,2	2,1
142	56	3,53 E-02	1,0	9,1
142	57	4,00 E-03	0,8	13,1
143	56	2,81 E-02	0,8	13,1
143	57	1,03 E-02	0,8	13,1
144	56	2,64 E-02	2,3	8,1
144	57	1,21 E-02	2,3	752,1
145	56	8,12 E-03	1,3	16,1
145	57	1,77 E-02	0,8	14,1
145	58	4,33 E-03	1,1	14,1
146	56	5,04 E-03	1,2	8,1
146	57	1,02 E-02	0,9	43,2
146	58	7,99 E-03	1,7	7,1
147	57	6,46 E-03	1,0	10,1
147	58	1,63 E-02	1,2	11,0
148	57	1,88 E-03	1,1	197,3
148	58	9,26 E-03	1,7	13,1
151	59	4,13 E-03	0,6	9,1
151	60	2,85 E-03	1,2	9,1
152	59	2,75 E-04	1,6	12,1
152	60	5,26 E-03	1,5	20,2

TAB. 7.1 – Rendements isotopiques pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

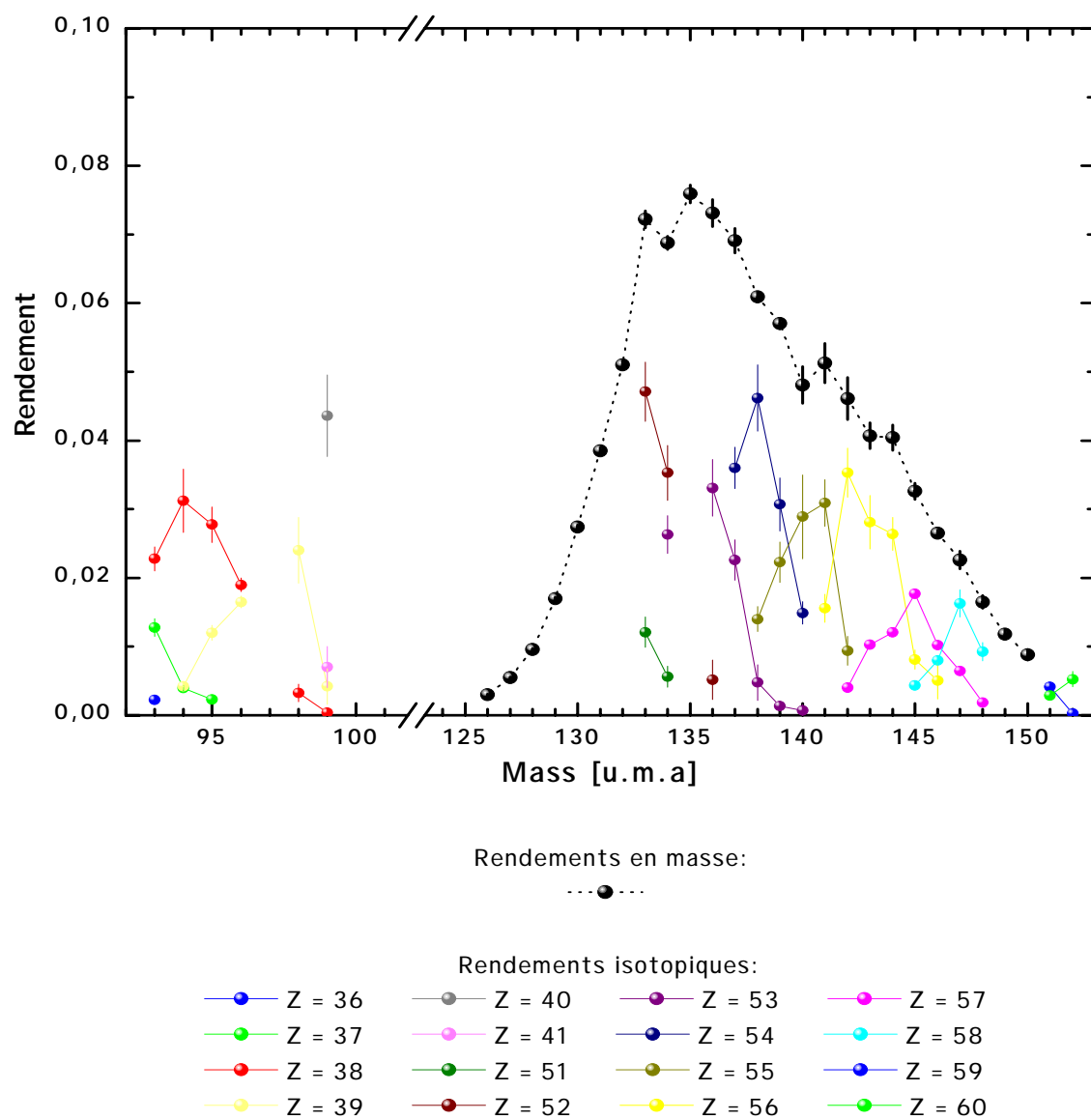


FIG. 7.2 – Rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Les isotopes mesurés sur le spectromètre un rendement de fission supérieur à 10^{-3} (hormis le noyau de Praséodyme, $Z=59$, pour la masse 152). Il est difficile dans de telles conditions expérimentales de déterminer des rendements inférieur à cette valeur, notamment à cause du rapport signal sur bruit.

L'objectif des mesures en coïncidences $\beta - \gamma$ est de diminuer ce rapport. Elles devraient ainsi permettre de déterminer des rendements beaucoup plus faibles.

Le temps de faisceau imparti pour la détermination des rendements isotopiques $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ ne permettait pas la mesure de tous les noyaux. Le choix des masses mesurées s'est fait selon plusieurs critères énumérés dans le tableau 7.3.

Masse	Problème dû :		
	$t_{1/2}$ trop long pour au moins un istotope	connaissance de données nucléaires	rendement trop faible
≤ 132		X	
135	X		
149	X	X	
150	X	X	
≥ 153			X

FIG. 7.3 – Tableau récapitulatif des raisons pour lesquelles les rendements isotopiques de certaines masses n'ont pas pu être mesurés.

Comparaison avec d'autres données

Les rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le Lohengrin (points) sont comparés avec d'autres données aux figures 7.4, 7.5 et 7.6 :

- bibliothèque JEFF3.1 : croix,
- données évaluées de Wahl [Wah88] : cercles,
- mesures auprès du réacteur IBR-30 avec des détecteurs Germanium-Lithium en 1994 [G⁺94] : triangles renversés,
- mesures par temps de vol en 1991 [B⁺91b] : étoiles,
- mesures sur un spectrographe de masse en 1975 [B⁺75] : losanges,
- mesures par radio-chimie en 1975 [F⁺75] : triangles.

On peut constater que les tendances générales sont les mêmes pour toutes les charges ioniques. Comme toujours les mesures sur le Lohengrin comportent plus de structures que les autres mesures ou évaluations. La charge nucléaire 59 de la masse 152 semble être sous-estimée en comparaison aux autres données mais dans l'ensemble tous les résultats sont en bon accord les uns avec les autres.

Les mesures sur le spectromètre ont par ailleurs permis de réduire les incertitudes pour la plupart des rendements isotopiques. Seule la charge nucléaire $Z = 57$ garde des incertitudes très élevées à cause des erreurs sur les rapports d'embranchement γ donnés par les bibliothèques.

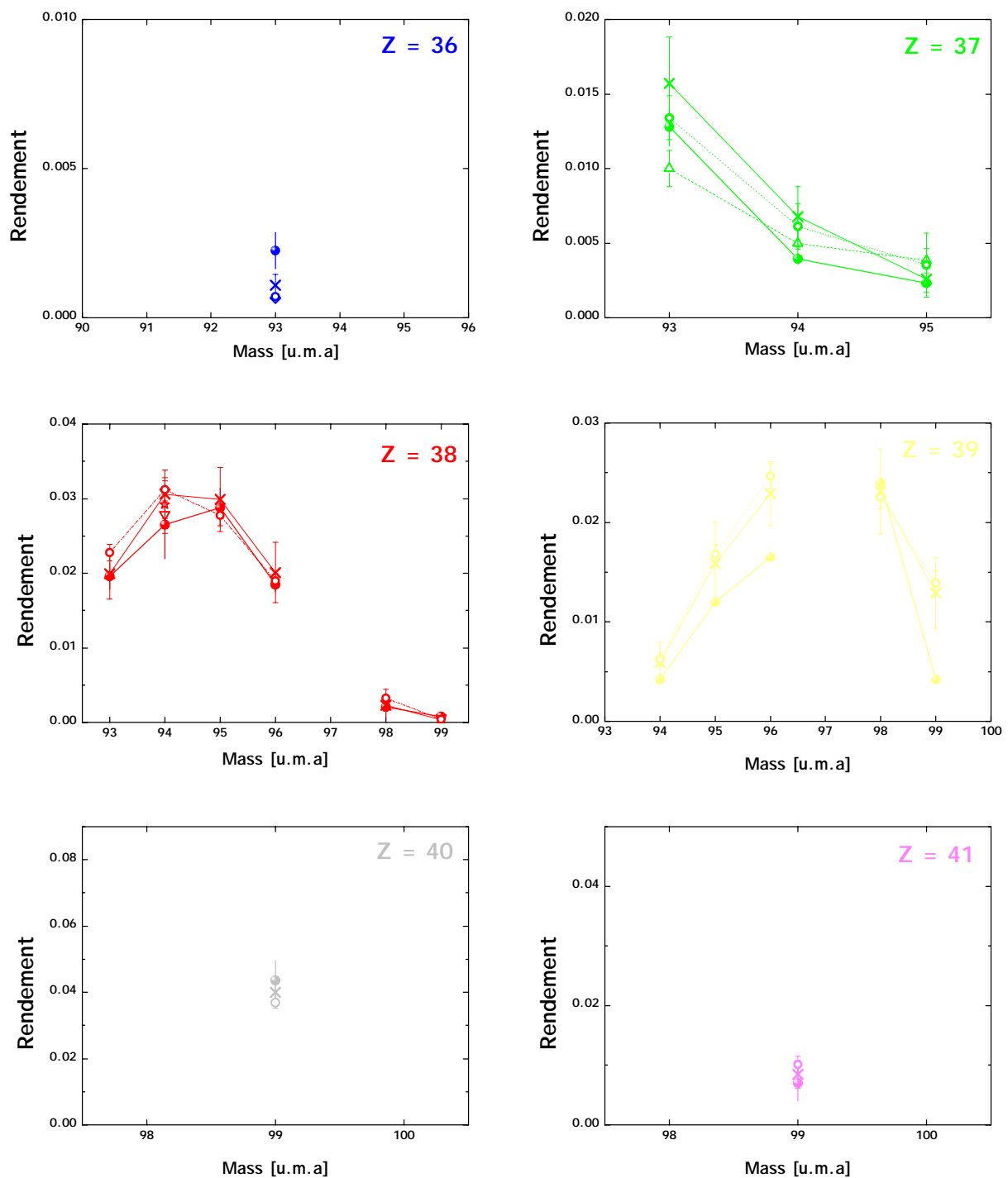


FIG. 7.4 – Comparaison des rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) avec les données de JEFF3.1 (croix), les rendements évalués de Wahl (cercle). Ces rendements sont aussi comparés pour certaines charges nucléaires avec différentes mesures : Bogdzel (étoiles), Balestrini (losanges), Flynn (triangles) et Gundorin (triangles renversés).

