

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Mécanique des fluides, Énergétique, Procédés**

Arrêté ministériel : 7 Août 2006

Présentée par

Florence MARTIN

Thèse dirigée par **Olivier SEROT**

et coencadrée par **Grégoire KESSEDJIAN**

préparée au sein du **Laboratoire d'Études de Physique (LEPh au CEA-Cadarache)** et du **Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC à Grenoble)**

et de l'**École Doctorale I-MEP2 : Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés, Production**

Étude des distributions en masse, charge nucléaire et énergie cinétique des produits de fission de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ et du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurées auprès du spectromètre de masse Lohengrin (ILL)

Thèse soutenue publiquement le **18 décembre 2013**, devant le jury composé de :

Monsieur Philippe DESSAGNE

Directeur de recherche au CNRS, Rapporteur

Monsieur Laurent TASSAN GOT

Directeur de recherche au CNRS, Rapporteur

Monsieur Eric LIATARD

Professeur à l'UJF, Président

Monsieur Frank GUNSING

Chercheur au CEA-Saclay, Examineur

Monsieur Olivier SEROT

Directeur de recherche au CEA-Cadarache, Directeur de thèse

Monsieur Grégoire KESSEDJIAN

Enseignant-Chercheur à Grenoble-INP, Encadrant

Monsieur Herbert FAUST

Chercheur à l'ILL, Invité



Résumé :

Les rendements des produits de fission font partie des données nucléaires sur lesquelles reposent les simulations neutroniques. L'objectif de cette thèse est d'apporter de nouvelles mesures de rendements de fission de deux noyaux fissiles : le ^{241}Pu et l' ^{233}U . Ces noyaux appartiennent respectivement au cycle du combustible de l'uranium et à celui du thorium.

Ces mesures ont été réalisées auprès du spectromètre de masse Lohengrin de l'Institut Laue Langevin (ILL) à Grenoble. Le spectromètre est combiné avec une chambre d'ionisation pour mesurer les rendements en masse de l' ^{233}U et du ^{241}Pu et avec un dispositif de spectrométrie gamma pour déterminer les rendements isotopiques de l' ^{233}U .

Une nouvelle procédure d'analyse innovante a été mise en place dans le but de maîtriser les systématiques et de réduire les biais expérimentaux. La matrice de variance-covariance associée à nos mesures de rendements a ainsi pu être calculée pour la première fois.

Mots clés :

Produit de fission, Rendements, ^{233}U , ^{241}Pu , Masse, Charge nucléaire, Énergie cinétique, Charge ionique

Study of the mass, isotopic and kinetic energy distributions of the $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$ and $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$ fission products measured at the Lohengrin mass spectrometer (ILL).

Abstract :

Fission product yields are significant nuclear data for neutronic simulations. The purpose of this work is to improve fission yield knowledge for two fissile nuclei : ^{241}Pu and ^{233}U . Those are respectively involved in the uranium and thorium nuclear fuel cycle.

The measurements are performed at the Lohengrin mass spectrometer of the Institut Laue-Langevin (ILL) located in Grenoble. The spectrometer is combined with an ionization chamber to measure mass yields of ^{241}Pu and ^{233}U and with a gamma spectrometry set-up to determine isotopic yields of ^{233}U .

A new analysis method of experimental data has been developed in order to control systematics and to reduce experimental biases. For the first time, the experimental variance-covariance matrix of our measured fission yields could be deduced.

Keywords :

Fission product, Yield, ^{233}U , ^{241}Pu , Mass, Isotopic, Kinetic energy, Ionic charge

Remerciements

Cette thèse est le fruit d'une collaboration entre le Service de Physique des Réacteurs et du Cycle (SPRC) au CEA-Cadarache, le Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie à Grenoble et l'Institut Laue Langevin (ILL) à Grenoble.

Je voudrais tout d'abord remercier Serge Kox, directeur du LPSC, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, ainsi que Frédéric Varaine, chef du SPRC, pour m'avoir reçue dans son service.

J'aimerais ensuite remercier Philippe Dessagne et Laurent Tassan Got d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire de thèse ainsi que tous les autres membres du jury pour avoir examiné ce travail : Eric Liatard, Frank Gunsing, Herbert Faust, Grégoire Kessedjian et bien sûr mon directeur de thèse Olivier Serot.

Ensuite, un grand merci à l'équipe du spectromètre Lohengrin : Herbert Faust, Ulli Köster, Norbert Laurens, Aurélien Blanc ainsi que Thomas Materna avec qui j'ai appris que 90 ne se disait pas quatre-vingt dix (que m'a t-on appris à l'école?!) mais nonante. Je voudrais aussi remercier Paolo Mutti pour sa patience, en particulier lors des coups de téléphone très tardifs.

Je remercie Daniel Heuer et Annick Billebaud, successivement chefs du groupe de Physique des réacteurs ainsi que l'ensemble des membres du groupe au sein duquel j'ai passé près de deux ans et avec qui j'ai eu l'occasion de partager des fondues en plus des histoires de neutrons et de protons. Merci à Christophe pour les shifts et "débats" sur les tableaux de gamma. Merci à Mariya ma cobureau pendant quelques mois. Merci à Elsa pour les différents échanges que l'on a pu avoir en particulier sur l'enseignement. Je voudrais par la même occasion remercier Arnaud pour m'avoir fait découvrir "De Cape et de crocs" ainsi qu'Eusèbe. Merci à Roger pour ses conseils. Merci à Pablo pour les différents échanges que l'on a pu avoir. Bon courage à Abdel pour démêler les nombreux spectres gamma.

Merci aux membres du LEPH et à son chef Cyrille De Saint Jean pour m'avoir si bien accueilli. Je voudrais en particulier remercier les habitants passés et présents du sous-sol (je voulais dire habitants du rez-de-jardin! Pardon Maxence). Merci à Li pour m'avoir fait goûter au piquant de la Chine. Merci à Guillaume pour avoir amené la machine à café. Merci à Pierre pour les fins de soirées inoubliables au hameau. Merci à Edwin pour nous faire découvrir de nouveaux jeux de société.

Nombre des habitants du sous-sol sont partis vers d'autres aventures. David est parti au pays des cowboys. Simon et Nicolas, mon binôme d'escalade, sont montés à la capitale. Et Jean, Nans et même Yannick mon co-bureau pendant plus d'un an nous ont quittés pour les lumières du premier étage (avec les aigles!).

Passons maintenant aux habitants du premier étage. Tout d'abord, félicitation à Léonie qui a brillamment eu son permis. Merci à Pierre L., David B. et Olivier L. pour avoir participé au domptage du Lohengrin. Merci à Frédéric N. pour les photos de la soutenance. Merci à Gérald pour son rire inimitable. Un grand merci à Robert pour son aide lors de la prolongation. Et encore merci à Oliver S. pour tes conseils et avoir persévéré dans les eaux tumultueuses des contrats de thèses. En parlant de persévérance, un grand merci à Philippe et à Sylvie pour leur aide précieuse.

Je voudrais dire un grand merci à toutes les personnes qui ont participé aux expériences de jour, de nuit, la semaine, le weekend et les jours fériés. Je voudrais en particulier remercier Charlotte avec qui j'ai partagé les hauts et les bas du Lohengrin.

Puis merci à ma famille pour m'avoir toujours encouragée. Je voudrais enfin remercier Pascal pour m'avoir soutenue et avoir avec relu le manuscrit.

Table des matières

1	Contexte des données nucléaires	23
1.1	Les besoins croissants en énergie	23
1.2	L'énergie nucléaire	24
1.3	Les besoins en rendements de fission	26
1.3.1	Calculs d'évolution des calculs de réacteurs	26
1.3.2	La puissance résiduelle	27
1.3.3	Les neutrons retardés	28
1.3.4	Les besoins en dehors de la filière nucléaire	29
1.4	Motivations pour l'étude du Pu-241 et de l'U-233	29
1.5	Conclusion	30
2	Modèles, mesures et évaluations des rendements de fission	31
2.1	Les modèles de fission	32
2.1.1	Phénomène de fission	32
2.1.2	Introduction aux différents modèles de fission	33
2.1.3	Modèle de la goutte liquide	34
2.1.4	Modèle de Strutinsky	35
2.1.5	Finite Range Liquid Drop Model (FRLDM)	36
2.1.6	Time-dependent Hartree-Fock approximation	38
2.1.7	Modèle de Wilkins	38
2.1.8	Modèle de Brosa	40
2.2	Les méthodes expérimentales de mesures des rendements	41
2.2.1	Mesures par radiochimie	41
2.2.2	Mesures par spectrométrie de masse	41
2.2.3	Cinématique inverse	42
2.2.4	Méthode 2E ou méthode de Schmitt	43
2.2.5	Spectrométrie de masse suivie par une spectrométrie gamma	45
2.3	L'évaluation des grandeurs physiques relatives aux rendements de fission	47
2.3.1	Les trois principales bibliothèques : JEFF, ENDF/B et JENDL	47
2.3.2	Le modèle de Wahl, un modèle empirique	48
2.3.3	Le code GEF ("a GEneral Fission model")	50
2.4	Comparaison des différentes données disponibles	50
2.4.1	Comparaison des données évaluées	50
2.4.2	Comparaison des données mesurées	54
2.4.3	Comparaison des évaluations aux données calculées par le code GEF	57
2.5	Conclusion	62
3	Le spectromètre de masse Lohengrin	63
3.1	L'Institut Laue Langevin (ILL)	64
3.2	Le spectromètre de masse Lohengrin	66
3.3	Cibles d'actinides utilisées	71
3.4	Instrumentation des mesures des rendements en masse	73

3.5	Instrumentation des mesures des rendements isotopiques	76
3.5.1	Avec une chambre d'ionisation pour le pic léger	76
3.5.2	Mesures par spectrométrie gamma pour le pic lourd	77
3.6	Conclusion	80
4	Les distributions en énergie cinétique et en charge ionique	81
4.1	La méthodologie d'analyse des distributions	82
4.1.1	Exemples de distributions en énergie cinétique	82
4.1.2	Ajustement des distributions en énergie cinétique	84
4.1.3	Exemples de distributions en charge ionique	86
4.1.4	Ajustement des distributions en charge ionique	87
4.2	Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse	88
4.2.1	Les distribution en énergie cinétique en fonction de la cible	88
4.2.2	Les distributions en énergie cinétique en fonction de la masse	94
4.3	Les distributions en charge ionique en fonction de la masse	99
4.3.1	Evolution de la distribution en charge ionique avec la combustion de la cible	102
4.3.2	Charge moyenne et largeur des distributions	102
4.3.3	Le modèle de V.S. Nikolaev	103
4.3.4	Le modèle de K. Shima	103
4.4	Corrélation entre charge ionique et énergie cinétique	107
4.5	Conclusion	110
5	L'analyse des rendements en masse	113
5.1	Le taux de comptage de A	114
5.1.1	Calcul du taux de comptage de A en supposant les distributions en énergie cinétique et en charge ionique indépendantes	115
5.1.2	Calcul du taux de comptage de A avec une corrélation (E,q)	116
5.2	Le suivi de la combustion de la cible	119
5.3	La normalisation des taux de comptages	122
5.3.1	Définition de la moyenne employée dans cette analyse	122
5.3.2	Normalisation par cible	122
5.3.3	Normaliser les données, pour obtenir des rendements absolus	123
5.4	La construction de la matrice de variance-covariance	125
5.4.1	Taux de comptage $N(A)$	125
5.4.2	Correction de la combustion de la cible	126
5.4.3	Normalisation par cible	128
5.4.4	Moyenne	129
5.4.5	Normalisation	130
5.5	Conclusion sur l'analyse des rendements en masse	130
6	L'analyse des rendements isotopiques	133
6.1	La mesure des rendements isotopiques par spectrométrie gamma	134
6.1.1	Principe de la mesure	134
6.1.2	Méthode d'analyse	139
6.2	La caractérisation du dispositif expérimental	147

6.2.1	L'efficacité des détecteurs Ge en tenant compte de la cascade de désexcitation	147
6.2.2	La combustion de la cible	152
6.3	La construction des rendements isotopiques	155
6.3.1	Distributions en énergie	155
6.3.2	Distributions en charge ionique	159
6.3.3	Normalisation des rendements isotopiques	159
6.4	Construction de la matrice de variance-covariance	162
6.5	Conclusion	169
7	Résultats et discussions	171
7.1	Les rendements en masse de l'U-233 et du Pu-241	171
7.1.1	Comparaison aux bibliothèques d'évaluations	172
7.1.2	Comparaison aux données expérimentales présentes dans EXFOR	178
7.1.3	Comparaison aux résultats des calculs du code GEF	179
7.1.4	Matrice de corrélation des rendements en masse	180
7.2	Les rendements isotopiques de l'uranium-233	182
7.3	Conclusion	190
A	La moyenne de plusieurs données	195
B	La somme de deux gaussiennes	197
B.1	Aire totale	197
B.2	Moyenne	197
B.3	Variance	198
C	Sensibilités et propagations des incertitudes	199
C.1	Définition de la sensibilité	199
C.2	Propriétés de la sensibilité	199
C.3	Propagations des incertitudes	200
D	Démonstration des formules de rendements en masse	203
D.1	Si les distributions en charge ionique et en énergie cinétique sont indépendantes	203
D.2	Si les distributions en charge ionique et en énergie cinétique sont corrélées	204
E	Résolution matricielle des équations de Bateman	205
E.1	Les équation de Bateman	205
E.2	Mesure avec le faisceau est ouvert	206
E.3	Le faisceau est fermé	207
F	Démonstration des formules de rendements isotopiques	209
G	Les distributions en charges obtenues avec les détecteurs Ge	211
H	Les résultats des mesures	219
H.1	Les rendements en masse de l'U-233	219
H.2	Les rendements en masse du Pu-241	220