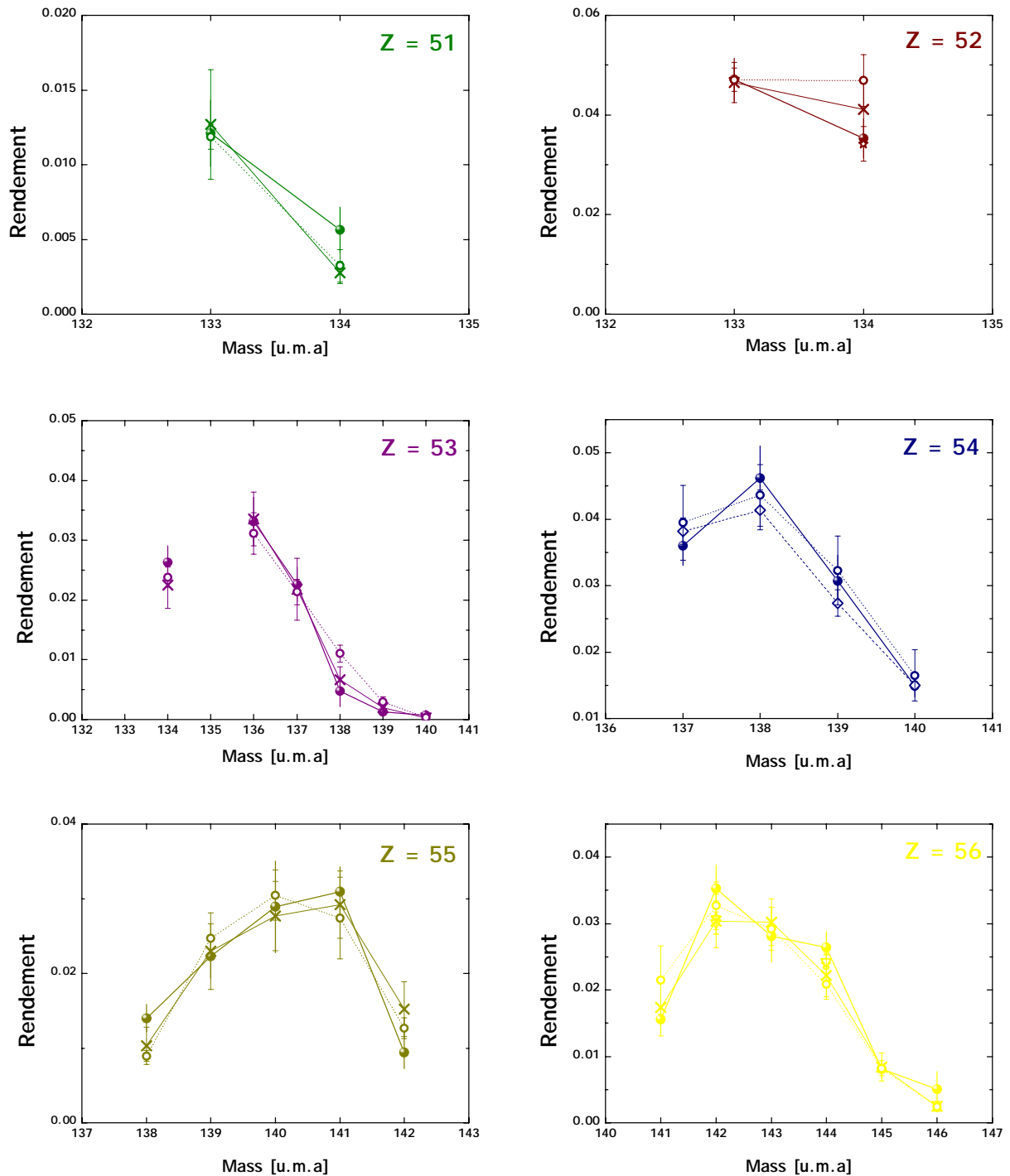


FIG. 7.5 – Comparaison des rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) avec les données de JEFF3.1 (croix), les rendements évalués de Wahl (cercle). Ces rendements sont aussi comparés pour certaines charges nucléaires avec différentes mesures : Bogdzel (étoiles), Balestrini (losanges), Flynn (triangles) et Gundorin (triangles renversés).

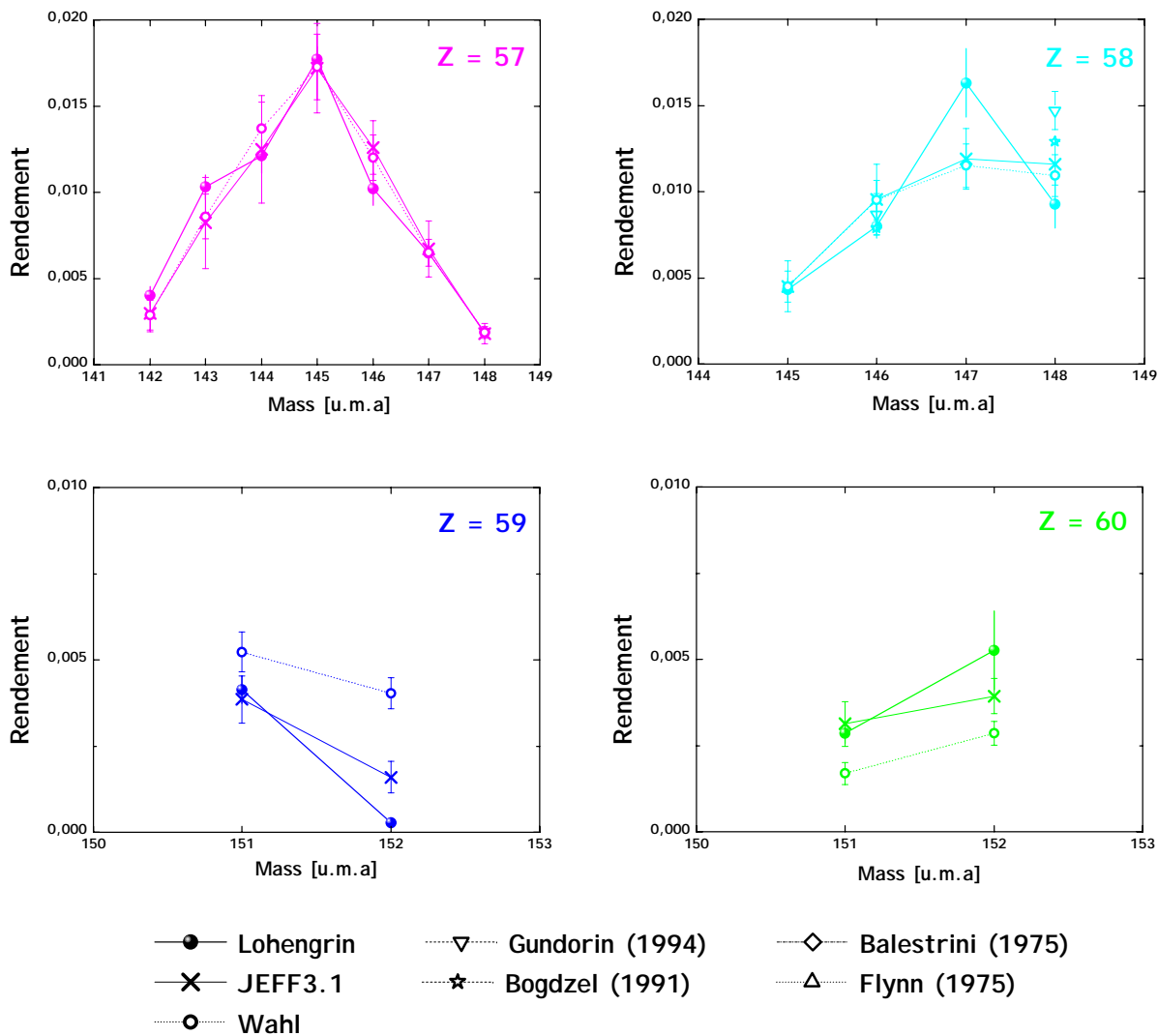


FIG. 7.6 – Comparaison des rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) avec les données de JEFF3.1 (croix), les rendements évalués de Wahl (cercle). Ces rendements sont aussi comparés pour certaines charges nucléaires avec différentes mesures : Bogdzel (étoiles), Balestrini (losanges), Flynn (triangles) et Gundorin (triangles renversés).

7.3.2 Masses et charges moyennes pour certains Z et A respectivement

7.3.2.1 Charges moyennes en fonction des A

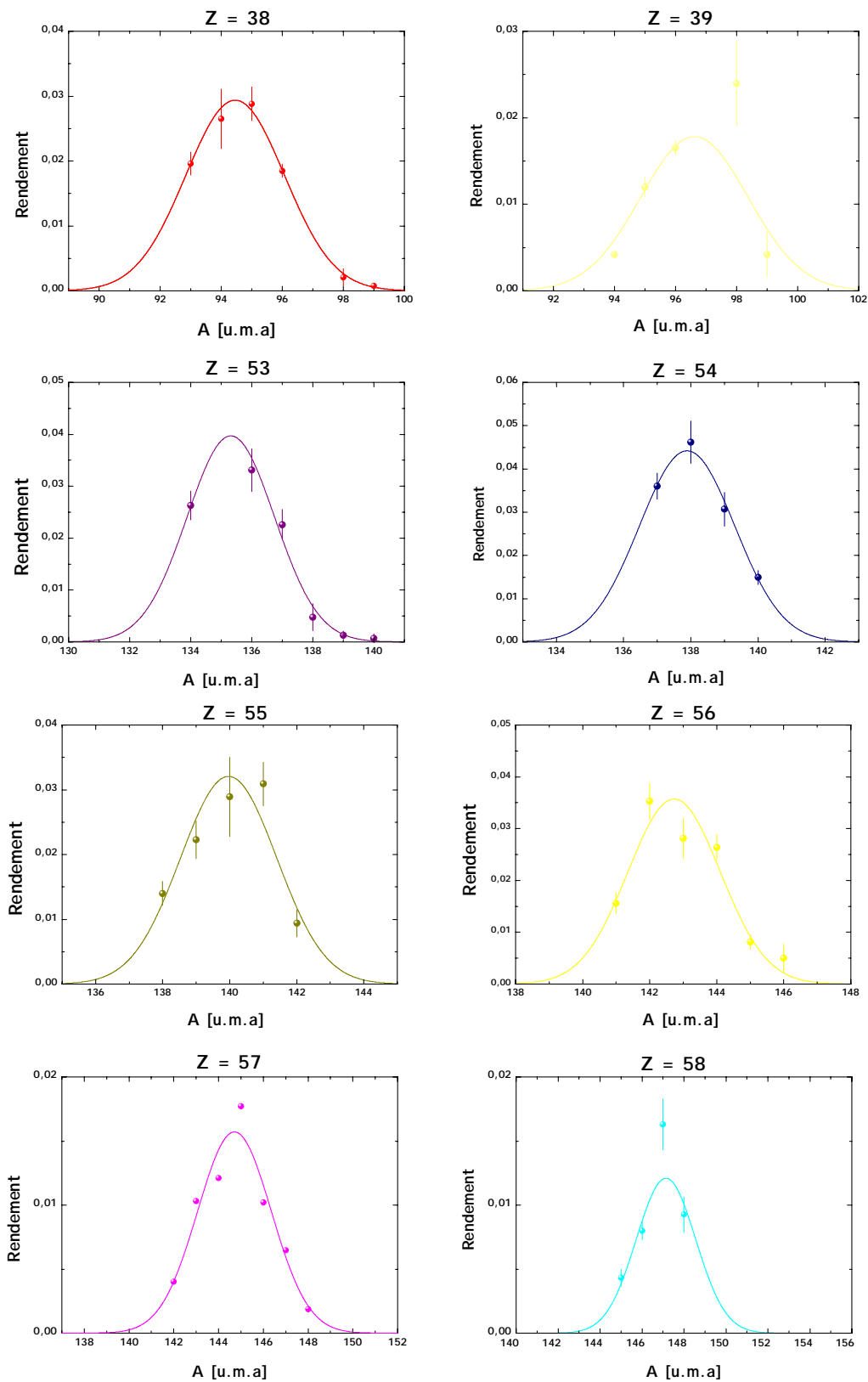


FIG. 7.7 – Masses moyennes en fonction des charges nucléaires.

7.3.2.2 Masses moyennes en fonction des Z

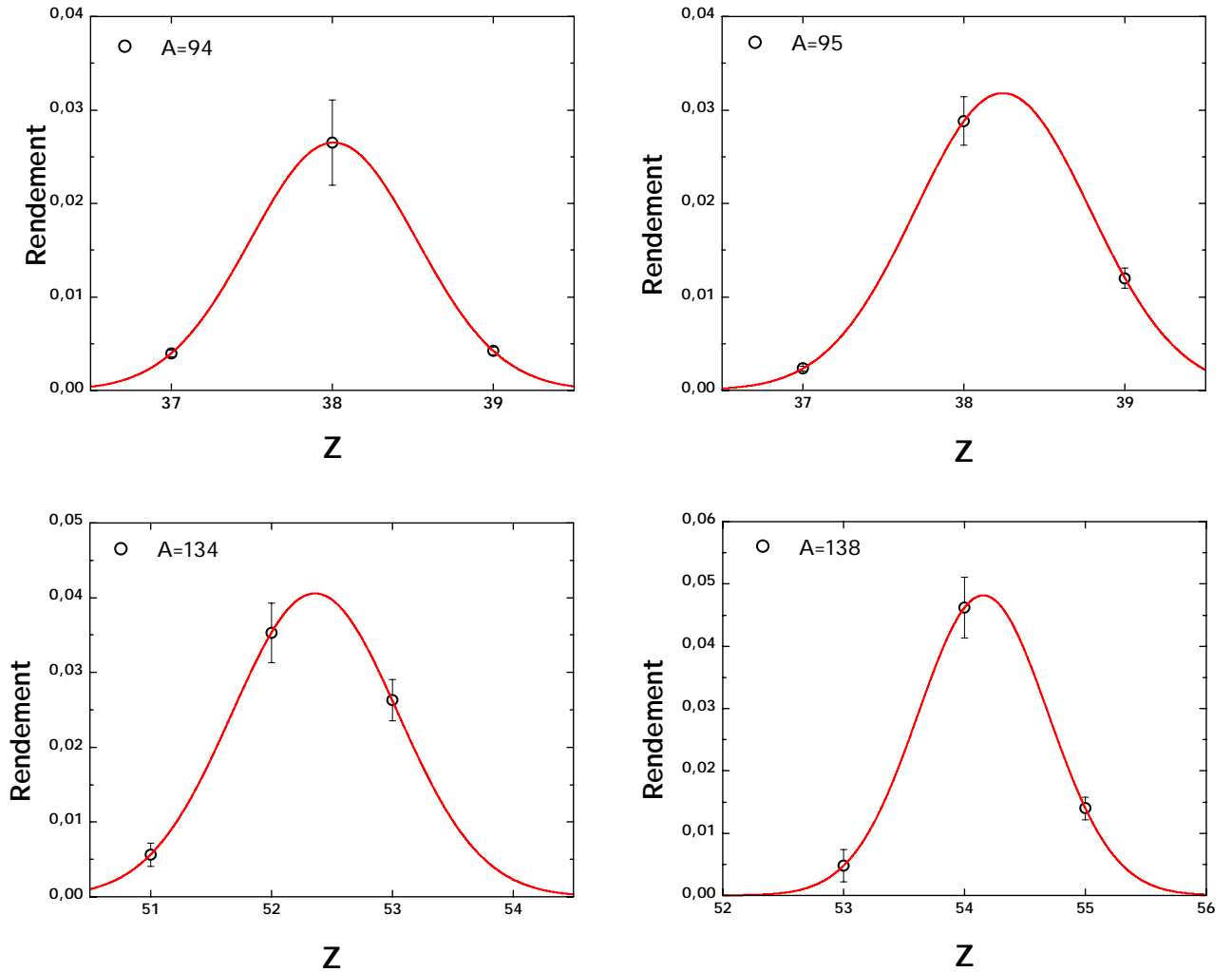


FIG. 7.8 – Charges nucléaires moyennes en fonction des masses.

Les masses moyennes en fonction des charges nucléaires sont données figures 7.8 et 7.9 et tableau 7.2.

La charge nucléaire Z_{UCD} est définie comme :

$$Z_{UCD}(A) = \frac{Z_F}{A_F}(A + \nu(A))$$

Elle représente les fragments de fission qui conservent un rapport Z/A identique à celui du noyau fissionnant. La fission peuple plus généralement les noyaux légers qui ont une charge nucléaire en moyenne supérieure de 0,5 proton au Z_{UCD} alors que les fragmentation lourds ont tendance à avoir un Z inférieur de 0,5 au Z_{UCD} . Pour étudier ces variations on définit l'écart à la densité initiale ΔZ telle que :

$$\Delta Z = Z_{UCD}(A) - Z_p(A)$$

Les ΔZ en fonction des masses du fragment primaire et des charges nucléaires sont donnés figures 7.10.