H.3 Les rendements isotopiques de l'U-233	221
Bibliographie	223

Liste des Tables

1.1	Production d'électricité par source d'énergie primaire en 2010.	24
1.2	Comparaison entre $\bar{\nu}_d$ évalué dans la bibliothèque JEFF-3.1.1 à partir de mesures intégrales (=I) et $\bar{\nu}_d$ calculé à partir du calcul par sommation.	29
1.3	Vecteur isotopique du plutonium dans un combustible MOX non-irradié.	30
2.1	Quantités de mouvement pour deux exemples de réactions	42
2.2	Le coefficient de correction des effets pair-impair $F(A)$	49
2.3	La somme des différences absolues des rendements en masse provenant de trois sources différentes : les deux bibliothèques d'évaluations JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0 ainsi que les calculs effectués avec le code GEF. Les rendements étant exprimés en %, leur différence absolue est aussi exprimée en %.	57
3.1	Exemple de différentes masses sélectionnées ensemble par le spectromètre Lohengrin	68
3.2	Quelques caractéristiques techniques du spectromètre Lohengrin.	70
3.3	Caractéristiques des cibles utilisées	72
4.1	Erreur sur le calcul des rendements des masses 98 et 136 induite par l'hypothèse d'indépendance des distributions en charge et en énergie.	107
5.1	Evolution dans le temps du rapport $\sum_q N(136, 21, E_q)/N(136, q = 21, E_q)$ pour les deux cibles. Pour la première cible, les trois mesures correspondent aux trois morceaux sur lesquels a été ajusté le burn-up.	120
5.2	Répartition des rendements en masses de l' $^{233}\text{U}_{(n_{th},f)}$ selon la bibliothèque JEFF-3.1.1. Les masses mesurées à l'ILL vont de 126 à 154.	123
6.1	Energies et intensités des raies γ de ^{96m}Y utilisés pour l'efficacité des détecteurs Germanium	149
6.2	Les chaines isotopiques des masses 139 et 140 avec Z , $T_{1/2}$ et $Y(A,Z)$ JEFF-3.1.1160	
7.1	Bilan des masses dont le rendement de l' ^{233}U ou du ^{241}Pu a été mesuré.	171
H.1	Rendements absolus en masse de l' ^{233}U obtenus dans ce travail.	219
H.2	Rendements absolus en masse de l' ^{241}Pu obtenus dans ce travail.	220
H.3	Rendements isotopiques absolus de l' ^{233}U obtenus dans ce travail (1/2).	221
H.4	Rendements isotopiques absolus de l' ^{233}U obtenus dans ce travail (2/2).	222

Liste des Figures

1.1	Extrait de la carte des nucléides	25
1.2	Tableau périodique des éléments présentant les différents noyaux produits par la fission de ^{233}U induite par neutrons thermiques. Les données proviennent de la bibliothèque JEFF-3.1.1.	26
1.3	Courbe de fission élémentaire de ^{235}U	27
1.4	Contribution des différentes sources d'incertitudes à l'incertitude totale sur la courbe de fission élémentaire	28
2.1	Schéma du processus de fission induit par neutron	33
2.2	L'énergie potentielle de déformation du noyau de ^{240}Pu exprimée en fonction de deux paramètres.	35
2.3	Les cinq paramètres de déformation utilisés dans le calcul de Möller.	36
2.4	Masse moyenne du fragment lourd et du fragment léger en fonction du système fissionnant.	37
2.5	Comparaison de la distribution des rendements en masse calculée avec un modèle statique avec un paramètre de déformation (ligne en pointillés), un modèle dynamique (trait continu) et par l'évaluation de Wahl (trait discontinu) . . .	38
2.6	Comparaison des distributions en masse calculées de ^{236}U (ligne en pointillés) avec les données expérimentales de $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ (ligne continue).	39
2.7	Rendements des fragments de fission en fonction de la masse des fragments (axe des abscisses) et de l'énergie cinétique totale (axe des ordonnées)	40
2.8	Energie d'excitation du noyau d' ^{238}U	42
2.9	Figure caractéristique de la procédure de Schmitt : le taux de comptage en fonction du rapport des masses provisoires μ_1/μ_2 et de l'énergie totale E_k en MeV pour la fission thermique de ^{233}U . (extrait de [1])	44
2.10	Spectre γ mesuré avec un scintillateur Na(I) (courbe du haut) et un détecteur germanium (courbe du bas).	45
2.11	Les rendements en masse des produits de fission de ^{233}U fournis par les bibliothèques JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.0 et JENDL-4.0.	52
2.12	Les rendements en masse des produits de fission de ^{241}U fournis par les bibliothèques JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.0 et JENDL-4.0.	53
2.13	Les rendements en masse expérimentaux comparés à ceux fournis par la bibliothèque JEFF-3.1.1 des produits de fission de ^{233}U	55
2.14	Les rendements en masse expérimentaux comparés à ceux fournis par la bibliothèque JEFF-3.1.1 des produits de fission du ^{241}Pu	56
2.15	Les rendements en masse des produits de fission de $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.	58
2.16	Les rendements en masse des produits de fission de $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.	59

2.17	Les rendements en masse des produits de fission de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.	60
2.18	Les rendements en masse des produits de fission de $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.	61
3.1	Plan des instruments de l'ILL.	65
3.2	Schéma du spectromètre Lohengrin	66
3.3	Positionnement des directions des dispersions en énergie et en masse.	68
3.4	Spectre en A/q (ou en \mathcal{B}) avec un champ électrique \mathcal{E} constant pour les masses du pic lourd	69
3.5	Photographie des deux hautes tensions qui permettent d'établir le champ électrique dans le spectromètre Lohengrin	70
3.6	Photographie du porte cible	71
3.7	Photographie de la chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch. La flèche représente les produits de fission sélectionnés par le spectromètre Lohengrin.	73
3.8	Schéma de la chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch.	74
3.9	Capture d'écran du logiciel MPANT (version 1.67) pour deux mesures, l'aspect des tâches dépend des paramètres d'entrée (masse, charge, énergie).	75
3.10	Mesure de rendements isotopiques du $^{229}\text{Th}(n_{th},f)$ obtenue avec le spectromètre Lohengrin combiné avec une chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch.	76
3.11	Énergie résiduelle mesurée avec une chambre d'ionisation montée après un absorbeur parylene-C.	77
3.12	Spectre de la raie γ de 662 keV émise par une source de ^{137}Cs	78
3.13	Photographie des deux détecteurs germanium nommés "clovers" avec leur cryostat rempli d'azote liquide.	79
3.14	Photographie du système qui permet de gérer le défilement et l'enroulement de la bande	79
3.15	Impression écran d'un spectre γ , avec le logiciel TV.	80
4.1	La distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 pour chacune des cibles d' ^{233}U employées. Les lignes correspondent à des interpolations.	83
4.2	Les distributions en énergie cinétique des masses 135 et 136, effectuées à la charge ionique 21 avec une cible mince d' ^{233}U . Les lignes correspondent à des interpolations.	83
4.3	Incertitude relative sur l'aire de la distribution 136/21/E en fonction du χ^2 réduit.	85
4.4	La distribution en charge ionique des masses 136 avec une cible mince et une cible épaisse	86
4.5	La distribution en charge ionique des masses 136 et 144	87
4.6	Distribution en charge ionique de la masse 133 à l'énergie cinétique de 73 MeV.	88

4.7	Energie moyenne et écart-type de la distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 en fonction du temps. Ces distributions ont été mesurées avec les cibles “masse 1/2” et “masse 2/2”.	89
4.8	Evolution qualitative dans le temps du profil de la cible (matière fissile et couverture).	90
4.9	Différentes distributions en énergie de la masse 136 à la charge 23 mesurées au cours du temps lors de l’expérience dédiée à la détermination des énergies cinétiques. Les résultats sont présentés sans correction de perte d’énergie dans la cible.	91
4.10	Schéma de la cible “masse 1/2”.	92
4.11	Distribution en énergie pour différentes épaisseurs de cible traversées par un produit de fission de masse 136 ayant une énergie cinétique initiale de 70 MeV.	92
4.12	La perte d’énergie dans la cible en fonction de l’énergie initiales des produits de fission pour les masses 128, 134 et 143.	93
4.13	La perte d’énergie moyenne en fonction de la masse.	94
4.14	Les distributions en énergie des masses 87, 93, 135, 137, 139 et 150. Les erreurs sont dans l’épaisseur des points.	96
4.15	Énergies moyennes en fonction de A , mesurées avec les cibles “énergie 1/1”, “masse 1/2” et “masse 2/2”. Les données ne sont pas corrigées de la perte d’énergie dans la cible.	97
4.16	Énergie cinétique totale $\overline{\text{TKÉ}}$ (“Total Kinetic Energy”) avant l’émission des neutrons prompts en fonction de la masse A des fragments de fission de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$.	97
4.17	Energie moyenne en fonction de la masse des produits de fission.	98
4.18	Ecart-type de la distribution en énergie en fonction de la masse	99
4.19	Désexcitation par conversion interne.	100
4.20	La distribution en charge ionique de la masse 140 à l’énergie cinétique de 60 MeV.	101
4.21	Les distributions en charge ionique des isotopes ^{140}Xe et ^{140}Cs à l’énergie cinétique de 60 MeV. Ces données proviennent des mesures obtenues par spectrométrie γ .	101
4.22	La première et la troisième distributions en q de la masse 136 mesurées avec la cible 1. Ces deux distributions ont été effectuées respectivement aux énergies de 67 MeV et de 68 MeV. Cette faible différence d’énergie n’explique pas la cause de la dérive de la charge.	102
4.23	La charge ionique moyenne en fonction de la masse A des produits de fission.	103
4.24	Comparaison des modèles de Shima et de Nikolaev aux données expérimentales	104
4.25	Comparaison des charges moyennes déconvoluées (sans contrainte) pour 18 isotopes dans la région des produits de fission lourds. On observe une très bonne adéquation entre les modèles de H.D.Betz ou V.S.Nikolaev et l’état de charge moyenne le plus bas.	105
4.26	Déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{140}Xe .	106
4.27	Mesures de trois distributions en énergie cinétique de la masse 136 effectuées à trois charges ioniques différentes ($q=19, 22$ et 26), montrant l’augmentation de l’énergie moyenne augmente avec la charge. Ces données proviennent de la cible “corrélation 1/1”.	108

4.28	Corrélation entre énergie et charge en fonction de la masse A . La corrélation est exprimée en MeV par charge ionique pour l' ^{233}U	109
4.29	Mesures des énergies moyennes en fonction de A avec et sans corrélation entre l'énergie E et la charge ionique q . Les données ne sont pas corrigées de la perte d'énergie dans la cible. Les deux calculs donnent des résultats extrêmement proches.	109
5.1	Représentation en 3 dimensions de la distribution $N_A(q, E)$ en charge ionique q et en énergie cinétique E de la masse 136. On peut observer l'aspect discontinu de la distribution suivant q et inversement l'aspect continu de la distribution suivant E . Les distributions en énergie et en charge sont supposées indépendantes. Par conséquent, toutes les distributions en énergie aux différentes charges sont identiques à un facteur près.	115
5.2	Illustration de l'influence de la corrélation (E, q) sur l'évaluation de la distribution en énergie $N_{A,q}(E)$ pour une charge q différente de q_E	117
5.3	Différence relative entre les taux de comptages calculés en prenant en compte ou non la corrélation entre les distributions en charge ionique et en énergie cinétique.	118
5.4	Connecteur cassé de la haute tension	119
5.5	Mesures de l'évolution de la combustion de la première cible d' ^{233}U . L'ajustement a été fait sur trois zones distinctes.	120
5.6	Mesures de l'évolution de la combustion de la seconde cible d' ^{233}U . L'ajustement a été fait sur deux zones.	121
5.7	Mesures de l'évolution de la combustion de la cible de ^{241}Pu . L'ajustement a été fait sur une seule zone.	121
5.8	Les différentes étapes de l'analyse des rendements en masse.	124
5.9	Matrice de corrélation de la correction de la combustion de la cible établie à partir du numéro de la cible, du "groupe de fit" et du "groupe donnée". . . .	127
5.10	Matrice de corrélation de la correction de la combustion de la cible de ^{241}Pu	128
6.1	Schéma de principe du dispositif expérimental mis en place pour la mesure des rendements isotopiques	134
6.2	Illustration de l'évolution d'une population isotopique $n(t)$ en fonction du temps susceptible d'être mesurée par les détecteurs Ge	135
6.3	Distribution en énergie mesurée avec la chambre d'ionisation de la masse 133 à la charge ionique 21 de la cible "isotopique 4/4". L'aire hachurée représente l'intégrale de la distribution en énergie de $E - \Delta E/2$ à $E + \Delta E/2$	137
6.4	Schéma de désintégration simplifié d'une masse A	138
6.5	Informations rassemblées pour chaque γ analysé. Avec les différentes cibles, 22 masses ont été mesurées dont certaines plusieurs fois. Pour chaque masse, la distribution en charge ionique a en moyenne nécessité 18 points. Entre la mesure du bruit de fond du cadre et la mesure avec faisceau ouvert, environ 15 γ sont analysés. Ainsi ce tableau, a dû être rempli environ $22 \times 18 \times 15 \simeq 5000$ fois.	140
6.6	Schéma du dépôt de produits de fission sur la bande ainsi que les parties immobiles du dispositif expérimental.	142

6.7	Chronologie d'une mesure de rendement isotopique.	143
6.8	La distribution en charge ionique de la masse 139 de la raie de 166keV du barium ^{139}Ba avant et après correction du cadre pour les cibles 1, 3 et 4. . . .	144
6.9	L'efficacité des Germanium déterminée grâce aux simulations MCNP.	148
6.10	Détecteur modélisé avec MCNP suivant les plans donnés par le constructeur. Les schémas sont donnés à titre indicatif. Les quatre cristaux en germanium (en rose) sont positionnés au sein d'une boîte en aluminium (en bleu).	148
6.11	Le schéma de désintégration de l'isotope X . À chaque désintégration β^- , γ_1 et γ_2 sont émis.	149
6.12	La correction de l'effet de somme fournie par TRUECOINC en fonction de l'énergie des gamma	150
6.13	Le schéma de désintégration du ^{135}Te extrait de ENSDF (mai 2013)	151
6.14	Le schéma de désintégration β^- simplifié du ^{135}Te extrait de ENSDF (mai 2013)	151
6.15	Distribution en énergie cinétique de la masse 136 mesurée avec la cible épaisse "isotopique 1/4" pour la mesure du burn-up	152
6.16	Le Burn-up de la cible 1 en fonction du temps	153
6.17	Le Burn-up de la cible 3 en fonction du temps	154
6.18	Le Burn-up de la cible 4 en fonction du temps	154
6.19	Les différentes étapes de l'analyse des rendements isotopiques.	156
6.20	La distribution en énergie des masses 135 (figure du haut) et 137 (figure du bas) de la cible "isotopique 1/4".	157
6.21	La distribution en énergie des masses 135 (figure du haut) et 139 (figure du bas) de la cible "isotopique 4/4".	158
6.22	Les distributions en charge ionique des isotopes de la masses 139 de la cible 4 avant (graphe de gauche) et après (graphe de droite) correction de Bateman.	159
6.23	Les rendements isotopiques des masses 139 et 140 fournies par la bibliothèque JEFF 3.1.1. Les produits de fission ayant un temps de demi-vie supérieur à deux heures ne sont plus raisonnablement mesurable par spectrométrie γ avec le spectromètre Lohengrin.	161
6.24	Matrice de variance covariance des paramètres permettant de calculer le nombre de désintégrations $N_\gamma(q)$ et $N_\gamma(q')$ à deux charges ioniques q et q' évalué avec un même γ	163
6.25	Matrice de variance covariance entre les paramètres permettant de calculer le nombre de désintégrations N_{γ_1} et N_{γ_2} qui sont deux évaluations avec deux γ du nombre de désintégrations du même isotope.	165
6.26	Matrice de variance covariance des rendements isotopiques de deux masses A et A'	166
6.27	La matrice de corrélation entre les burn-up des mesures γ de la cible 1.	167
6.28	La matrice de corrélation entre les burn-up des mesures γ de la cible 3.	168
6.29	La matrice de corrélation entre les burn-up des mesures γ de la cible 4.	168
6.30	La courbe d'incertitude relative de l'efficacité des détecteurs Ge en % en fonction de l'énergie des γ	169