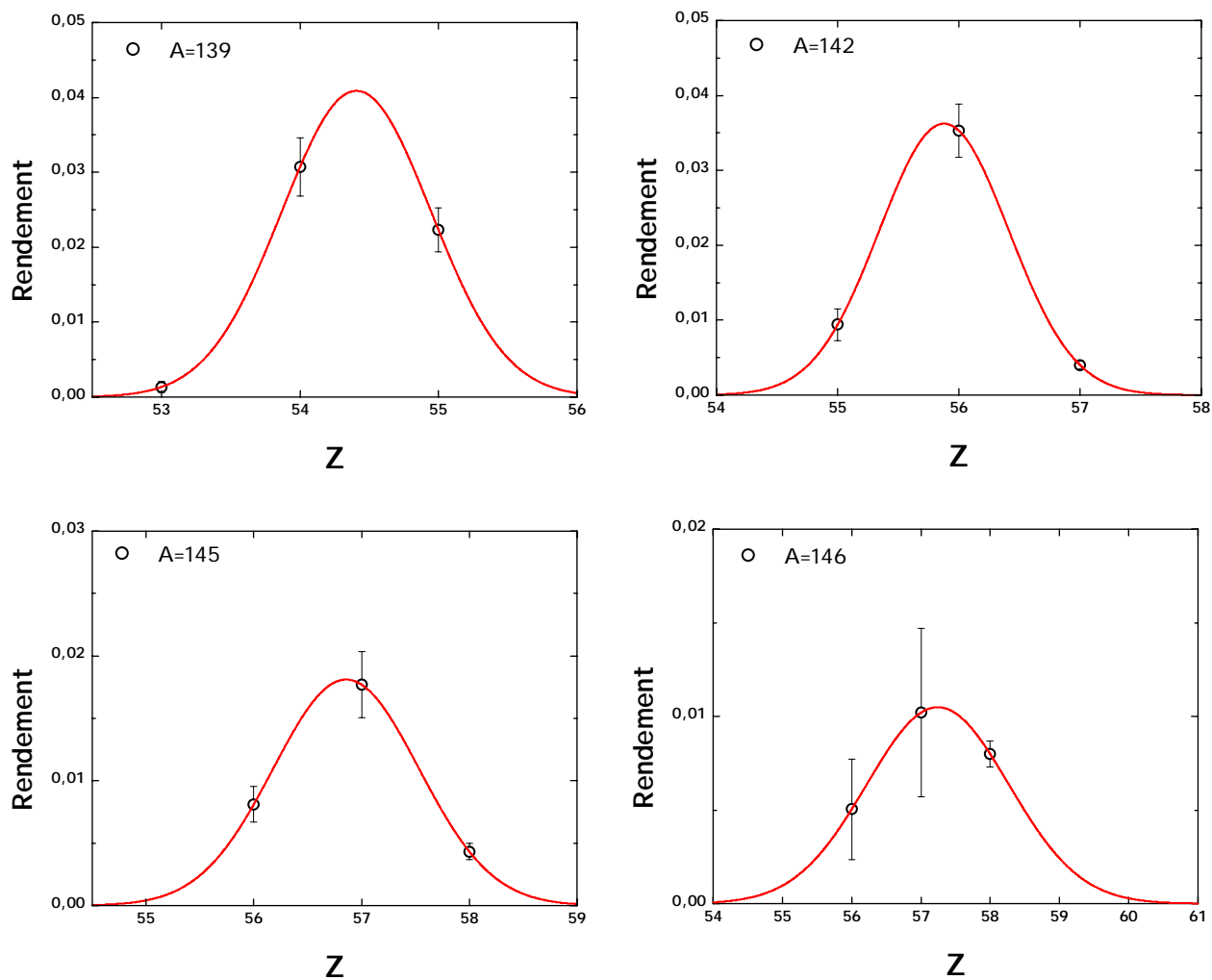
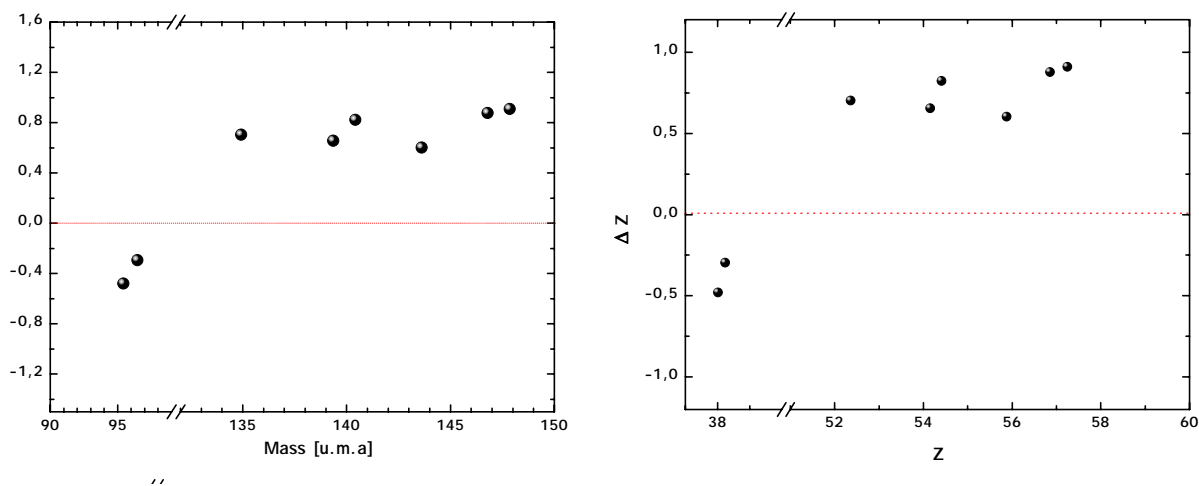


FIG. 7.9 – Charges nucléaires moyennes en fonction des masses.

FIG. 7.10 – ΔZ en fonction des masses primaires (figure de gauche) et des charges nucléaires (figure de droite).

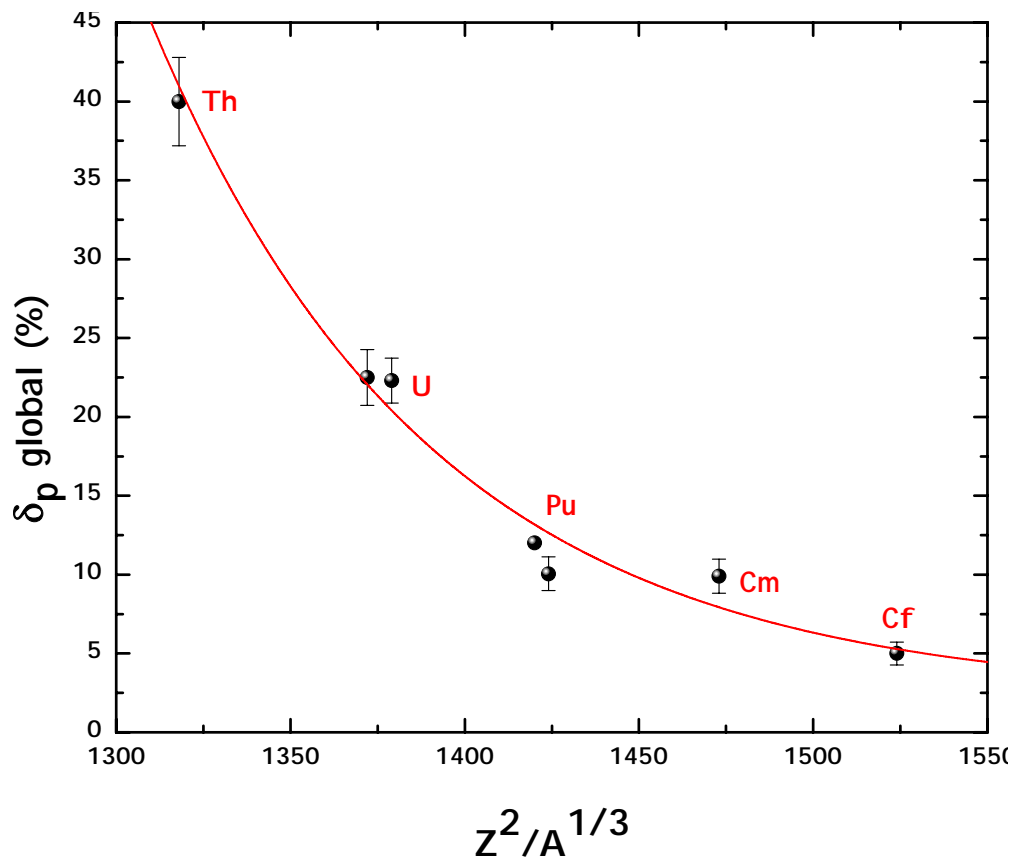
A	$\langle Z \rangle$	σ_Z
94	38,0	0,5
95	38,2	0,5
134	52,4	0,7
138	54,3	0,5
139	54,4	0,5
142	55,9	0,5
145	56,9	0,7
146	57,2	1

TAB. 7.2 – Masses moyennes et largeurs de distributions en fonction des charges nucléaires.

7.3.3 Effets de parité

Parcequ'au cours de la fission, les rendements des charges nucléaires paires sont favorisés par rapport aux rendements des charges nucléaires impaires, l'effet de parité globale de chaque système fissionnant est positif. La tendance générale de cette grandeur est tracée pour différents noyaux composés à la figure 7.11.

Elle montre que plus le noyau fissionnant est léger, plus l'effet de parité est important.


 FIG. 7.11 – Effet de parité global pour les protons en fonction du paramètre de Coulomb $Z^2/A^{1/3}$ de plusieurs systèmes fissionnants.

Cette grandeur est importante puisqu'elle est aujourd'hui l'unique grandeur mesurable qui révèle quelques informations sur la répartition de l'énergie disponible au moment de la scission. En effet, moins l'effet de parité global d'un noyau sera important, plus de paires de nucléons auront été brisées, indiquant une forte énergie d'excitation individuelle.

Cette grandeur peut être tracée localement pour chaque masse :

$$\delta_p = \frac{Y_{pair} - Y_{impair}}{Y_{pair} + Y_{impair}}$$

Cependant, parceque les mesures des rendements isotopiques de la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ dans la région des produits de fission lourds n'ont pas été mesurés complètement, il est difficile d'établir une conclusion quant à la figure 7.12. Cette figure compare l'effet de parité des masses mesurées avec les valeurs de JEFF3.1 calculées uniquement pour les isotopes mesurés. Elle montre néanmoins un très bon accord entre ces deux types de valeurs.

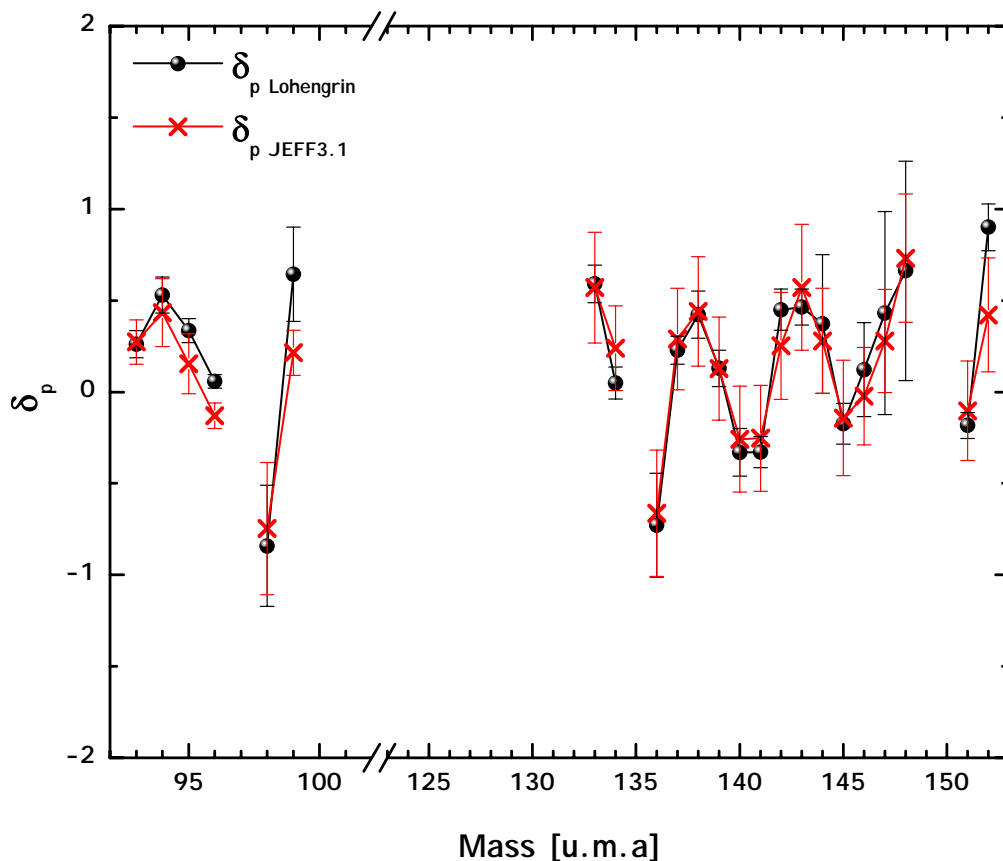


FIG. 7.12 – Effet de parité local en fonction des masses pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les calculs ont été effectués uniquement pour les isotopes qui mesurés sur le Lohengrin. Les points en noir représentent les valeurs calculés pour les points mesurés, les croix en rouge représentent les valeurs calculées avec les données de JEFF3.1.

7.3.4 Conclusion

Face aux besoins de données nucléaires inhérents pour chacun des isotopes, c'est à dire les valeurs des temps de demi-vie des noyaux et les rapports d'embranchement des raies γ , plusieurs bibliothèques ont été sollicitées :

- NNDC (National Nuclear Data Center),
- JEFF3.1,
- LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory),
- ENDFB-VI,
- JENDL-3.3.

Les bases de données ENDFB-VI et JENDL-3.3 se sont très vite avérées incomplètes, et aucune donnée utilisée au cours de l'expérience ne provient de l'une de ces deux bibliothèques.

Les valeurs de JEFF3.1 ainsi que celles de LBNL sont pour la plupart des noyaux en très bon accord, même si les données disponibles sur le site de LBNL sont plus nombreuses que celles de JEFF3.1. Ces données correspondent directement aux données de la Table des Isotopes. Cependant, pour certains noyaux comme $^{53}_{139}\text{I}$, $^{58}_{149}\text{Ce}$ et $^{61}_{152}\text{Pm}$, seule de ces deux bases JEFF3.1 a été à même de fournir des renseignements.

Le choix des masses mesurées au cours de ces expériences s'appuyait en grande partie sur les bonnes connaissances ou non de ces données nucléaires, disponibles dans différentes bases, cependant, pour la masse 96, s'est avérée des erreurs quant à ces données.

La mesure de différentes raies γ du noyau $^{37}_{94}\text{Rb}$ a permis de déterminer laquelle des trois bibliothèques NNDC, LBNL ou JEFF3.1 donnait une valeur juste du rapport d'embranchement du pic γ de 1309,1 keV. En effet, les valeurs données pour ce rapport d'embranchement sont différentes dans ces trois bibliothèques, tableau 7.3. Au cours de nos mesures, seules les valeurs de NNDC ont donné des résultats cohérents entre les différents pics γ de ce noyau.

E_γ [keV]	NNDC		LBNL		JEFF3.1	
	B.R. (%)	$d_{B.R.}$ (%)	B.R. (%)	$d_{B.R.}$ (%)	B.R. (%)	$d_{B.R.}$ (%)
836,9	87	3	87,1	4	87,3	0,5
1309,1	14,2	8	87	?	?	?
1577,5	31,8	16	31,8	16	31,9	1,58

TAB. 7.3 – Comparaison des trois différentes bases de données pour les γ du noyau $^{37}_{94}\text{Rb}$.

7.4 Limites de la méthode

Comme pour toutes les mesures de spectrométrie, le premier obstacle auquel est confrontée cette méthode réside dans l'étendue de la connaissance des données nucléaires et de leurs précisions. Encore aujourd'hui, un grand nombre de noyaux, et en particulier les plus exotiques, n'ont pas encore été mesurés, ou souffrent d'incertitudes très importantes. Cependant, de nombreux efforts sont faits, notamment en spectroscopie, pour remédier à ce problème.

Les temps de demie-vie très longs de certains isotopes représentent également une contrainte pour ce type de mesure. A moins d'entreprendre des mesures spécifiques pour certaines chaînes de masses particulières, il est difficile d'envisager, à cause des temps de faisceaux délivrés sur le Lohengrin et des temps de vie des cibles, la mesure d'isotopes dont la durée de demie-vie est supérieure à quelques heures (une ou deux).

De plus, les isotopes qui se désexcitent directement sur l'état fondamental de leur noyau fils ne pourront jamais être mesurés par cette méthode. Néanmoins, ils sont très peu nombreux.

Malgré ces limitations, ce type de mesure reste très prometteur. Il permet en outre d'évaluer les rendements isotopiques et isomériques de n'importe quel système fissionnant, et ce, pour toutes les masses, contrairement aux mesures qui associaient au spectromètre uniquement la chambre à ionisation pour la détermination des isotopes, efficace uniquement pour les produits de fission légers.

Conclusion

Le but de ce travail était dans un premier temps de valider la mesure des rendements isobariques dans la région des produits de fission lourds sur le Lohengrin.

Si les rendements lourds ont déjà été mesurés pour le $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ [R⁺02], il était nécessaire de confirmer le bon fonctionnement du spectromètre, notamment après les récents problèmes du générateur de haute tension de celui-ci. Les deux différentes mesures de rendements de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ ont ainsi permis de montrer que non seulement la nouvelle haute tension du spectromètre fonctionnait bien, mais aussi que la méthode de détermination des rendements en masse avec pour système de détection une chambre à ionisation était efficace dans la région des produits de fission lourds aussi bien que dans celles des produits de fission légers.

Cette méthode a donc été étendue pour la détermination des rendements isobariques des produits de fission lourds pour les systèmes $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

L'autre grande ligne de la thèse a été de mettre au point une nouvelle technique expérimentale afin de pouvoir déterminer sur le spectromètre Lohengrin les rendements isotopiques de n'importe quel produit de fission, la précédente méthode ne permettant de mesurer que la bosse légère. Ces nouvelles mesures reposent sur la séparation des isotopes par spectrométrie γ . Les rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ ont ainsi pu être mesurés avec succès de cette manière, et ouvrent la porte à la mesure des rendements complets de n'importe quel actinide.

Cependant, si le principe de cette méthode a été validé par la mesure du ^{239}Pu , certaines améliorations sont nécessaires pour diminuer les incertitudes mais aussi pour étendre la gamme des produits de fission mesurables (faible rendement).

La première étape incontournable pour la suite de ces mesures sera la fabrication d'une nouvelle chambre à vide à l'intérieur de laquelle sera placée un détecteur β . Ce dispositif permettrait d'effectuer des mesures en coïncidences β - γ avec une efficacité suffisante, et laverait les spectres γ du bruit de fond extérieur.

Ces mesures ont également permis d'étudier les distributions en charge ionique et énergie cinétique des produits de fission.

Les distributions en charge ionique ont montré la présence de plusieurs isomères nanosecondes dans cette région de la fission.

La forme asymétrique des distributions en énergie cinétique reste plus complexe, et n'est toujours pas expliquée. Cependant, les différentes études menées au cours de ces trois années montrent que ces formes ne peuvent pas s'expliquer par la perte d'énergie cinétique dans les cibles, contrairement aux idées préconçues. Elle n'est également pas le résultat de l'évaporation des neutrons prompts par les fragments de fission, ni de la superposition des distributions des différents isomères présents pour une même masse.

Dans la suite la mesure des rendements des produits de fission lourds pour d'autre système fissionnant est prévue, notamment en collaboration avec le CNRS, qui s'intéresse par exemple au Thorium ou à l' ^{233}U .

Mais au-delà des rendements d'autres études intéressantes sont à considérer quant aux phénomènes physiques, comme l'étude complète des distribution en charge ionique et énergie cinétique des noyaux possédant au moins un isomère nanoseconde.

Annexe A

Démonstration de l'équation de calcul de rendement

$$Y(\mathbf{A}) = \sum_n \int_{\mathbf{E}_k} Y(\mathbf{A}, \mathbf{q}_n, \mathbf{E}_k) d\mathbf{E}_k$$

Pour plus de clarté dans la démonstration, la somme discrète sur les charges ioniques sera remplacée par une somme continue :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} Y(A, q, E_k) dq dE_k$$

Cas de deux distributions gaussiennes indépendantes en charge ionique et énergie cinétique

Le rendement $Y(A)$ de la masse A dépend de la contribution des charges ioniques et des énergies cinétiques. Elle peut donc être exprimée comme étant le produit de deux fonctions, avec une première fonction $f(q)$ qui dépend uniquement des charges ioniques, et une seconde fonction $g(E_k)$ qui elle ne dépend que des énergies cinétiques. Cette écriture n'est possible que si les charges ioniques et les énergies cinétiques ne sont pas corrélées :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} f(q) g(E_k) dq dE_k$$

donc

$$Y(A, q, E_k) = f(q) g(E_k)$$

Pour des distributions en charge ionique et énergie cinétique gaussiennes, les fonctions $f(q)$ et $g(E_k)$ s'écrivent alors :

$$f(q) = I_f \frac{1}{\sigma_q \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q - \langle q \rangle)^2}{2\sigma_q^2}}$$

et

$$g(E_k) = I_g \frac{1}{\sigma_{E_k} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_k \rangle)^2}{2\sigma_{E_k}^2}}$$