7.1	Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Sur la figure du bas, seul l'erreur associée à nos mesures est représentée.	173
7.2	Les rendements en masse des produits de fission de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Sur la figure du bas, seul l'erreur associée à nos mesures est représentée.	174
7.3	Mécanismes de production du ^{135}Xe , qui est le principal poison neutronique parmi les produits de fission. La fission de l' ^{233}U , de l' ^{235}U , du ^{239}Pu et du ^{241}Pu produit majoritairement pour la masse 135 les noyaux suivants : ^{135}Te , ^{135}I et le ^{135}Xe . Par désintégration β^- , le ^{135}Te décroît sur l' ^{135}I et l' ^{135}I décroît sur l' ^{135}Xe	175
7.4	Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Sur la figure du bas, seule l'erreur associée à nos mesures est représentée.	177
7.5	Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ (figure du haut) et du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ (figure du bas) mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux données expérimentales présentes dans EXFOR	178
7.6	Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ (figure du haut) et du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ (figure du bas) mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux calcul du code GEF version 2013/1.7.	179
7.7	La matrice de corrélation des rendements en masse de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$	180
7.8	La matrice de corrélation des rendements en masse du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$	181
7.9	Les rendements isotopiques des produits de fission de l' ^{233}U du pic lourd en fonction de la masse.	182
7.10	Les rendements isotopiques des produits de fission de l' ^{233}U en fonction de la charge nucléaire Z pour les masses 88, 92, 132, 133, 134 et 135.	183
7.11	Les rendements isotopiques des produits de fission de l' ^{233}U en fonction de la charge nucléaire Z pour les masses 136, 137, 138, 139, 140 et 141.	184
7.12	Les rendements isotopiques des produits de fission de l' ^{233}U en fonction de la charge nucléaire Z pour les masses 142, 143, 144, 145 et 146.	185
7.13	Rendements isotopiques en fonction de la masse des charges nucléaires $Z=53$ et $Z=54$. Comparaison des données issues de ce travail aux mesures réalisées par R. Brissot et al.	186
7.14	Détermination de la charge nucléaire moyenne \bar{Z} et de l'écart type σ_Z en fonction de la masse (88, 92, 134, 135, 138 et 139). Les masses qui ont été retenues pour ces calculs possèdent au moins trois isotopes répartis de part et d'autre du maximum.	187
7.15	Détermination de la charge nucléaire moyenne \bar{Z} et de l'écart type σ_Z en fonction de la masse (-141, 142, 143 et 145). Les masses qui ont été retenues pour ces calculs possèdent au moins trois isotopes répartis de part et d'autre du maximum.	188
7.16	Comparaison entre le charge nucléaire moyenne \bar{Z} mesurée et le Z_{UCD}	188
7.17	La matrice de corrélation des rendements isotopiques de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ des masses du pic lourd allant de 132 à 146.	189

7.18	La matrice de corrélation des rendements isotopiques de l' $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ des masses 88 et 92 du pic léger. Ces rendements sont indépendants de ceux du pic lourd.	190
G.1	Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 132, 133 et 134 avant et après corrections de Bateman.	212
G.2	Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 134 et 135 avant et après corrections de Bateman.	213
G.3	Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 136 et 137 avant et après corrections de Bateman.	214
G.4	Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 138 et 139 avant et après corrections de Bateman.	215
G.5	Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 145 et 146 avant et après corrections de Bateman.	218

Introduction

L’approvisionnement mondial en énergie primaire est constitué à 80 % par les combustibles fossiles : le charbon, le pétrole et le gaz. Mais les réserves sont limitées. Pour satisfaire les besoins croissants en énergie et notamment ceux des pays émergents, toutes les voies sont envisagées : hydraulique, nucléaire, bio-masse, déchets, éolien, solaire ... Dans les années 50, la France a fait le choix du nucléaire pour son électricité. A présent plus de 75 % de son électricité est d’origine nucléaire. Cependant, le développement de l’énergie nucléaire ne peut avoir lieu que si les deux conditions suivantes sont remplies : l’acceptabilité sociale et la disponibilité des ressources. Les nouvelles filières devront donc être plus sûres que les générations précédentes et plus économes en matières fissiles. Le fonctionnement des réacteurs actuels repose sur la fission de l’uranium ^{235}U , qui ne compose que 0.7 % de l’uranium naturel. Le reste étant constitué d’ ^{238}U . Il existe deux cycles du combustible permettant de générer de la matière fissile : le cycle de l’uranium et celui du thorium. Dans les deux cas, un élément fertile (respectivement l’ ^{238}U et le ^{232}Th) capture un neutron, puis par deux décroissances β^- successives va se transformer en élément fissile (respectivement le ^{239}Pu et l’ ^{233}U), qui peut fissionner sous un flux de neutrons thermiques. Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes intéressés à deux noyaux : le ^{241}Pu et l’ ^{233}U qui sont deux éléments fissiles. Le premier intervient dans le cycle de l’uranium, il apparaît notamment si l’on effectue du multi-recyclage du combustible. Le deuxième intervient dans le cycle du thorium comme le principal élément fissile. La simulation de nouveaux concepts reposent sur la connaissance des données nucléaires : sections efficaces de fission, section efficace de capture, produits de fission ... Les produits de fission interviennent notamment dans les calculs de pertes de réactivité et de chaleur résiduelle. La chaleur résiduelle est un problème crucial en cas de scénario accidentel.

L’objectif de ce travail a été d’apporter de nouvelles données sur les rendements de fission en appliquant une méthode d’analyse innovante et en fournissant pour la première fois pour ce type d’expérience une matrice de variance-covariance expérimentale. Ce document est composé de sept chapitres :

- Dans le chapitre 1, nous reviendrons plus en détails sur le contexte des données nucléaires, en général, et des rendements des produits de fission, en particulier.
- Puis nous nous intéresserons à l’état de l’art sur les rendements de fission : modèles théoriques, données expérimentales et évaluations (chapitre 2).
- Nos mesures ont été faites auprès du spectromètre en masse Lohengrin de l’Institut Laue Langevin (ILL) à Grenoble. Ce spectromètre a été combiné à une chambre d’ionisation pour mesurer les rendements en masse et à un dispositif de spectrométrie γ pour déterminer les rendements isotopiques (chapitre 3).
- Ce dispositif expérimental permet d’obtenir les distributions en énergie et en charge ionique des produits de fission. D’une part, ces distributions sont un prérequis incontournable à l’analyse des rendements en masse ou isotopique. D’autre part, ces distributions fournissent des informations sur la fission (chapitre 4).
- L’analyse des rendements en masse est présentée dans le chapitre 5.
- L’analyse des rendements isotopiques est décrite dans le chapitre 6.

- Les résultats obtenus avec les deux analyses précédentes sont présentés dans le chapitre [7](#).

Contexte des données nucléaires

Sommaire

1.1	Les besoins croissants en énergie	23
1.2	L'énergie nucléaire	24
1.3	Les besoins en rendements de fission	26
1.3.1	Calculs d'évolution des calculs de réacteurs	26
1.3.2	La puissance résiduelle	27
1.3.3	Les neutrons retardés	28
1.3.4	Les besoins en dehors de la filière nucléaire	29
1.4	Motivations pour l'étude du Pu-241 et de l'U-233	29
1.5	Conclusion	30

Les besoins croissants en énergie et les ressources limitées en combustibles fossiles conduisent à étudier différentes sources d'énergie et en particulier la filière nucléaire. Cette dernière repose sur deux cycles du combustible possibles : celui de l'uranium et celui du thorium. Le développement de nouveaux concepts et l'amélioration des concepts de réacteurs existants sont réalisés à l'aide de simulations qui reposent sur les données nucléaires. Ces dernières regroupent notamment les sections efficaces et les rendements de fission. Les rendements de fission ont une incidence importante dans les calculs d'évolution du combustible en réacteur et ceux de la puissance résiduelle. Ces rendements permettent aussi de calculer les spectres de neutrons retardés et le nombre moyen de neutrons retardés émis par fission. Ils ont des applications hors de la filière nucléaire pour l'étude des neutrinos.

1.1 Les besoins croissants en énergie

Selon les prévisions de l'Agence Internationale de l'Energie (AIE), l'approvisionnement mondiale en énergie primaire devrait augmenter d'environ 40 % entre 2009 et 2030 (World Energy Outlook 2011, AIE) [2]. Cet approvisionnement est constitué en 2009 à 81 % par les combustibles fossiles : le charbon (27 %), le pétrole (33 %) et le gaz (21 %). Le reste de l'approvisionnement est réparti entre le nucléaire (6 %), l'hydraulique (2 %), la biomasse et déchets (10 %) et les autres renouvelables (0.8 %). Ce scénario prévoit peu de changements dans la répartition des énergies dans les besoins finaux mondiaux, à l'exception de l'électricité qui devrait progresser de 17 % en 2009 à 22 % en 2030.

Le tableau 1.1 présente la part des différentes énergies primaires dans la production d'électricité en France et dans le monde en 2010. Plus de 75 % de l'électricité produite en France est d'origine nucléaire, contre environ 13 % dans le monde. Dans les années 50, la France a fait le choix de développer son parc nucléaire pour diminuer sa dépendance aux approvisionnements en pétrole.

TABLE 1.1: *Production d'électricité par source d'énergie primaire en 2010 (extrait de [2])*

%	Charbon	Pétrole	Gaz naturel	Nucléaire	Hydraulique	Autres	Total
France	4.7	1.0	4.2	75.9	11.0	3.2	100
Monde	41.0	4.6	22.2	12.9	16.0	3.7	100

1.2 L'énergie nucléaire

Le développement de la filière nucléaire repose sur deux prérequis : des systèmes plus sûrs et plus économes en matière fissile. Au sein des réacteurs actuels et ceux de la future génération IV (GEN IV), la chaleur est produite en démarrant et en contrôlant la réaction en chaîne de fission. Dans la plupart des cas, il s'agit de la fission induite par neutron thermique de l' ^{235}U . Le problème est que cet isotope, qui est le seul élément fissile à l'état naturel, ne représente que 0.7 % de l'uranium naturel. Les 99.3 % restants sont de l' ^{238}U , qui est un élément fertile. Deux cycles du combustible sont cependant envisageables pour créer des noyaux fissiles : le cycle de l'uranium et le cycle du thorium. La figure 1.1 représente une partie de la carte des éléments. Pour chacun des deux cycles, un élément fertile (^{232}Th et ^{238}U) capture un neutron, et par deux décroissances β^- successives, forme un élément fissile (^{233}U et ^{239}Pu). La particularité du cycle thorium est qu'il ne possède pas de noyau fissile disponible dans la nature. Il faut nécessairement générer l' ^{233}U dans des réacteurs fonctionnant avec le cycle de l'uranium, ce qui explique qu'actuellement le cycle de l'uranium soit le cycle utilisé dans les réacteurs de puissance.

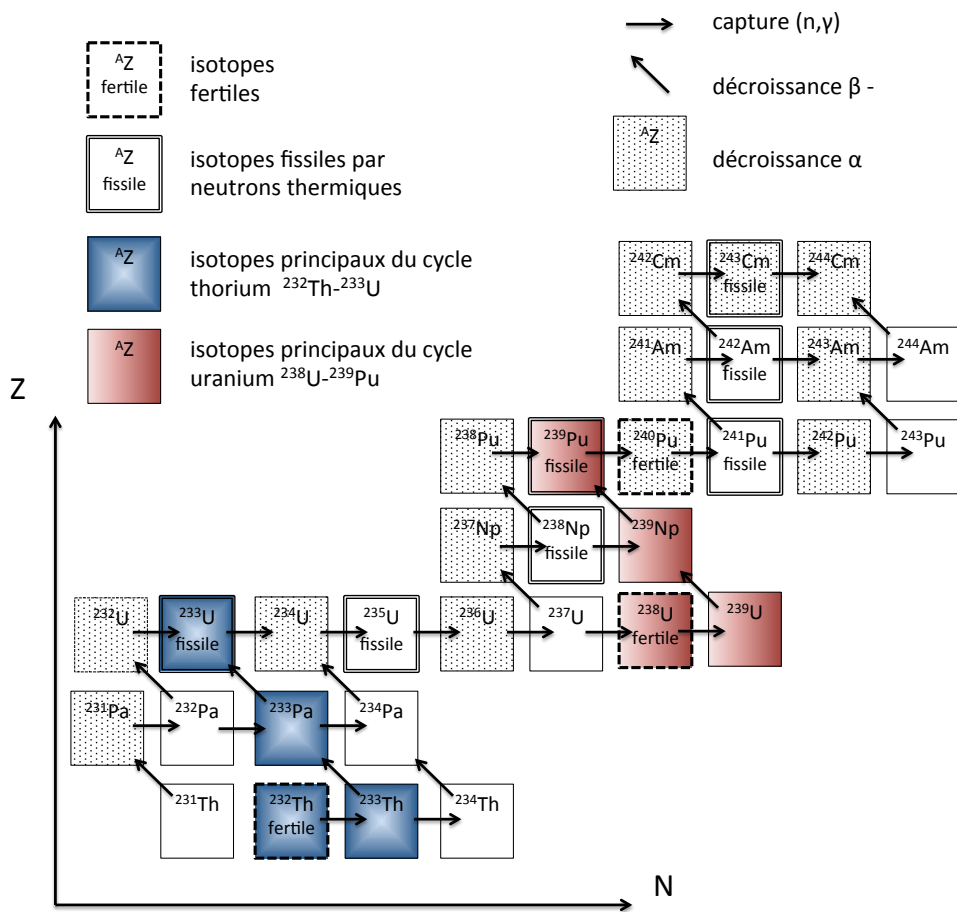


FIGURE 1.1: Extrait de la carte des nucléides

1.3 Les besoins en rendements de fission

Lors de la fission d'un actinide, le noyau se sépare en deux noyaux de tailles inférieures. Ces deux noyaux émettent des particules promptes (neutrons et γ) et sont alors appelés produits de fission. Les produits de fission sont de natures très différentes. La figure 1.2 présente le cas de la fission de ^{233}U . Sur cet exemple, la fission d'un seul noyau a engendré la création de noyaux possédant vingt trois numéros atomiques Z différents (on ne considère que les isotopes ayant une probabilité par fission supérieur à 0.5 %). Les modèles théoriques de ce phénomène complexe et dynamique ne permettent pas à l'heure actuelle de prévoir les rendements de fission de manière satisfaisante pour les applications.