La valeur du rendement $Y(A)$ prend alors la valeur de :

$$Y(A) = I_f I_g$$

Soient $R(q_i)$ et $S(E_{k_j})$ les intégrales des distributions tels que :

$$R(q_i) = \int_{E_k} Y(A, q_i, E_k) dE_k = \int_{E_k} f(q_i) g(E_k) dE_k = I_g f(q_i)$$

$$S(E_{k_j}) = \int_q Y(A, q, E_{k_j}) dq = \int_q f(q) g(E_{k_j}) dq = I_f g(E_{k_j})$$

d'où :

$$R(q_i) \times S(E_{k_j}) = I_f g(E_{k_j}) \times I_g f(q_i) = I_f I_g g(E_{k_j}) f(q_i) = Y(A) Y(A, q_i, E_{k_j})$$

$$Y(\mathbf{A}) = \frac{\mathbf{R}(\mathbf{q}_i) \times \mathbf{S}(\mathbf{E}_{k_j})}{(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})} \quad \text{cqfd.}$$

Cas de deux distributions indépendantes en charge ionique et énergie cinétique ajustées par deux gaussiennes

De la même manière que précédemment, on retrouve l'équation :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} Y(A, q, E_k) dq dE_k = \int_q \int_{E_k} f(q) g(E_k) dq dE_k$$

avec cette fois pour fonctions :

$$f(q) = I_{f1} \frac{1}{\sigma_{q1} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q - \langle q_1 \rangle)^2}{2\sigma_{q1}^2}} + I_{f2} \frac{1}{\sigma_{q2} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q - \langle q_2 \rangle)^2}{2\sigma_{q2}^2}}$$

et

$$g(E_k) = I_{g1} \frac{1}{\sigma_{E_{k1}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k1} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k1}}^2}} + I_{g2} \frac{1}{\sigma_{E_{k2}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k2} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k2}}^2}}$$

$Y(A)$ prend alors la valeur de :

$$Y(A) = (I_{f1} + I_{f2}) (I_{g1} + I_{g2})$$

avec

$$R(q_i) = \int_{E_k} Y(A, q_i, E_k) dE_k = \int_{E_k} f(q_i) g(E_k) dE_k = (I_{g1} + I_{g2}) f(q_i)$$

$$S(E_{k_j}) = \int_q Y(A, q, E_{k_j}) dq = \int_q f(q) g(E_{k_j}) dq = (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j})$$

d'où :

$$R(q_i) \times S(E_{k_j}) = (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j}) \times (I_{g1} + I_{g2}) f(q_i) = (I_{f1} + I_{f2}) (I_{g1} + I_{g2}) g(E_{k_j}) f(q_i) = Y(A) Y(A, q_i, E_{k_j})$$

$$\mathbf{Y}(\mathbf{A}) = \frac{\mathbf{R}(\mathbf{q}_i) \times \mathbf{S}(\mathbf{E}_{k_j})}{(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})} \quad cqfd.$$

Ce résultat souligne le fait que quelque soit la fonction utilisée pour ajuster les distributions en charge ionique ou en énergie cinétique, simple ou double gaussiennes, l'équation ci-dessus reste valable, à condition qu'il n'y aie pas de corrélation entre les charges ioniques et les énergies cinétiques.

Cas de deux distributions en charge et en énergie ajustées par deux gaussiennes en considérant une corrélation entre charge ionique et énergie cinétique

La formule de Shima (chapitre 4.3.4) ainsi que la référence [S⁺86] montrent explicitement une dépendance de la charge ionique des produits de fission en fonction de leur énergie cinétique après la traversée de la cible et de la feuille de Nickel. En revanche, l'énergie cinétique n'a pas de raison évidente de dépendre de la charge ionique.

Pour tenir compte de ces propriétés, il faut ajouter un terme de corrélation de la charge en fonction de l'énergie :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} Y(A, q(E_k), E_k) dq dE_k = \int_q \int_{E_k} f(q(E_k)) g(E_k) dq dE_k$$

avec cette fois pour fonctions :

$$f(q(E_k)) = \left(I_{f1} \frac{1}{\sigma_{q1} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q(E_k) - \langle q_1 \rangle)^2}{2\sigma_{q1}^2}} + I_{f2} \frac{1}{\sigma_{q2} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q(E_k) - \langle q_2 \rangle)^2}{2\sigma_{q2}^2}} \right) \cdot C(q, E_k)$$

et

$$g(E_k) = I_{g1} \frac{1}{\sigma_{E_{k1}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k1} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k1}}^2}} + I_{g2} \frac{1}{\sigma_{E_{k2}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k2} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k2}}^2}}$$

avec

$$R(q_i) = \int_{E_k} Y(A, q_i, E_k) dE_k = \int_{E_k} f(q_i) g(E_k) dE_k = (I_{g1} + I_{g2}) f(q_j)$$

$$S(E_{k_j}) = \int_q Y(A, q(E_k), E_{k_j}) dq = \int_q f(q) g(E_{k_j}) dq = (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j}) \chi(q, E_k)$$

d'où :

$$\begin{aligned} R(q_i) \times S(E_{k_j}) &= (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j}) \chi(q, E_k) \times (I_{g1} + I_{g2}) f(q_j) = \\ &= (I_{f1} + I_{f2}) (I_{g1} + I_{g2}) g(E_{k_j}) f(q_j) \chi(q, E_k) = Y(A) Y(A, q_i, E_{k_j}) \chi(q, E_k) \end{aligned}$$

$$\mathbf{Y}(\mathbf{A}) = \frac{\mathbf{R}(\mathbf{q}_i) \times \mathbf{S}(\mathbf{E}_{k_j})}{(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j}) \chi(\mathbf{q}, \mathbf{E}_k)}$$

Avec le terme $\chi(q, E_k)$ qui représente la corrélation entre charge ionique et énergie cinétique impossible à évaluer avec ces études.

Annexe B

Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution

Masse	$\langle q \rangle$	$d\langle q \rangle$ (%)	σ_q	$d\sigma_q$ (%)
122	21,7	0,3	1,8	4,3
123	21,4	0,4	2,2	4,0
124	21,6	1,0	2,4	3,3
125	21,6	1,0	2,5	4,4
126	21,8	1,0	2,6	2,3
127	21,6	1,0	2,4	3,0
128	21,7	1,0	2,4	3,3
129	21,6	1,0	2,3	3,9
130	21,6	1,0	2,4	3,3
131	21,8	1,0	2,5	0,4
132	22,1	1,0	2,8	0,6
133	21,7	1,0	2,5	0,9
134	22,1	1,0	2,7	0,8
135	22,5	1,0	3,3	0,4
136	22,2	1,0	3,0	1,0
137	23,3	1,0	3,9	0,3
138	22,3	1,0	3,7	0,8
139	22,9	1,0	3,6	1,2
140	22,9	1,0	4,4	2,2
141	22,8	1,0	4,0	0,2
142	22,7	1,0	4,0	0,3
143	22,6	1,0	3,9	0,6
144	22,0	1,0	3,6	1,8
145	22,5	1,0	3,6	1,8
146	22,2	1,0	3,4	1,8
147	22,8	1,0	3,8	0,8
148	21,7	1,0	3,1	2,0
149	25,2	1,0	5,7	1,8
150	24,0	1,0	5,1	1,4

TAB. 7.4 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

Masse	$\langle q \rangle$	$d\langle q \rangle$ (%)	σ_q	$d\sigma_q$ (%)
126	22,0	0,1	2,6	1,4
127	21,8	0,4	2,4	1,0
128	21,8	0,4	2,4	0,9
129	21,9	0,2	2,3	0,5
130	22,2	0,4	2,4	0,4
131	22,1	0,2	2,5	0,5
132	22,2	0,4	2,8	0,4
133	22,0	0,3	2,5	0,4
134	22,5	0,3	2,7	0,4
135	21,9	0,1	3,3	0,1
136	22,2	0,1	3,0	0,1
137	21,9	0,3	3,9	0,4
138	22,2	0,1	3,7	2,3
139	22,7	0,4	3,6	0,3
140	25,2	0,1	4,4	0,6
141	23,5	0,1	4,0	0,8
142	23,1	0,2	4,0	0,8
143	23,0	0,3	3,9	1,6
144	23,3	0,3	3,6	1,1
145	23,0	0,3	3,6	2,9
146	22,5	0,7	3,4	1,9
147	23,1	0,5	3,8	4,9
148	23,0	0,5	3,1	2,3
149	25,2	0,7	5,7	1,5
150	24,8	0,7	5,1	3,8

TAB. 7.5 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Masse	$\langle q \rangle$	$d\langle q \rangle$ (%)	σ_q	$d\sigma_q$ (%)
130	21,9	0,2	2,3	0,4
131	21,8	0,2	2,2	0,5
132	22,0	0,2	2,3	0,4
133	22,4	0,1	2,3	0,1
134	22,0	0,1	2,4	0,6
135	21,2	0,2	2,4	0,6
136	22,3	0,1	2,5	1,6
137	21,3	0,1	2,4	0,4
138	22,0	0,2	2,7	1,5
139	22,2	0,2	2,7	0,7
140	23,8	0,2	4,2	0,2
141	22,6	0,1	3,3	0,6
142	22,8	0,1	3,6	0,3
143	22,5	0,3	3,0	1,0
144	22,6	0,3	3,5	0,6
145	22,5	0,6	3,2	1,2
146	22,3	0,7	3,3	0,9
147	23,8	0,5	3,4	2,0
148	23,7	0,7	4,0	1,0
149	25,3	0,5	3,8	1,6
150	24,3	0,6	3,6	1,7
151	26,1	0,5	3,7	1,6

TAB. 7.6 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Annexe C

Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution

Masse	$\langle E_k \rangle$	$d\langle E_k \rangle$ (%)	σ_{E_k}	$d\sigma_{E_k}$ (%)
123	73,3	1,8	7,2	5,9
124	75,1	1,7	7,9	8,0
125	74,5	1,7	6,7	4,2
126	73,8	1,7	7,5	7,1
127	75,9	1,4	7,4	6,7
128	78,5	1,4	7,4	6,6
129	81,5	2,0	6,0	5,9
130	83,0	2,6	5,2	8,0
131	81,2	2,0	5,5	7,7
132	80,1	2,1	5,3	8,3
133	78,2	1,7	6,1	7,4
134	76,9	1,2	5,9	6,2
135	73,8	1,7	6,4	5,7
136	72,9	1,9	5,8	7,7
137	72,5	1,1	6,1	7,4
138	70,4	1,7	6,2	5,9
139	69,2	1,2	6,8	5,4
140	68,9	1,0	6,7	9,3
141	68,9	1,4	5,4	6,7
142	66,9	1,6	5,1	8,8
143	65,8	1,0	5,4	6,7
144	64,7	2,8	4,8	11,0
145	64,9	1,8	5,2	8,6
146	62,6	2,6	5,5	8,2
147	61,7	1,2	4,9	7,4
148	60,3	1,2	5,0	10,7
149	59,0	1,3	5,5	5,0
150	58,3	1,1	5,4	8,2
151	58,2	1,6	6,2	10,0
152	55,8	2,9	5,2	10,3

TAB. 7.7 – Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$.