Les différentes applications pour la filière nucléaire relatives à ces mesures de rendements sont les calculs d'évolution des réacteurs, les calculs de puissance résiduelle et l'évaluation des neutrons retardés. Ces rendements sont aussi intéressants pour l'étude des neutrinos auprès des réacteurs, qui sont produit à chaque décroissance β^- d'un produit de fission.

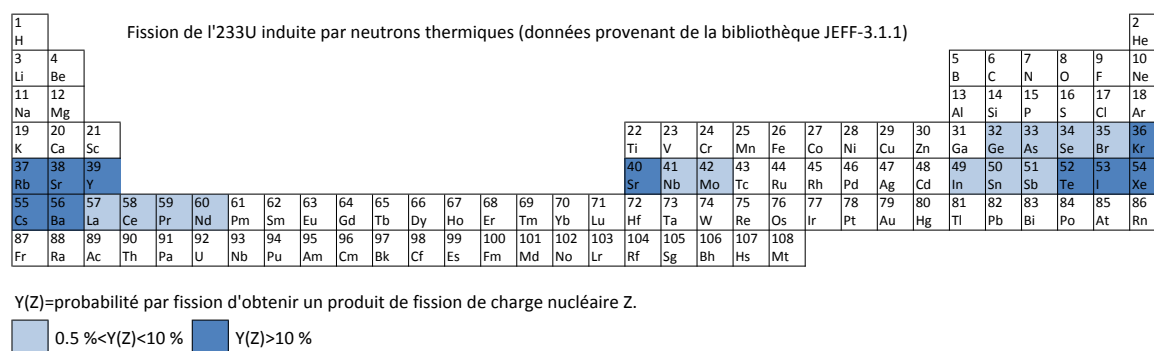


FIGURE 1.2. Tableau périodique des éléments présentant les différents noyaux produits par la fission de ^{233}U induite par neutrons thermiques. Les données proviennent de la bibliothèque JEFF-3.1.1.

1.3.1 Calculs d'évolution des calculs de réacteurs

Lors du fonctionnement du réacteur, le combustible perd en réactivité [3]. Cette dernière est "la grandeur permettant de mesurer l'écart d'un coeur par rapport à la criticité" (définition de l'ASN [4]). Cette perte de réactivité est principalement due à deux facteurs : la consommation de la matière fissile et l'apparition des produits de fission qui ont pour certains une grande probabilité de capturer un neutron. Un des plus connus est le ^{135}Xe avec une section efficace de capture pour les neutrons thermiques de 3×10^6 barns, par comparaison la section efficace de fission de ^{235}U pour les neutrons thermiques est d'environ 600 barns.

1.3.2 La puissance résiduelle

La puissance résiduelle est “la puissance thermique développée par un réacteur nucléaire à l’arrêt, provenant essentiellement de la radioactivité du combustible nucléaire et des autres matériaux, ainsi que des fissions résiduelles” (définition de l’ASN [4]). Cette puissance est particulièrement importante pour les scénarios accidentels, mais elle intervient aussi pour tout arrêt normal du réacteur. La figure 1.3 présente la courbe de fission élémentaire (CFE) de la fission thermique de l’ ^{235}U . Il s’agit de la puissance résiduelle émise par la fission d’un noyau d’ ^{235}U en fonction du temps de refroidissement. Pour mieux mettre en avant les structures, les courbes de fission élémentaire sont présentées avec en ordonnées, non pas la puissance exprimée en MeV/s, mais le produit de la puissance fois le temps de refroidissement exprimé en MeV. La figure 1.4 présente l’incertitude totale de la courbe de fission élémentaire ainsi que les différentes sources d’incertitudes qui ont donné ce résultat. Ainsi, la thèse de J.-C. Benoit a permis de montrer que l’incertitude sur la puissance résiduelle issue d’une fission thermique élémentaire de l’ ^{235}U provenait en grande majorité de l’incertitude sur les rendements indépendants de fission [5].

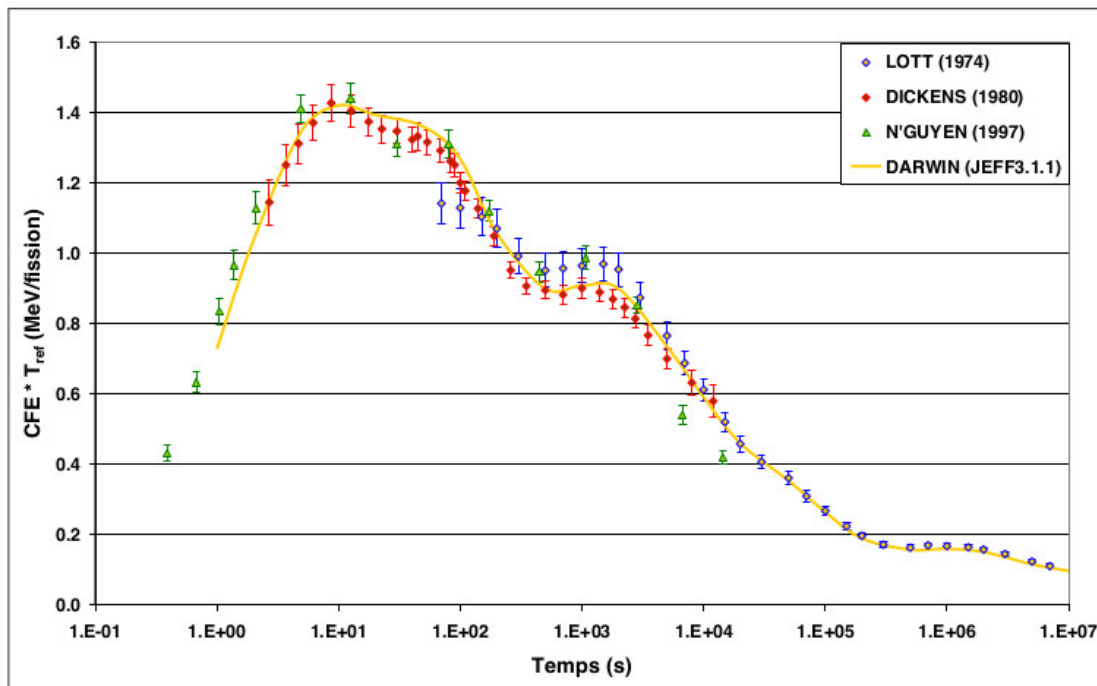


FIGURE 1.3. Courbe de fission élémentaire (CFE) de la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ (extrait de [5]). En abscisse le temps de refroidissement depuis la scission, en échelle logarithmique. En ordonnées, le produit de la puissance résiduelle émise par la fission d’un noyau d’ ^{235}U (CFE) fois le temps de refroidissement. Ce produit est exprimé en MeV par fission.

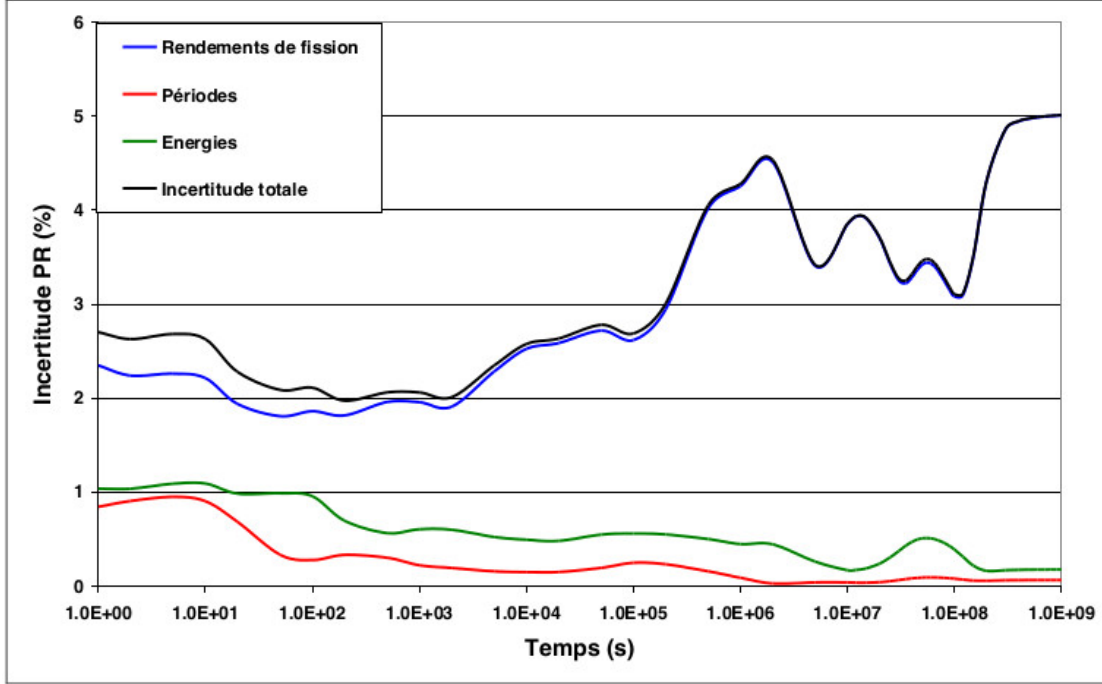


FIGURE 1.4. Contribution des différentes sources d'incertitudes à l'incertitude totale de la courbe de fission élémentaire de $l^{235}\text{U}$ (extrait de [5]). Quel que soit le temps de refroidissement considéré, la principale source d'incertitude est la connaissance des rendements de fission indépendants.

1.3.3 Les neutrons retardés

Les neutrons retardés sont créés par désintégrations (β -,n) des produits de fission. Ils ne représentent qu'une infime proportion des neutrons créés lors d'une fission. Par exemple, lors d'une fission thermique de $l^{235}\text{U}$, leur proportion est 0.68 % ou encore $\beta_{eff} \simeq 680$ pcm. Cependant ce sont les neutrons retardés qui permettent la conduite du réacteur [3]; il est donc extrêmement important de pouvoir estimer leur nombre moyen et leur spectre précisément.

Leur nombre moyen par fission $\bar{\nu}_d$ (d= "delayed") peut être déterminé en sommant sur tous les produits de fission i :

$$\bar{\nu}_d = \sum_i Y_{ci} P_{ni} \quad (1.1)$$

avec Y_{ci} le rendement cumulé et P_{ni} la probabilité d'émission de neutrons retardés du produit de fission i [6].

Le tableau 1.2 présente les résultats obtenus avec le calcul ci-dessus pour différents systèmes fissionnants. Ces données sont comparées aux évaluations basées sur des mesures intégrales. Les différences entre ces deux méthodes varient entre -7 % et 23 % suivant le système fissionnant considéré. Ces différences s'expliquent par les fortes incertitudes sur les rendements cumulés Y_{ci} et sur les P_{ni} . Actuellement, la méthode par sommation n'est pas

suffisamment précise pour les applications. Elle est complétée par des mesures intégrales qui permettent d'évaluer le coefficient β_{eff} . Ce coefficient est proportionnel $\bar{\nu}_d$ mais prend en compte d'autres paramètres comme la distribution en énergie des neutrons retardés au moment de leur création [7].

TABLE 1.2. Comparaison entre $\bar{\nu}_d$ évalué dans la bibliothèque JEFF-3.1.1 à partir de mesures intégrales (I pour Intégral) et $\bar{\nu}_d$ calculé à partir de la somme (S pour Somme) définie dans l'équation 1.1 avec Y_{ci} et P_{ni} provenant aussi de la bibliothèque JEFF-3.1.1. (extrait de [6]).

Systeme fissionnant	$^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$
$\bar{\nu}_d$ (Intégral)	6.73×10^{-3}	1.62×10^{-2}	6.50×10^{-3}	1.60×10^{-2}
$\bar{\nu}_d$ (Somme)	7.24×10^{-3}	1.48×10^{-2}	6.05×10^{-3}	1.23×10^{-2}
Différence (S-I)/I	+ 8 %	-9 %	-7 %	-23 %

1.3.4 Les besoins en dehors de la filière nucléaire

Les décroissances β^- des produits de fission sont accompagnées par l'émission d'anti-neutrinos. Ainsi, des expériences sur les anti-neutrinos sont mises en place auprès des réacteurs nucléaires. Le flux d'anti-neutrinos ainsi que leur spectre en énergie peuvent se calculer en connaissant le taux de fission dans le réacteur, les rendements de produits de fission ainsi que les données de décroissances β^- [8].

1.4 Motivations pour l'étude du ^{241}Pu et de l' ^{233}U

Les noyaux fissiles d' ^{233}U et de ^{241}Pu interviennent respectivement dans le cycle du combustible du thorium et celui de l'uranium.

Actuellement, le cycle de l'uranium est le seul qui soit exploité par les réacteurs de puissance. En France, ces réacteurs peuvent recevoir deux types de combustibles : soit de l'uranium (UOX), soit un mélange d'uranium et de plutonium (MOX).

L'uranium présent dans la nature est constitué à environ 0.7 % d' ^{235}U (fissile) et à environ 99.3 % d' ^{238}U (fertile). Pour être transformé en combustible, le minerai d'uranium subit plusieurs opérations dont l'enrichissement qui permet d'augmenter la concentration en ^{235}U . Après irradiation dans le réacteur, une partie de l' ^{238}U est transformée en plutonium. Parmi les isotopes produits du plutonium, seuls le ^{239}Pu et le ^{241}Pu sont des noyaux fissiles et donc d'intérêt pour la production d'énergie. Lors du retraitement du combustible, le plutonium est séparé des produits de fission et des autres actinides afin d'être valorisé avec le combustible MOX. Le MOX est "un combustible nucléaire mixte à base d'oxyde d'uranium appauvri et d'oxyde de plutonium issu du retraitement" (définition de l'ASN [4]). Il est largement utilisé par l'exploitant EDF dans les centrales françaises. En 2013, 22 réacteurs sur 58 contiennent du combustible MOX et 24 ont l'autorisation de l'ASN. Le tableau 1.3 présente le vecteur isotopique du plutonium dans un combustible MOX non-irradié. Le ^{241}Pu représente environ 18 % de la matière fissile dans ce combustible. Ainsi, la simulation de réacteurs contenant du

MOX nécessite des données nucléaires précises relatives à cet isotope comme les rendements de produits de fission.

TABLE 1.3. Vecteur isotopique du plutonium dans un combustible MOX non-irradié (extrait [9]).