Masse	$\langle E_k \rangle$	$d\langle E_k \rangle$ (%)	σ_{E_k}	$d\sigma_{E_k}$ (%)
126	81,6	2,7	7,7	4,7
127	80,3	2,8	7,5	4,6
128	80,8	2,7	7,3	5,9
129	82,3	2,4	7,0	5,7
130	81,2	2,7	7,7	3,9
131	78,4	2,1	6,8	5,2
132	78,8	2,8	7,0	5,3
133	78,4	2,8	7,6	4,6
134	78,0	2,2	7,5	4,5
135	75,1	2,1	6,9	5,3
136	72,1	2,9	7,1	4,8
137	72,4	2,9	7,3	5,1
138	71,7	2,9	7,0	5,1
139	69,1	3,0	7,1	5,1
140	69,9	6,2	7,4	5,1
141	67,0	5,2	6,5	5,7
142	66,7	3,6	6,2	6,3
143	67,3	2,9	5,5	7,2
144	64,8	2,6	6,3	6,5
145	61,0	3,2	6,5	6,6
146	62,1	2,6	6,0	6,0
147	58,7	3,6	6,9	5,7
148	59,4	7,0	6,0	6,6
149	56,3	7,4	6,4	6,9
150	57,3	9,0	6,3	6,7

TAB. 7.8 – Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Masse	$\langle E_k \rangle$	$d\langle E_k \rangle$ (%)	σ_{E_k}	$d\sigma_{E_k}$ (%)
130	81,2	2,2	8,1	3,5
131	80,3	2,4	7,9	6,5
132	78,5	2,2	7,9	4,5
133	75,4	2,1	8,4	2,4
134	73,5	2,4	8,3	6,9
135	72,8	2,2	8,5	4,4
136	71,7	2,4	8,3	6,4
137	71,1	2,4	8,3	6,1
138	70,2	2,3	7,6	5,7
139	66,8	3,0	7,9	6,1
140	68,3	4,9	6,8	8,3
141	65,7	5,3	7,4	7,4
142	65,7	2,6	6,7	7,1
143	64,1	2,2	6,4	5,0
144	64,7	2,3	6,8	6,4
145	62,4	2,2	6,2	5,3
146	62,5	2,4	6,3	7,9
147	60,2	2,6	6,9	10,8
148	60,3	2,5	6,1	9,4
149	57,2	3,1	6,9	14,9
150	57,6	3,9	6,5	15,2
151	55,1	2,9	6,4	13,2

TAB. 7.9 – Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Bibliographie

- [A⁺96] P. Ambruster et al. Low energy fission investigated in reactions of 750 AMev ²³⁸U-ions with Pb and Be targets. *Z. Phys. A*, 355 :191–201, 1996.
- [A⁺04] P. Ambruster et al. Measurement of a complete set of nuclides, cross sections, and kinetic energies in spallation of *u2381agev* with protons. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :212701 :1–4, 2004.
- [Ara86] W. Arafa. *Mesures des distributions de produits de fission pour la réaction ²³⁷Np(2n_{th},f)*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université scientifique et médicale de Grenoble, Institut Laue Langevin : France, 1986.
- [B⁺30] H. Bethe et al. Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie. *Annalen der Physic*, 397 :325–400, 1930.
- [B⁺75] S.J. Balestrini et al. Independent fission yields of Rb and Cs from thermal-neutron-induced fission of ²³⁹Pu. *Phys. Rev. C*, 12 :413–416, 1975.
- [B⁺83] U. Brosa et al. In the exit channel of nuclear fission. *Z. Phys. A*, 310 :177–187, 1983.
- [B⁺84] J.F. Berger et al. Microscopic analysis of collective dynamics in low energy fission. *Nucl. Phys. A*, 1984.
- [B⁺85] G. Barreau et al. Fission-fragment energy correlation measurements for ²⁵²Cf(sf) and structures in far-out asymmetric fission. *Nucl. Phys. A*, 432 :411–420, 1985.
- [B⁺88a] J.P. Bocquet et al. A large ionization chamber for fission fragment nuclear charge identification at the LOHENGRIN spectrometer. *Nucl. Instr. & Meth. A*, 267 :466–472, 1988.
- [B⁺88b] U. Brosa et al. Multimodal fission and neutron evaporation. *Phys. Rev. C*, 38 :1944–1947, 1988.
- [B⁺89] A.D. Belyaev et al. Some specularities in ionic charge distributions of ²⁴¹Pu(n_{th},f)-fission products. *Nucl. Instr. & Meth. in Phys. Res. B*, 43 :5–8, 1989.
- [B⁺90] Z. Brissot et al. Characteristic of mass and nuclear charge distributions of ²²⁹Th(n_{th},f). *Z. Phys. A*, 335 :41–48, 1990.
- [B⁺91a] J.F. Berger et al. Time-dependent quantum collective dynamics applied to nuclear fission. *Comp. Phys. Comm.*, 1991.
- [B⁺91b] A.A. Bogdzel et al. Peculiarities of Pu-239 fission by resonance neutrons. *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, page 150, 1991.
- [B⁺97] H. Baba et al. Role of effective distance in the fission mechanism study by the double-energy measurement for uranium isotopes. *Nucl. Scien. & Techn.*, 34 :871–881, 1997.
- [B⁺99] U. Brosa et al. Systematics of fission-channel probabilities. *Phys. Rev. C*, 59 :767–775, 1999.

- [B⁺03] M. Bernas et al. Fission-residues produced in the spallation reaction $^{238}\text{U}+\text{p}$ at 1 AGeV. *Nucl. Phys. A*, 725 :213–253, 2003.
- [B⁺06a] J.F. Berger et al. Ecole joliot-curie de physique nucléaire. Maubuisson, 2006.
- [B⁺06b] M. Bernas et al. Very heavy fission fragments produced in the spallation reaction $^{238}\text{U}+\text{p}$ at 1 AGeV. *Nucl. Phys. A*, 765 :197–210, 2006.
- [B⁺07] E. Birgerson et al. Light fission-fragment mass distribution from the reaction $^{251}\text{Cf}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. *Nucl. Phys. A*, 791 :1–23, 2007.
- [B⁺09] E. Birgerson et al. properties of the reaction $^{238}\text{Uf}(\text{n},\text{f})$ at the vibrational resonances. *Nucl. Phys. A*, 817 :1–34, 2009.
- [Bae06] P. Baeten. Physique des réacteurs nucléaires. *Ecole Joliot Curie*, 2006.
- [Bel81] D. Belhafaf. *Etude des distributions d'énergie cinétique des fragments près de la symétrie dans la fission thermique de l'Uranium 233 et 235*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université scientifique et médicale de Grenoble, Institut Laue Langevin : France, 1981.
- [BR78] Y. Baudinet-Robinet. Analysis of charge-state distributions of heavy ions in carbon foils and gases. *Atom. Molec. Phys.*, 11 :1291–1302, 1978.
- [BR82] Y. Baudinet-Robinet. Equilibrium charge-state distributions for heavy ions exciting carbon foils. *Phys. Rev. A*, 26 :62–71, 1982.
- [C⁺74] H.G. Clerc et al. Nuclear charge distribution of mass-separated isobars from thermal neutron induced fission of ^{235}U . *Nucl. Phys. B*, 53 :45–47, 1974.
- [Cra75] B. Crasemann. *Atomic inner-shell processes*. New York-San Francisco-London : Academic Press, 1975.
- [D⁺69] P. Djachenko et al. Kinetic energy of fragments at the fission of ^{235}U by neutrons in the energy range 0 – 0.6MeV. *R YFI*, 8 :7, 1969.
- [D⁺89] M. Djebara et al. Mass and nuclear charge yields for $^{249}\text{Cf}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ at different fission product kinetic energies. *Nucl. Phys. A*, 496 :346–366, 1989.
- [D⁺99] L.V. Drapchinsky et al. Practice of using the multiple painting method. *Nucl. Instr. & Meth. A*, 438 :116–118, 1999.
- [E⁺04] K. Eberhardt et al. Perparation of targets by electrodeposition for heavy element studies. *Nucl. Instr. & Meth. A*, 521 :208–213, 2004.
- [F⁺75] K.F. Flynn et al. Independent yields of ^{84}Rb , ^{86}Rb and ^{136}Cs for thermal-neutron-induced fission of ^{233}U , ^{235}U and ^{239}Pu . *Jour. of Inorg. & Nucl. Chem.*, 37 :869–872, 1975.
- [F⁺93] G. Fioni et al. Reduction of energy dispersion on a parabola mass spectrometer. *Nucl. Instr. & Meth. A*, 332 :175–180, 1993.
- [Fri98] T. Friedrichs. *Untersuchung der neutrneninduzierten Spaltung von Curium 245 und Plutonium 241*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Carolo-Wilhelmina, 1998.
- [G⁺94] N.A. Gundorin et al. Comparative measurements of independant yields of Pu-239 fission fragments induced by thermal neutrons. *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, page 139, 1994.
- [G⁺99] J. Genevey et al. Identification of microsecond isomers in the fission product of $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. *Phys. Rev. C*, 59 :82–89, 1999.
- [G⁺04] H. Goutte et al. Mass and kinetic energy distributions of fission fragments using the time dependent generator coordinate method. *Nucl. Phys. A*, 2004.