Isotopes du Plutonium	% isotopique	% fissile
Pu-238	2.9	-
Pu-239	53.0	82.4
Pu-240	25.0	-
Pu-241	11.3	17.6
Pu-242	7.9	-

Le cycle du thorium ne contient pas d'isotope fissile présent naturellement. Ainsi avant de pouvoir démarrer une filière thorium, il faut produire une quantité suffisante d' ^{233}U . De nombreuses études de faisabilité de réacteurs utilisant le cycle thorium sont menées au CNRS [10, 11]. Par ailleurs, l'utilisation du cycle thorium- ^{233}U est au coeur du programme indien en trois étapes pour la production d'énergie nucléaire [12, 13, 14] :

- Réacteurs à eau lourde pressurisée fonctionnant avec de l'uranium naturel (non enrichi) qui permettent de produire du plutonium
- Réacteurs rapides surgénérateurs dont le combustible est principalement basé sur le Pu
- Mise en place d'une filière thorium et production d' ^{233}U

L' ^{233}U est le principale élément fissile de ce cycle du thorium. Si l'on veut étudier des réacteurs fonctionnant avec ce cycle du combustible, il est donc indispensable de compléter les bibliothèques de données nucléaires pour pouvoir réduire l'incertitude lors des simulations.

1.5 Conclusion

Le développement de la filière nucléaire nécessite de concevoir de nouveaux réacteurs plus sûrs et plus économes en matière fissile. La conception repose sur des simulations numériques qui sont alimentées par des bibliothèques de données nucléaires. Ces données nucléaires sont constituées entre autres des différentes sections efficaces, des données de décroissances radioactives et des rendements de fission. Les rendements de fission interviennent notamment dans les calculs d'évolution des réacteurs, qui fournissent la marge de réactivité et dans les calculs de puissances résiduelles, qui sont notamment importants en cas de scénario accidentel. Ces rendements de fission doivent être connus avec une bonne précision pour diminuer l'incertitude dans les simulations. Dans le chapitre 2, nous présenterons un état de l'art sur les modèles, les données évaluées et les expériences, relatives aux rendements de fission.

Modèles, mesures et évaluations des rendements de fission

Sommaire

2.1	Les modèles de fission	32
2.1.1	Phénomène de fission	32
2.1.2	Introduction aux différents modèles de fission	33
2.1.3	Modèle de la goutte liquide	34
2.1.4	Modèle de Strutinsky	35
2.1.5	Finite Range Liquid Drop Model (FRLDM)	36
2.1.6	Time-dependent Hartree-Fock approximation	38
2.1.7	Modèle de Wilkins	38
2.1.8	Modèle de Brosa	40
2.2	Les méthodes expérimentales de mesures des rendements	41
2.2.1	Mesures par radiochimie	41
2.2.2	Mesures par spectrométrie de masse	41
2.2.3	Cinématique inverse	42
2.2.4	Méthode 2E ou méthode de Schmitt	43
2.2.5	Spectrométrie de masse suivie par une spectrométrie gamma	45
2.3	L'évaluation des grandeurs physiques relatives aux rendements de fission	47
2.3.1	Les trois principales bibliothèques : JEFF, ENDF/B et JENDL	47
2.3.2	Le modèle de Wahl, un modèle empirique	48
2.3.3	Le code GEF ("a GEneral Fission model")	50
2.4	Comparaison des différentes données disponibles	50
2.4.1	Comparaison des données évaluées	50
2.4.2	Comparaison des données mesurées	54
2.4.3	Comparaison des évaluations aux données calculées par le code GEF	57
2.5	Conclusion	62

Le phénomène de fission est décrit par différents modèles théoriques, qui permettent de calculer des rendements de produits de fission. Ces calculs ont une précision insuffisante pour les applications. Ces rendements de fission ont par ailleurs été mesurés par différentes techniques, comme la radiochimie ou la spectrométrie de masse. Les résultats de ces mesures sont la base des évaluations qui servent de données d'entrée aux simulations. Ces évaluations sont réunies dans des bibliothèques, dont les trois les plus utilisées sont présentées dans ce chapitre.

2.1 Les modèles de fission

2.1.1 Phénomène de fission

2.1.1.1 Un bref historique

La découverte du phénomène de fission est généralement attribuée à l'article de Hahn et Strassman, publié le 6 janvier 1939 [15]. Cet article traite de l'existence d'éléments dont le numéro atomique est plus petit que celui de l'uranium, après son irradiation par des neutrons. En février de la même année, Lise Meitner et son neveu Otto Hahn formulent pour la première fois l'hypothèse de l'existence du phénomène de fission [16]. Quelques mois plus tard, en septembre 1939, Bohr et Wheeler fournissent une modélisation de ce phénomène sur la base du modèle de la goutte liquide [17]. Durant les décennies qui ont suivi, de nombreux travaux ont été effectués tant sur le plan théorique qu'expérimental pour modéliser ce phénomène, qui encore aujourd'hui ne peut être complètement décrit par un seul modèle.

2.1.1.2 Définitions et systématiques liées aux rendements

Durant la fission (fig. 2.1), un noyau se scinde, dans la majorité des cas, en deux noyaux de taille inférieure. Ces noyaux, appelés fragments de fission (FF), sont dans un état suffisamment excité pour permettre l'émission de particules promptes telles les neutrons ou les rayonnements gamma 10^{-15} s après la scission (voir ref. [18], ch.8, p.288). Après l'émission de ces particules promptes, les noyaux sont appelés produits de fissions (PF) et leur probabilité de création est appelée rendement indépendant. Par la suite, ces noyaux qui ont un excédant de neutrons rejoindront la vallée de stabilité par décroissance β^- , par transition isomérique et pour un faible pourcentage d'entre eux par décroissance (β^- ,n). Les rendements obtenus après l'émission de ces particules retardées sont appelés rendements cumulés.

Dans de très rares cas (0.2 à 0.4 %) [18], la fission peut produire une troisième particule, on parlera alors de fission ternaire. Ce phénomène sera négligé dans la suite de notre étude pour ne considérer que la fission binaire, qui est très majoritaire.

La fission peut être soit spontanée, comme par exemple celle du ^{252}Cf avec une demi-vie de 2.64 ans, soit induite par une particule comme la fission induite par neutron de l'uranium ^{235}U . Dans le cas de la fission induite par neutron, qui sera la seule considérée dans la suite du document, le noyau fissionnant (A_F, Z_F) est un noyau composé qui possède un numéro atomique Z_F et un nombre de nucléons ou nombre de masse A_F . Par exemple, pour la réaction $^{235}\text{U}(n,f)$, le noyau de la cible est le (235, 92) alors que le noyau fissionnant est le (236, 92). Les lois de conservation imposent que les deux fragments de fission, notés (A_1^*, Z_1) et (A_2^*, Z_2) satisfassent les relations suivantes :

$$\begin{aligned} A_F &= A_1^* + A_2^* \text{ (conservation de la masse)} \\ Z_F &= Z_1 + Z_2 \text{ (conservation de la charge nucléaire)} \end{aligned}$$

La fission nucléaire est majoritairement asymétrique, c'est-à-dire que les deux noyaux

créés sont de tailles inégales. Cette particularité conduit à la fameuse “courbe à deux bosses” des rendements de fission.

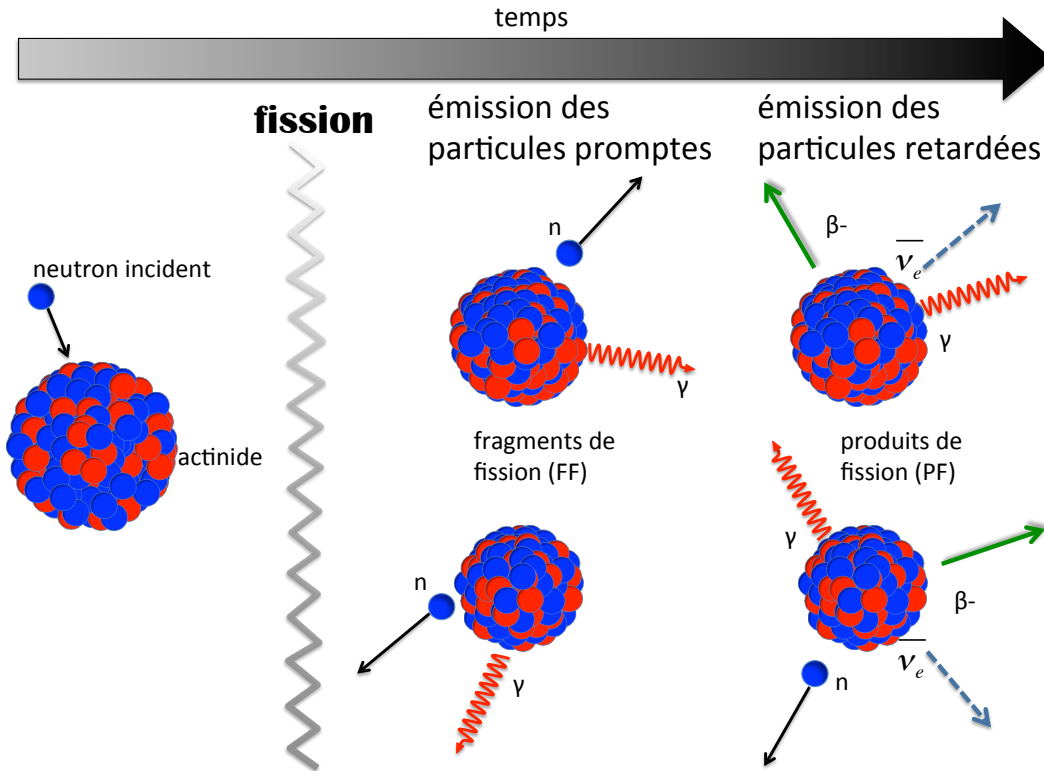


FIGURE 2.1. Schéma du processus de fission induit par neutron. En suivant la ligne du temps : A gauche : le neutron incident entraîne la fission de l'actinide. Au milieu : deux nouveaux noyaux sont créés, ce sont les fragments de fission (FF). A droite : après l'émission des particules promptes (neutrons et rayonnements γ), les deux noyaux sont nommés “produits de fission” (PF). Les produits de fission peuvent encore émettre des particules retardées : électrons (β^-), anti-neutrinos ($\bar{\nu}_e$), neutrons (n), rayonnements γ .

2.1.2 Introduction aux différents modèles de fission

Pour décrire le phénomène de fission et prédire les rendements, de nombreux modèles ont été élaborés. Certains cherchent avant tout à reproduire au mieux les données expérimentales, il s'agit souvent de modèles phénoménologiques qui s'ajustent en grande partie sur les données disponibles. Ils jouent un rôle important dans les évaluations et deux d'entre eux, le modèle de Wahl et le code GEF, sont présentés à la section 2.3.

Les modèles théoriques abordent le phénomène de fission sous différents aspects. Le modèle de la goutte liquide étudie les degrés de liberté collectifs du noyau, il s'agit d'un modèle macroscopique (§ 2.1.3). A l'opposé, la théorie Hartree-Fock est qualifiée de microscopique car elle est basée uniquement sur les interactions nucléon-nucléon pour déterminer l'énergie

potentielle en fonction de la déformation du noyau (§ 2.1.6). Entre ces deux extrêmes, la méthode de Strutinsky est un modèle macroscopique-microscopique qui allie à la goutte liquide des corrections de couches (§ 2.1.4).

Les modèles peuvent aussi se classer suivant qu'ils prennent ou non en compte les effets dynamiques. Cela est extrêmement important dans le cas des rendements, car les largeurs des distributions sont expliquées par la dynamique. Sans ces effets, un modèle ne fournit, en général, que les valeurs moyennes du pic léger et du pic lourd.

2.1.3 Modèle de la goutte liquide

Le modèle de la goutte liquide, ou Liquid Drop Model (LDM), avait déjà été développé en 1928 par Georges Gamow pour expliquer les décroissances α , quand en février 1939 Lise Meitner et Otto Robert Frisch proposèrent de l'appliquer au phénomène de fission [16, 19]. En septembre 1939, grâce à ce modèle, Niels Bohr et John Archibald Wheeler publie un article qui décrit pour la première fois en détail le mécanisme de la fission [17].

L'énergie de liaison ${}^A_Z B$ d'un noyau ${}^A_Z X$ de masse A et de numéro atomique Z correspond à la différence entre l'énergie au repos d'un noyau et la somme des énergies au repos de ses nucléons :

$${}^A_Z B = (ZM_p + (A - Z)M_n - M(A, Z))c^2 \tag{2.1}$$

avec M_p , M_n et $M(A, Z)$ les masses du proton, du neutron et du noyau ${}^A_Z X$.

Dans le modèle de la goutte liquide, où le noyau est représenté de façon macroscopique par une goutte liquide incompressible et uniformément chargée [18], l'énergie de liaison est la somme d'un terme de volume, proportionnel à A , d'un terme de surface, proportionnel à $A^{2/3}$, d'un terme coulombien, d'un terme de symétrie et enfin d'un terme d'appariement (eq. 2.2). Le terme d'appariement δ peut prendre trois valeurs : il est égal à $+12/\sqrt{A}$ si N et Z sont pairs, à 0 si l'un est pair et l'autre impair et à $-12/\sqrt{A}$ si N et Z sont impairs.

$${}^A_Z B = \underbrace{a_v A}_{\text{volume}} - \underbrace{a_s A^{2/3}}_{\text{surface}} - \underbrace{\frac{a_c Z(Z - 1)}{A^{1/3}}}_{\text{coulombien}} - \underbrace{\frac{a_a (N - Z)^2}{A}}_{\text{symétrie}} + \underbrace{\delta}_{\text{appariement}} \tag{2.2}$$

Puisque le noyau est supposé incompressible, seuls les termes de surface et coulombien jouent un rôle lors de la déformation.

La figure 2.2 présente l'énergie potentielle du noyau de ${}^{240}\text{Pu}$ prédite par le modèle de la goutte liquide (trait discontinu). Sur la figure du haut, ce modèle prévoit une barrière de fission à une bosse, alors que la présence d'un second puit de potentiel est observée expérimentalement avec la découverte des isomères de fission [20].

Sur la figure du bas, l'énergie potentielle présente un minimum pour la fission symétrique, ce qui n'est pas compatible avec les mesures de rendements de fission.

Les prédictions d'une barrière de fission à une bosse et d'une fission symétrique constituent les principales limites du modèle de la goutte liquide.