- [G⁺05] H. Goutte et al. Microscopic approach of fission dynamics applied to fragment kinetic energy and mass distributions in ^{238}U . *Phys. Rev. C*, 2005.
- [Gau] S. Gauthier. Efficacité relative d'un détecteur de ge. *Université de Montréal*.
- [Gue83] A. Guessous. *Etude des distributions en charge et en énergie cinétique des fragments de fission de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$* . Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université scientifique et médicale de Grenoble, Institut Laue Langevin : France, 1983.
- [H⁺] O. Haxel et al. On the.
- [H⁺86] D.W. Hetherington et al. Leak rates for air and isobutane through thin polypropylene films. *Nucl. Instr. & Meth. A*, 242 :270–276, 1986.
- [H⁺89] O. Hamsch et al. Fission mode fluctuations in the resonances of $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. *Nucl. Phys. A*, 491 :56–90, 1989.
- [H⁺94] R. Hentzschel et al. Mass, charge and energy distributions in the very asymmetric fission of ^{249}Cf induced by thermal neutrons. *Nucl. Phys. A*, 571 :427–446, 1994.
- [J⁺73] A.S. Jensen et al. Shell effects in a paired nucleus for finite excitation energies. *Nucl. Phys. A*, 203 :578–596, 1973.
- [K⁺73] H.J. Krappe et al. Proc. third int. atomic en. symp. on physics and chemistry of fission. volume 1, page 159, Rochester, 1973.
- [K⁺99] U. Köster et al. Ternary fission yields of $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. *Nucl. Phys. A*, 652 :371–387, 1999.
- [Kni87] H.H. Knitter. *Z. Naturforsch. 42a*, 786, 1987.
- [Kno99] G.F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons Inc, 1999.
- [Lan80] W. Lang. Nuclear charge and mass yields for $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ as a function of the kinetic energy of the fission products. *Nucl. Phys. A*, 345 :34–71, 1980.
- [M⁺39] L. Meitner et al. Disintegration of uranium by neutrons : a new type of nuclear reaction. *Nat.*, 143 :239–240, 1939.
- [M⁺49] M.G. Mayer et al. On closed shells in nuclei. ii. *Phys. Rev.*, 75 :1969–1970, 1949.
- [M⁺70] E. Moll et al. A mass spectrometer for the investigation of fission products. pages 241–254, Marburg, 1970.
- [M⁺73] E. Moll et al. Optical performance of the recoil mass spectrometer LOHENGRIN. pages 249–254, Sweden, 1973.
- [M⁺86] R. Mueller et al. 1986.
- [M⁺89] P. Möller et al. New developments in the calculation of heavy element fission barriers. *Nucl. Phys. A*, 492 :349–387, 1989.
- [M⁺90] G. Martinez et al. Mass and nuclear charge yields for $^{237}\text{Np}(n_{th},f)$ at different fission product kinetic energies. *Nucl. Phys. A*, 515 :433–465, 1990.
- [M⁺95] P. Möller et al. Nuclear ground-state masses and deformations. *Atom. Data and Nucl. Data Tabl.*, 59 :185–381, 1995.
- [M⁺98] A. Mamdouh et al. Large-scale fission-barrier calculations with the etfsi method. *Nucl. Phys. A*, 644 :389–414, 1998.
- [M⁺00] P. Möller et al. Realistic fission saddle-point shapes. *Phys. Rev. C*, 61 :047602 :1–4, 2000.

- [M⁺01a] P. Möller et al. Five-dimensional potential energy surfaces and coexisting fission modes in heavy nuclei. *AIP Conference Proceedings*, 561 :455–463, 2001.
- [M⁺01b] P. Möller et al. Nuclear fission modes and fragment mass asymmetries in a five-dimensional deformation space. *Nat.*, 406 :785–789, 2001.
- [Mat09] L. Mathieu. Delayed neutron emission measurement, den/der/sprc/leph cea cadarache. *Note Technique n° 08-218*, 2009.
- [Mil95] R.W. Mills. *Fission product yield evaluation*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Birmingham, 1995.
- [Mor72] L.G. Moretto. Pairing fluctuations in excited nuclei and the absence of a second order phase transition. *Phys. Lett. B*, 40 :1–4, 1972.
- [MPA95] *MPAWIN Software Manual, MPA/PC-Multiparameter System*. FAST ComTec Communication Technology, 1995.
- [Mye66] W. Myers. Nuclear masses and deformations. *Nucl. Phys.*, 81 :1, 1966.
- [N⁺68] V. Nikolaev et al. On the equilibrium charge distribution in heavy element ion beams. *Phys. Lett. A*, 28 :277–278, 1968.
- [N⁺83] B. Nimal et al. Méthode de calcul des rendements indépendants de fission. *Note interne*, 1983.
- [N⁺95] N. Nishio et al. Measurement of fragment mass dependent kinetic energy and neutron multiplicity for thermal neutron induced fission of plutonium-239. *Nucl. Scien. & Techn.*, 32 :404–414, 1995.
- [N⁺00] V. Nesvizhevsky et al. Search for quantum states of the neutron in a gravitational field : gravitational levels. *Nucl. Instr. & Meth. A*, 440 :754–750, 2000.
- [N⁺02] V. Nesvizhevsky et al. Quantum states of neutrons in the earth’s gravitational field. *Nat.*, 415 :297–299, 2002.
- [P⁺00] J.A. Pinston et al. Microsecond isomers in $^{125,127,129}\text{Sn}$. *Phys. Rev. C*, 61 :024312 :1–6, 2000.
- [Poe97] D.N. Poenaru. *Experimental techniques in nuclear physics*. Walter de Gruyter, 1997.
- [Q⁺88] U. Quade et al. Nuclear yields of light fission products from thermal neutron induced fission of ^{233}U at different kinetic energies. *Nucl. Phys. A*, 487 :1–36, 1988.
- [Qua83] U. Quade. *Messung des Ausbeuten der Leichten Spaltprodukte aus der Reaktion $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ mit einer ionisationskammer*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Munich, 1983.
- [R⁺02] D. Rochman et al. Isotopic yields from the reaction $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ at the Lohengrin mass separator. *Nucl. Phys. A*, 710 :3–28, 2002.
- [Roc01] D. Rochman. *Mesure et analyse de la distribution en masse et charge des produits de fission de $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ grâce au spectromètre de masse Lohengrin*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Strasbourg, CEA Cadarache : France, 2001.
- [S⁺71] W. Surin et al. Yields and kinetic energies of fragments at the fission of U – 235 and 239 – Puby 5.5 and 15 MeV neutrons. *Yader. Fiz.*, 14 :935, 1971.
- [S⁺74] G. Sieger et al. Direct determination of the nuclear charge distribution of mass separated fission products from $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. *Nucl. Phys. B*, 53 :45–47, 1974.

- [S+82] K. Shima et al. Empirical formula for the average equilibrium charge-state of heavy ions behind various foils. *Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res.*, 200 :605–608, 1982.
- [S+84] C. Schmitt et al. Fission yields at different fission-product kinetic energies for thermal neutron induced fission of ^{239}Pu . *Nucl. Phys. A*, 430 :21–60, 1984.
- [S+86] K. Shima et al. Equilibrium charge state distributions of ions ($Z_1 \geq 4$) after passage through foils : compilation of data after 1972. *Atom. Dat. & Nucl. Tab.*, 34 :357–391, 1986.
- [S+89] J.L. Sida et al. Mass charge, and energy distributions in very asymmetric thermal fission of ^{235}U . *Nucl. Phys. A*, 502 :233–242, 1989.
- [S+00] K.H. Schmidt et al. Relativistic radioactive beams : A new access to nuclear-fission studies. *Nucl. Phys. A*, 665 :221–267, 2000.
- [Soy71] M. Soyeur. *Quelques aspects de la méthode de la coordonnée génératrice*. CEA-IN2P3, 1971.
- [T+68] A. Tsoukatos et al. *Diss. Abst. B*, 28 :2759, 1968.
- [T+99] I. Tsekhanovich et al. Mass and charge distributions in the very asymmetric thermal neutron induced fission of the odd-z nucleus ^{242m}Am . *Nucl. Phys. A*, 658 :217–239, 1999.
- [T+00] C. Tsuchiya et al. Simultaneous measurement of prompt neutrons and fission fragments for $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. *Nucl. Scien. & Techn.*, 37 :941–948, 2000.
- [T+01] I. Tsekhanovich et al. Mass and charge distributions in the very asymmetric mass region of the neutron induced fission of ^{238}Np . *Nucl. Phys. A*, 688 :633–658, 2001.
- [T+03] I. Tsekhanovich et al. Ternary particle yields in $^{249}\text{Cf}(n_{th},f)$. *Phys. Rev. C*, 67 :034610 :1–10, 2003.
- [V+73] V.G. Vorobyeva et al. Mass yields and kinetic energy of fragments for fission of plutonium isotopes. *Conf.on Neutron Physics*, 3 :270, 1973.
- [W+78] H. Wohlfarth et al. The ionic charge distribution of fission products and the influence of internal conversion on highly preionized heavy ions. *Z. Phys. A*, pages 153–163, 1978.
- [W+81] C. Wagemans et al. Experimental study of some important characteristics of the thermal neutron induced fission of ^{237}Np . *Nucl. Phys. A*, 369 :1–14, 1981.
- [W+84] C. Wagemans et al. Comparison of the energy and mass characteristics of the pu-239(n,f) and pu-240(sf) fragments. *Phys. Rev. C*, 30 :218–223, 1984.
- [W+98] M. Wöstheinrich et al. Ternary particles from the reactions $^{229}\text{Th}(n_{th},f)$, $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ and $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. volume 287, page 330, 1998.
- [Wag91] C. Wagemans. *The nuclear fission process*. CRC Press, 1991.
- [Wah88] A. Wahl. Nuclear-charge distribution and delayed-neutron yields for thermal-neutron-induced fission of ^{235}U , ^{233}U , and ^{239}Pu and for spontaneous fission of ^{252}Cf . *Atom. Data and Nucl. Data Tabl.*, 39 :1–156, 1988.
- [Woh76] H. Wohlfarth. *Massenausbeuten bei der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ als Funktion der kinetischen Energie und der Ionenladung der Spaltprodukte*. Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Darmstadt, 1976.
- [Z+85] J.F. Ziegler et al. *The stopping and range of ions in matter*. Pergamon Press, 1985.