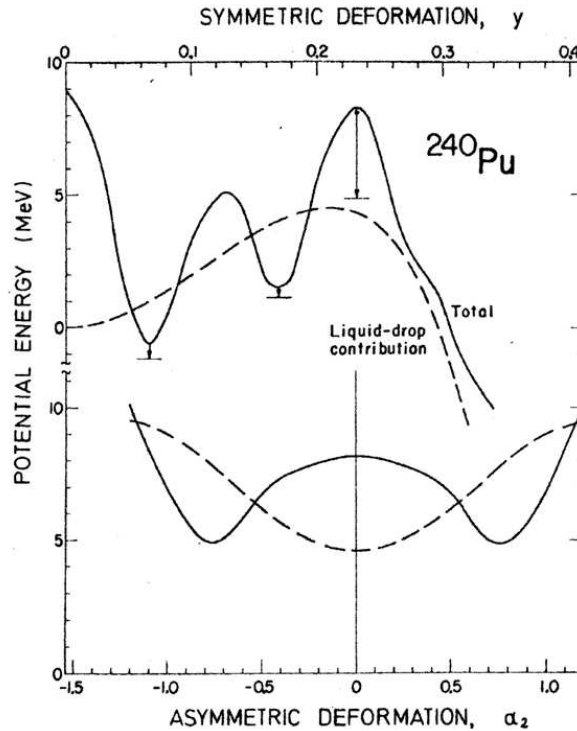


FIGURE 2.2. L'énergie potentielle de déformation du noyau de ^{240}Pu exprimée en fonction de deux paramètres. Sur le graphe supérieur ce paramètre est un paramètre de déformation γ pour une répartition symétrique des nucléons entre les deux fragments naissants. Sur le graphe inférieur, le paramètre correspond à l'asymétrie des fragments (0 correspondant à une fission symétrique). Le trait discontinu correspond au modèle de la goutte liquide, avec une barrière de fission à une bosse et une fission majoritairement symétrique. En y ajoutant les effets de couches (trait continu), la barrière de fission présente deux bosses et la fission devient majoritairement asymétrique (extrait de [21]).

2.1.4 Modèle de Strutinsky

Le modèle de Strutinsky repose sur celui de la goutte liquide auquel sont ajoutées des corrections d'effets de couches, ce qui en fait un modèle microscopique-macroscopique. Sur la figure 2.2, le modèle de Strutinsky est représenté par le trait continu. Les corrections d'effets de couche apportées au modèle de la goutte liquide permettent de prévoir la prépondérance de la fission asymétrique sur la fission symétrique et de modéliser une barrière de fission à deux bosses.

Ce modèle s'appuie sur le travail de Nilsson, dans lequel sont calculées les positions des niveaux d'excitations des nucléons en fonction de la déformation du noyau [22, 23, 24]. L'énergie totale du noyau est égale à la somme de l'énergie prévue par le modèle de la goutte

liquide B et d'une énergie de correction δU liée aux effets de couches, et cela pour chaque déformation du noyau. L'énergie de correction δU correspond à la différence entre l'énergie du noyau U calculé avec le travail de Nilsson et l'énergie du noyau \tilde{U} calculée avec une distribution uniforme des niveaux d'énergie (eq. 2.3).

$$\delta U = U - \tilde{U} \tag{2.3}$$

2.1.5 Finite Range Liquid Drop Model (FRLDM)

Comme le modèle de Strutinsky, le "Finite Range Liquid Drop Model" est construit sur le modèle de la goutte liquide auquel sont associés des effets de couches. L'énergie potentielle du noyau, qui dépend de quinze paramètres, est calculée pour près de trois millions de points dont les coordonnées sont exprimées dans un espace à cinq dimensions de déformation : l'élongation, l'asymétrie, la déformation du noyau de gauche, la déformation du noyau de droite et enfin la largeur du col (fig. 2.3). La surface d'énergie potentielle, une fois calculée, permet de définir la ou les différentes vallées que peut suivre le noyau du point selle au point de scission [25, 26, 27]. Les valeurs moyennes du fragment lourd et du fragment léger peuvent être déduites de la détermination de ces vallées (fig. 2.4). Par exemple, les valeurs moyennes des masses des fragments légers \bar{A}_L^* et lourds \bar{A}_H^* de la fission induite par neutrons thermiques de l' ^{233}U et du ^{241}Pu sont :

$$\begin{array}{ll} ^{233}\text{U} : & \bar{A}_L^* \simeq 96 \\ & \bar{A}_H^* \simeq 138 \end{array} \qquad \begin{array}{ll} ^{241}\text{Pu} : & \bar{A}_L^* \simeq 107 \\ & \bar{A}_H^* \simeq 135 \end{array}$$

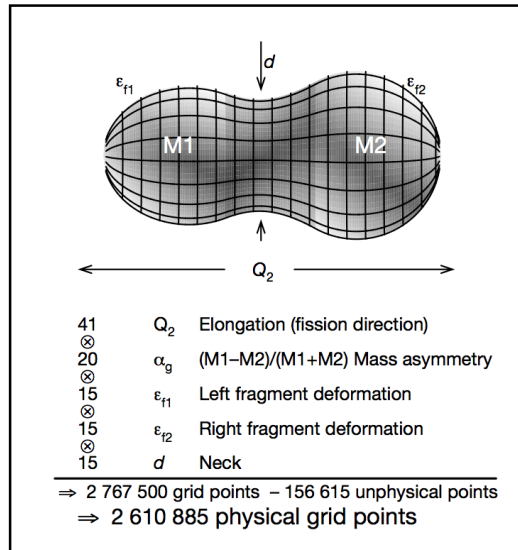


FIGURE 2.3. Les cinq paramètres de déformation utilisés dans le calcul de Möller (extrait de [27]).

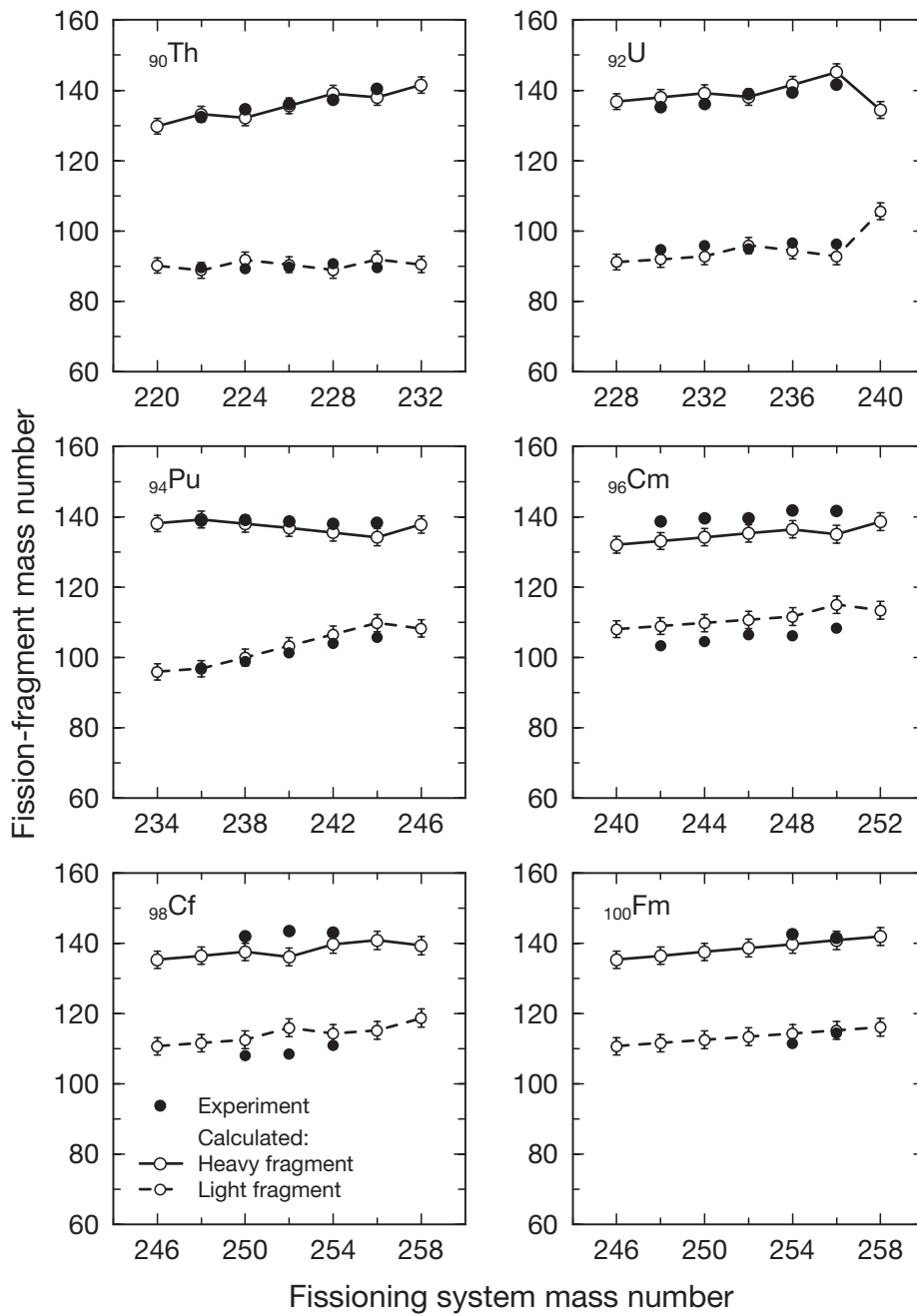


FIGURE 2.4. Masse moyenne du fragment lourd et du fragment léger en fonction du système fissionnant (extrait de [27]). Les six figures correspondent à six charges nucléaires différentes de noyaux fissionnants : 90 (Th), 92 (U), 94 (Pu), 96 (Cm), 98 (Cf) et 100 (Fm). L'axe des abscisses représente la masse du noyau composé. Les ronds pleins correspondent aux données expérimentales et les ronds vides aux données calculées.

2.1.6 Time-dependent Hartree-Fock approximation

Le noyau est un système de A nucléons, qui interagissent entre eux. Dans l'approximation Hartree-Fock-Bogoliubov, l'interaction entre deux nucléons est ramenée à une interaction effective nucléon-noyau. Ainsi le problème à A corps est ramené à un problème à un corps [28, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 35].

Dans une première étape, la surface d'énergie potentielle du noyau est déterminée dans un cadre statique grâce aux calculs de type Hartree-Fock-Bogoliubov ; dans une seconde étape, les calculs dynamiques sont effectués en propageant la fonction d'onde dans cette surface d'énergie potentielle [34]. La prise en compte de ces effets dynamiques a pour effet d'élargir la distribution en masse des fragments lourds et légers, comme le montre la figure 2.5.

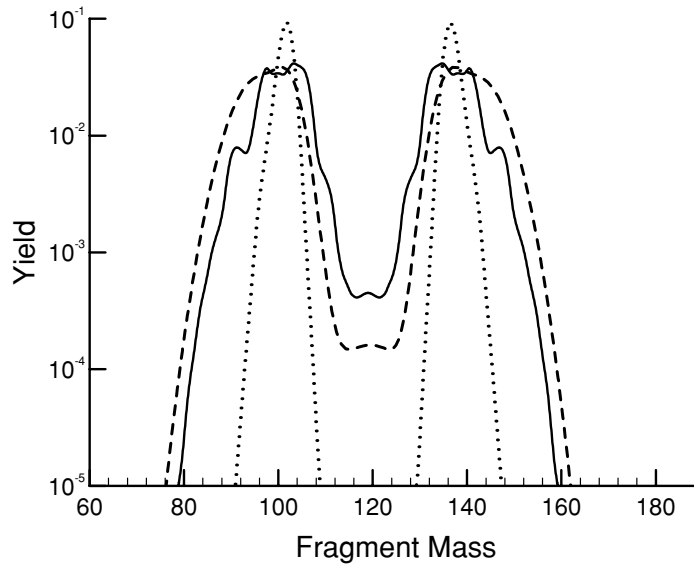


FIGURE 2.5. Comparaison de la distribution des rendements en masse calculée avec un modèle statique avec un paramètre de déformation (ligne en pointillés), un modèle dynamique (trait continu) et par l'évaluation de Wahl (trait discontinu) (extrait de [34])

2.1.7 Modèle de Wilkins

Le modèle de Wilkins ou “scission-point model” est statique. D'une part il suppose que la distribution des fragments est déterminée près ou au niveau de la scission à partir des énergies potentielles des deux fragments naissants [36] et d'autre part, il repose sur l'hypothèse d'un équilibre statistique des degrés de liberté collectifs ce qui permet de définir le paramètre de température T_{coll} . L'énergie totale du système au point de scission (eq. 2.4) est la somme des contributions de la goutte liquide, des corrections de couches et de parité pour chaque fragment, des interactions coulombiennes et des potentiels nucléaires entre les deux noyaux naissants, qui sont modélisés par deux ellipsoïdes de révolution coaxiales séparées d'une distance d . La nappe de potentiel est fonction de la déformation β et dépend de trois

paramètres : la température collective T_{coll} , l'énergie intrinsèque d'excitation des fragments caractérisée par une température τ et la distance entre les ellipsoïdes d . Ces paramètres ne sont pas déterminés par la théorie et peuvent être ajustés sur les données expérimentales.

$$\begin{aligned}
 V(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, \tau, d) = & \\
 & V_{LD1}(N_1, Z_1, \beta_1) + V_{LD2}(N_2, Z_2, \beta_2) && \text{goutte liquide} \\
 & S_1(N_1, \beta_1, \tau) + S_1(Z_1, \beta_1, \tau) + S_2(N_2, \beta_2, \tau) + S_2(Z_2, \beta_2, \tau) && \text{effets de couches} \\
 & P_1(N_1, \beta_1, \tau) + P_1(Z_1, \beta_1, \tau) + P_2(N_2, \beta_2, \tau) + P_2(Z_2, \beta_2, \tau) && \text{parité} \\
 & V_C(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) && \text{interaction coulombienne} \\
 & V_n(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) && \text{interaction nucléaire}
 \end{aligned}
 \tag{2.4}$$

La figure 2.6 présente la distribution en masse de l' ^{236}U calculée avec le modèle de Wilkins. Cette distribution est comparée aux données expérimentales de la fission de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Le calcul n'est pas compatible avec l'expérience. Il se limite à prédire la prépondérance de la fission asymétrique sur la fission symétrique.

Ce modèle fait l'objet de nouveaux développements à la DSM/DAM au sein du code SPY [37].

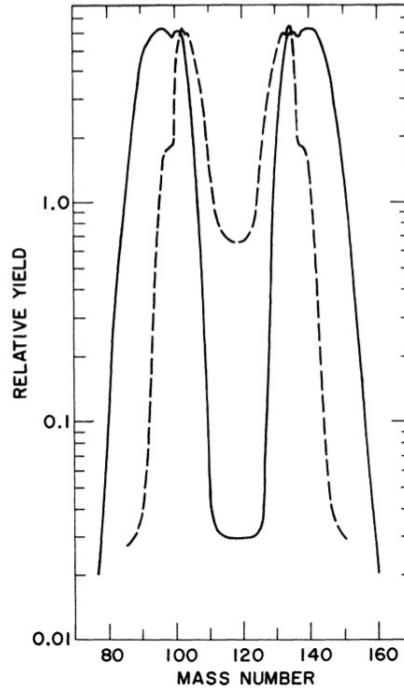


FIGURE 2.6. Comparaison des distributions en masse calculées de ^{236}U (ligne en pointillés) avec les données expérimentales de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ (ligne continue) (extrait de [36]).

2.1.8 Modèle de Brosa

Le modèle de Brosa est un modèle statique qui décrit la fission spontanée ou la fission induite de basse énergie [38, § 1.2]. Ce modèle repose d'une part sur l'existence de plusieurs formes possibles du noyau au moment de la scission (« multichannel fission ») et d'autre part, sur la rupture aléatoire du col au moment de la scission (« random neck rupture ») [18, 39, 40].

Les trois formes de pré-scission proposées par Brosa sont :

- Super Long (SL) : une forme symétrique très longue
- Standard I (S I) : une forme modérément asymétrique et relativement compact, d'où une énergie cinétique totale importante. L'énergie cinétique totale est égale à la somme de l'énergie cinétique de chacun des fragment.
- Standard II (S II) : une forme plus asymétrique et moins compact que le standard I.

La figure 2.7 présente la contribution de chacun des modes aux rendements des fragments de fission en fonction leur masse et de leur énergie totale. Outre les trois modes présentés ci-dessus, l'article de Siegler fait apparaître un quatrième mode (S III) [41].

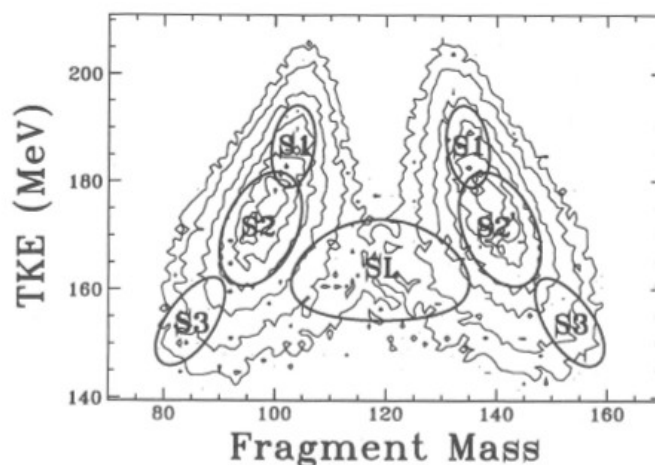


FIGURE 2.7. Rendements des fragments de fission du $^{237}\text{Np}(n,f)$ induite par des neutrons incidents de 5.5 MeV. Ces rendements sont exprimés en fonction de la masse des fragments (axe des abscisses) et de l'énergie cinétique totale (axe des ordonnées) (extrait de [41]).

La rupture aléatoire du col permet d'expliquer les largeurs des distributions des rendements, malgré l'absence de dynamique dans le modèle.

2.2 Les différentes méthodes expérimentales de mesures de rendements de fission

2.2.1 Mesures par radiochimie

Après la découverte de la fission, de nombreuses expériences ont été mises en place pour mesurer notamment les rendements de fission qui étaient le plus souvent déterminés par radiochimie ([42], ch.15). Cette méthode consiste à irradier un échantillon d'éléments fissiles dans un flux de neutrons, puis effectuer une séparation isotopique et enfin suivre les décroissances du produit de fission considéré avec soit un compteur β , soit un détecteur γ qui peut être de type NaI [43]. L'analyse de ces mesures est dépendante de la connaissance de données nucléaires comme le temps de demi-vie ou les intensités γ (nombre de γ produit par décroissance du noyau). Une autre contrainte est le temps de séparation isotopique, qui permet de mesurer uniquement des rendements cumulés. Certaines techniques permettent une séparation chimique suffisamment rapide pour permettre de mesurer des éléments ayant une demi-vie de l'ordre de la minute [44]. Il est important de noter que, plus la spectrométrie γ permet de séparer les différents noyaux, moins la séparation chimique est nécessaire ([18], ch.8). La radiochimie comparée à des méthodes basées sur l'énergie cinétique, ou le temps de vol, présente une excellente capacité à identifier un noyau tant en charge atomique Z qu'en masse A . Elle ne s'adresse cependant qu'à la mesure d'éléments radioactifs.

Une variante de cette méthode, qui a été initiée à la même époque, est composée d'une irradiation d'un échantillon, d'une dilution isotopique (qui est une séparation isotopique) et enfin d'une spectrométrie de masse conventionnelle [45, 46].

2.2.2 Mesures par spectrométrie de masse

Le principal avantage de cette méthode est d'accéder aux rendements indépendants de fission.

L'exemple le plus connu est celui du spectromètre Lohengrin, dont le fonctionnement sera détaillé d'avantage dans le chapitre 3. Il combine l'utilisation de champs magnétique et électrique qui permet une sélection des produits de fission suivant deux paramètres A/q et E/q avec A la masse, q la charge ionique et E l'énergie cinétique. Dans certains cas, la présence de ratios A/q (ex. $95/19 = 100/20 = 105/21$) identiques ou similaires ne permettent pas la séparation. Pour remédier à ce problème, une chambre d'ionisation est installée à la sortie du spectromètre afin de mesurer l'énergie cinétique des ions.

Le spectromètre Cusi-Fan-Tutte combine un détecteur start, un détecteur stop et une chambre d'ionisation. Les deux premiers détecteurs fournissent un temps de vol qui peut être converti en vitesse v . La chambre d'ionisation donne l'énergie cinétique E ainsi qu'un paramètre lié à la courbe de Bragg Q . La vitesse et l'énergie cinétique permettent d'accéder à la masse m du produit de fission, via la formule $E = \frac{1}{2}mv^2$, avec une résolution d'environ 0.8%. Le paramètre Q , quant à lui, permet de distinguer différents isotopes au sein d'une même masse, uniquement dans le cas du pic léger.

2.2.3 Cinématique inverse

Les expériences en cinématique inverse, développées à GSI (Darmstadt), se caractérisent par l'envoi d'une particule lourde, accélérée, sur une cible de particules plus légères [47]. Les fragments émis sortent de la cible avec un mouvement général vers l'avant. Cette anisotropie d'émission est due à la conservation de la quantité de mouvement avant et après la fission (tableau 2.1). Les fragments sortent de la cible dépourvus de leur cortège électronique, car ils ont une grande énergie cinétique provenant de celle du projectile. La charge ionique q est donc égale à la charge atomique Z , ce qui permet la détermination directe des rendements isotopiques. Un autre avantage est d'offrir une acceptation élevée, due à l'anisotropie d'émission des fragments.

Cependant, cette méthode fournit des données pour des énergies de neutrons incidents très supérieures à celles rencontrées dans les réacteurs rapides. En effet, dans ces expériences, l'énergie d'excitation du système fissionnant est d'environ 12 MeV (fig. 2.8), ce qui correspond à une énergie du neutron incident d'environ 6 MeV, alors que l'énergie moyenne des neutrons dans les réacteurs rapides est généralement inférieure au MeV.

TABLE 2.1: Quantités de mouvement pour deux exemples de réactions

Réaction	Cinématique directe $p(^{238}\text{U}, f)$	Cinématique inversée $^{238}\text{U}(p, f)$
Quantité de mouvement du centre de masse $\text{CM} \approx ^{238}\text{U}$	$p_{\text{CM}} = p_{^{239}\text{U}} = \tilde{p}_n$	$p_{\text{CM}} = p_{^{239}\text{U}} = p_{^{238}\text{U}}$

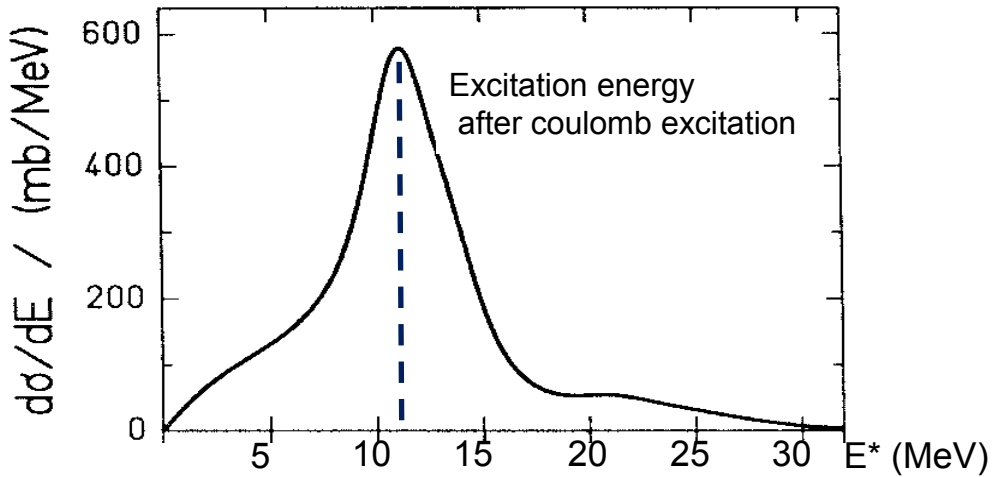


FIGURE 2.8. Énergie d'excitation du noyau d' ^{238}U (extrait de [48]). Le maximum de la distribution correspond à une énergie d'excitation de 12 MeV.

2.2.4 Méthode 2E ou méthode de Schmitt

La méthode de Schmitt [49], souvent appelée méthode 2E, permet d'obtenir les distributions en masse, en énergie et la corrélation entre énergie et masse des produits de fission avant l'émission des neutrons prompts en mesurant en coïncidence l'énergie des deux fragments. Auparavant, ces distributions avaient été établies avec une double chambre d'ionisation, mais aussi en mesurant en coïncidence le temps de vol [50] (méthode plus précise que celle de la double chambre d'ionisation) et enfin en mesurant en coïncidence l'énergie de deux ou trois ions [51, 50, 52].

La méthode de Schmitt a été largement reprise pour différents noyaux y compris l'uranium 233 [53, 54] et le plutonium 241 [55, 56, 57, 58].

Le dispositif expérimental est constitué d'une cible fine, placée sous un flux de neutrons et entourée de deux détecteurs semi-conducteurs qui mesurent l'énergie cinétique des produits de fission complémentaires. La cible doit être suffisamment fine pour limiter les pertes d'énergie des fragments. Les détecteurs semi-conducteurs [59] présentent une surface relativement grande de plusieurs cm^2 , ce qui permet d'avoir un haut taux de comptage. Ces détecteurs ont une réponse linéaire en fonction de l'énergie de l'ion, pour une masse donnée et leur résolution est plutôt bonne avec une largeur à mi-hauteur inférieure à 1.5 MeV.

Cette méthode présente, en revanche, deux obstacles importants. D'une part, la réponse des détecteurs dépend de la masse du noyau incident. D'autre part, l'énergie mesurée est celle des fragments après l'émission des neutrons prompts.

Cette méthode suppose la connaissance *a priori* du nombre de neutrons prompts émis par chacun des fragments (courbe en dents de scie ou en anglais "saw tooth"). La première étape de l'analyse est d'établir de façon théorique les relations entre l'énergie cinétique des fragments E_{ki}^* et des produits E_{ki} en fonction de la masse des fragments m_i^* , des produits m_i et du noyau fissionnant A ainsi que du nombre de neutrons prompts émis ν_i ($m_i = m_i^* - \nu_i$).

$$\begin{aligned} m_1^* E_{k1}^* &= m_2^* E_{k2}^* \quad (\text{conservation de la quantité de mouvement}) \\ m_1^* + m_2^* &= A \quad (\text{conservation de la masse}) \end{aligned}$$

En supposant que l'émission des neutrons est isotrope dans le centre de masse :

$$m_1^* = \frac{AE_{k2}}{E_{k2} + E_{k1}(1 + \xi_1)} \quad \text{avec} \quad \xi_1 = \frac{1 + \nu_1/m_1}{1 + \nu_2/m_2} \quad (2.5)$$

Pour obtenir m_2^* , il suffit d'échanger les indices 1 et 2. Dans la plupart des cas, le nombre de neutrons prompts émis (ν_1 et ν_2) par chaque fragment n'est pas connu en fonction à la fois de la masse et de l'énergie, alors que cette donnée est nécessaire à la résolution de l'équation (2.5).

En conséquence, le choix fait par cette méthode est de calculer les masses provisionnelles μ_i des fragments liées aux énergies mesurées E_{k1} et E_{k2} par des relations simples (eq. 2.6 et

2.7), puis de corriger les distributions de l'effet de l'émission des neutrons. Les masses provisionnelles ainsi que l'énergie sont souvent présentées sur un histogramme en deux dimensions, dans les travaux mettant en pratique la méthode de Schmitt; l'exemple de la figure 2.9 est extrait de l'article de Pleasonton relatif à la fission thermique de l' ^{233}U [1].

$$\mu_1 E_{k1} = \mu_2 E_{k2} \quad (2.6)$$

$$\mu_1 + \mu_2 = A \quad (2.7)$$

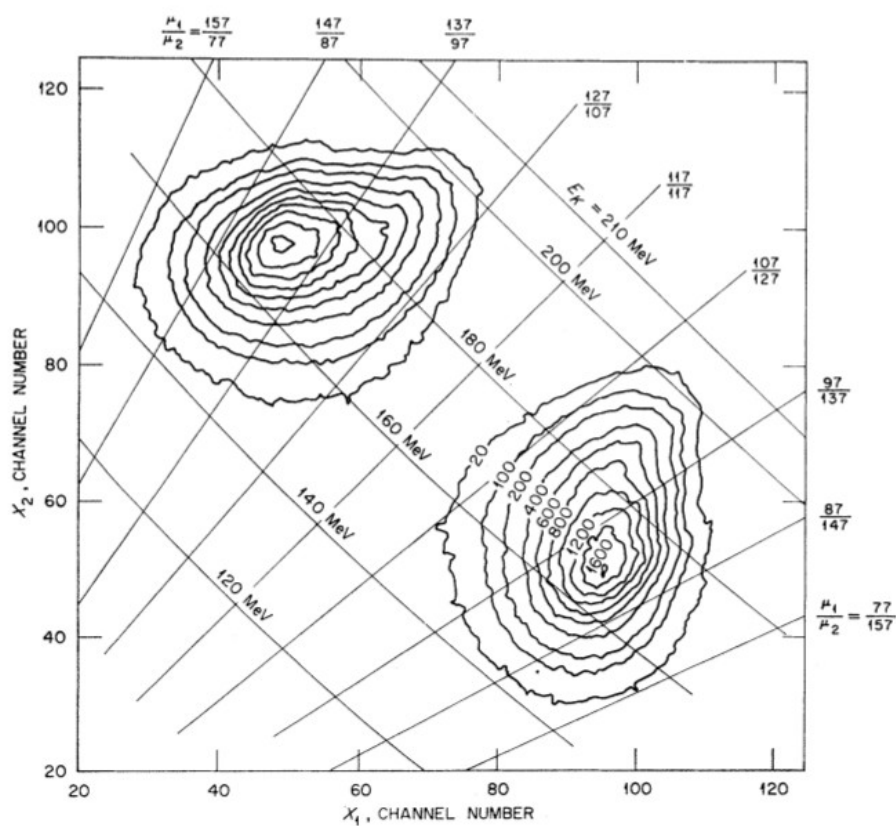


FIGURE 2.9. Figure caractéristique de la procédure de Schmitt : le taux de comptage en fonction du rapport des masses provisoires μ_1/μ_2 et de l'énergie totale E_k en MeV pour la fission thermique de ^{233}U . (extrait de [1])

2.2.5 Spectrométrie de masse suivie par une spectrométrie γ

La combinaison d'une spectrométrie de masse et d'une spectrométrie γ permet de mesurer les rendements isotopiques indépendants de produits de fission. Tout d'abord, le spectromètre de masse fournit un faisceau de produits de fission contenant seulement quelques masses. Puis, les produits de fission sont arrêtés sur un support amovible. Ils décroissent ensuite par désintégrations β^- , (β^-, n) et par transitions isomériques, en émettant des rayonnements γ à des énergies caractéristiques. Ces γ sont détectés par un dispositif de spectrométrie γ constitué de plusieurs détecteurs Ge. Ces détecteurs Ge ont une excellente résolution en énergie de quelques keV, ce qui permet de séparer les nombreuses raies γ . Cela n'était pas possible avec les scintillateurs, qui ont une bien moins bonne résolution comme le montre la figure 2.10.

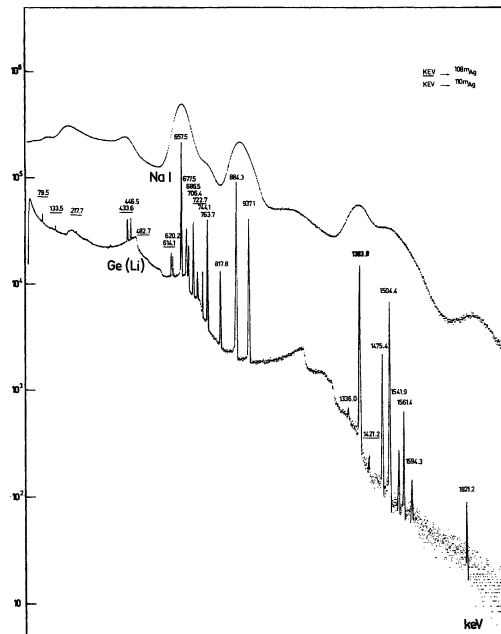


FIGURE 2.10. Spectre γ mesuré avec un scintillateur Na(I) (courbe du haut) et un détecteur germanium (courbe du bas) (extrait de [60]). La source est constituée d' ^{108m}Ag et d' ^{110m}Ag . L'axe des abscisses est en keV. L'axe des ordonnées en nombre de coups.

Cette méthode a été mise en place par Jean Galy auprès du séparateur en ligne d'isotopes OSIRIS à Studsvik, pour mesurer les rendements isotopiques des produits de la fission de ^{233}U induite par neutrons rapides [61]. Cette méthode a aussi été mise en place auprès du spectromètre Lohengrin de l'Institut Laue Langevin, par Adeline Bail, afin de mesurer les rendements isotopiques de plusieurs produits de fission du pic lourd de la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ [62, 63].

Cette méthode est la seule qui permet d'obtenir des rendements indépendants isotopiques du pic lourd. Cependant les isotopes mesurés doivent répondre à deux critères. Tout d'abord, les données nucléaires relatives à cet isotope, comme l'intensité γ ou les rapports d'embranchement, doivent être connus. Ensuite, il doit être radioactif avec un temps de demi-vie ne

dépassant pas quelques heures.

2.3 L'évaluation des grandeurs physiques relatives aux rendements de fission

2.3.1 Les trois principales bibliothèques : JEFF, ENDF/B et JENDL

Les trois principales bibliothèques sont européenne JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion File project), américaine ENDF/B (Evaluated Nuclear Data File) et japonaise JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library). Ce sont des bases de données nucléaires, construites pour alimenter les codes de simulation. Elles sont écrites au format ASCII suivant des conventions partagées au niveau international (ENDF-6). Ces évaluations ont été réalisées en se basant sur des mesures et des modèles dans le but d'obtenir des données nucléaires précises et complètes dans le cadre des applications.

JEFF [64] et les deux autres bibliothèques présentent les rendements indépendants et cumulés avec leur erreur. Pour être évalué dans JEFF, un système fissionnant doit contribuer au minimum à 0.1% au taux de fission dans les applications et plus la contribution est grande plus la précision requise sur les rendements augmente. L'évaluation des rendements dans JEFF est réalisée à partir de deux types de données expérimentales : les rendements absolus, qui sont exprimés en nucléides produits par fission, et les rendements relatifs, qui sont exprimés en fonction du rendement d'un deuxième nucléide. À chaque mesure, une erreur doit être associée, qui dépend principalement de la méthode expérimentale. Par exemple, pour les mesures par spectrométrie de masse, l'erreur utilisée est celle citée par l'auteur si elle est supérieure à 1%, sinon elle est fixée à 1%. La moyenne des différentes mesures est pondérée par l'inverse de la variance. À partir du test du χ^2 , il est possible d'estimer la probabilité qu'a une mesure d'être cohérente. Après vérification des cas les plus extrêmes (probabilité inférieure à 1%), une procédure automatique est appliquée pour augmenter les erreurs et donc diminuer le poids des mesures trop éloignées de la moyenne ("the automatic down-weighting procedure"). À cette étape, les modèles entrent en jeu pour compléter les données manquantes. D'une part, les rendements en masse $Y(A)$ peuvent être approchés par la somme de plusieurs gaussiennes. D'autre part, les rendements indépendants fractionnels peuvent être estimés avec le modèle Z_p , décrit par Wahl qui est plus amplement détaillé au paragraphe suivant. La dernière étape consiste en l'ajustement des données pour qu'elles satisfassent les lois de conservations en masse et en charge.

La dernière version de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.1 pour les rendements de fission varie peu de la précédente version ENDF/B-VII.0 (à l'exception de la fission du ^{239}Pu par des neutrons de 14 MeV) [65], qui elle-même est tirée de ENDF/B-VI.8 sans aucun changement ([66], p. 3003). À la différence de l'évaluation des rendements de fission dans JEFF, la première étape consiste à évaluer les rendements via les modèles puis de fusionner ces données avec les mesures [67].

L'évaluation japonaise des rendements de fission JENDL/FPY-2011 (FPY : "Fission Product Yield data") est basée sur l'évaluation américaine ENDF/B-VI avec quelques modifications pour être cohérente avec sa bibliothèque de décroissances radioactives JENDL/FPD-2011 (FPD : "Fission Product Decay data"). Par exemple, certains noyaux présents dans la bibliothèque japonaise de décroissances n'apparaissent pas dans ENDF/B-VI, leur

rendements ont donc été calculés à partir d'un modèle ([68], p. 48).

2.3.2 Le modèle de Wahl, un modèle empirique

En 1988, Arthur C. Wahl [69] propose deux modèles empiriques Z_p et A'_p qui décrivent respectivement la dispersion de la charge nucléaire pour une masse donnée et la dispersion de la masse pour une charge nucléaire donnée. Les modèles empiriques sont basés sur des mesures expérimentales et les données caractéristiques des distributions de rendements de fission deviennent les paramètres de ces modèles, déterminés par la méthode des moindres carrés. Le principal avantage de ce type de modèle est d'estimer des données qui n'ont pu être mesurées et de leur associer une erreur.

2.3.2.1 Le modèle Z_p pour les rendements indépendants fractionnaires

Il s'agit du plus simple des deux modèles. La dispersion de la charge nucléaire, exprimée sous la forme de rendements indépendants fractionnaires de fission FI (Fractional Independent yields) : $FI(A, Z) = Y(A, Z)/Y(A)$, est décrite par une loi normale de moyenne $Z_p(A)$ et d'écart-type $\sigma_Z(A)$. Cette loi normale est modulée par les effets pairs-impairs des protons et des neutrons.

Dans un premier temps, les paramètres du modèle sont calculés pour le pic lourd car sa position tant pour la charge nucléaire que pour la masse varie peu avec le système fissionnant (A_F, Z_F). Dans un deuxième temps, les paramètres sont déterminés pour le pic léger grâce aux relations de conservation de la masse (eq. 2.8) et de la charge nucléaire (eq. 2.9). Les indices H ("Heavy") et L ("Light") indiquent qu'il s'agit respectivement du fragment lourd et du fragment léger. L'exposant prime fait référence aux noyaux pré-neutrons prompts. Durant la fission, le rapport entre charge nucléaire et masse (Z_F/A_F) varie peu ce qui permet de définir la charge moyenne Z_p pour une masse A' donnée à partir de la charge $Z_{UCD} = A'(Z_F/A_F)$ ("Unchanged Charge Density" ou Conservation de la densité de charge) (eq. 2.10 et 2.11). Le rendement indépendant fractionnaire de fission $FI(A, Z)$ est défini dans l'équation 2.12 avec $Z_p(A)$ la charge nucléaire moyenne, $\sigma_Z(A)$ l'écart-type, $F(A)$ le coefficient de correction des effets pair-impair (tab. 2.2 avec $\overline{F_Z}$ et $\overline{F_N}$ les facteurs correctifs pour les protons et les neutrons respectivement) et $N(A)$ le coefficient de normalisation. $N(A)$ permet de s'assurer que $\sum_Z FI(A, Z) = 1$. $N(A)$ intervient car les propriétés intrinsèques de normalisation de la distribution normale ont été perdues avec l'application des corrections des effets pair-impair.

$$A_F = A'_H + A'_L \quad (\text{conservation de la masse}) \quad (2.8)$$

$$Z_F = Z_H + Z_L \quad (\text{conservation de la charge nucléaire}) \quad (2.9)$$

$$Z_p(A_H) = A'_H(Z_F/A_F) + \Delta Z(A'_H) \quad (2.10)$$

$$Z_p(A_L) = A'_L(Z_F/A_F) - \Delta Z(A'_{H_C}) \quad (A'_{H_C} = A_F - A'_L) \quad (2.11)$$

$$FI(A, Z) = F(A) N(A) \int_{Z(A)-0.5}^{Z(A)+0.5} \frac{1}{\sigma_Z(A)\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(z - Z_p(A))^2}{2\sigma_Z^2(A)}\right] dz \quad (2.12)$$

2.3. L'évaluation des grandeurs physiques relatives aux rendements de fission 49

TABLE 2.2: *Le coefficient de correction des effets pair-impair $F(A)$*

protons Z	neutrons N	F(A)
pair	pair	$\overline{F_Z F_N}$
pair	impair	$\overline{F_Z}/\overline{F_N}$
impair	pair	$\overline{F_N}/\overline{F_Z}$
impair	impair	$1/(\overline{F_Z F_N})$
proche de la symétrie		1.00

2.3.2.2 Le modèle A_p pour les rendements indépendants

Ce modèle est similaire au précédent par de nombreux aspects. La dispersion en masse est décrite par une loi normale de moyenne $A'_p(Z)$ et d'écart-type $\sigma_{A'}(Z)$, modulée par les effets de parité avec le facteur correctif pour les neutrons uniquement $F_N(Z)$. Si le nombre de neutrons est pair, $F_N(Z) = \overline{F_N}$; si le nombre de neutrons est impair, $F_N(Z) = 1/\overline{F_N}$.

À la différence du modèle Z_p , ce n'est pas le rendement indépendant fractionnaire de fission $FI(A, Z) = Y(A, Z)/Y(A)$ qui est étudié mais le rendement indépendant $Y(A, Z)$ (eq. 2.13). Cela implique l'apparition d'un nouveau facteur, le rendement indépendant de la charge nucléaire Z : $Y(Z) = \sum_A Y(A, Z)$.

Comme précédemment, la définition de la valeur moyenne de la distribution fait intervenir la conservation de la densité de charge Z_F/A_F . La valeur moyenne est calculée pour les noyaux lourds (indice H pour "Heavy") puis pour les noyaux légers (indice L pour "Light"). Le domaine d'intégration prend en compte la différence entre le nombre moyen de neutrons prompts $\bar{\nu}(A)$ émis à la charge A et celui émis à la charge $A - 1$. Enfin $N(Z)$ est le facteur de normalisation, qui permet de s'assurer que $Y(Z_L) = Y(Z_H)$ si les charges sont complémentaires ($Z_F = Z_L + Z_H$).

$$Y(A, Z) = Y(Z)F_N(Z)N(Z) \int_{A'(Z)-0.5-\delta}^{A'(Z)+0.5+\delta} \frac{1}{\sigma_{A'}(Z)\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(a - A_p(Z))^2}{2\sigma_{A'}^2(Z)}\right) da \quad (2.13)$$

$$\text{avec } \delta = [\bar{\nu}(A) - \bar{\nu}(A - 1)]/2 \quad (2.14)$$

$$A'_p(Z_H) = Z_H(A_F/Z_F) + \Delta A'(Z_H) \quad (2.15)$$

$$A'_p(Z_L) = Z_H(A_F/Z_F) - \Delta A'(Z_{H_C}) \quad (Z_{H_C} = Z_F - Z_L) \quad (2.16)$$

2.3.3 Le code GEF (“a GEneral Fission model”)

Le code GEF est développé par K.-H. Schmidt et Béatriz Jurado au CENBG (Centre d’Études Nucléaires de Bordeaux Gradignan). Il simule le processus de fission pour des systèmes allant du polonium ($Z=84$) au rutherfordium ($Z=104$), afin de calculer des observables caractéristiques comme les rendements de fission avant et après l’émission des neutrons prompts [70]. Le modèle du code GEF diffère d’un modèle purement empirique, comme celui de Wahl (§ 2.3.2), en incluant de nombreuses considérations physiques dans le but d’améliorer les prédictions sur des systèmes fissionnants peu connus.

Trois à quatre chemins de fission, ou modes de fission pour reprendre la terminologie de Brosa (cf. § 2.1.8), sont considérés. La probabilité associée à chacun de ces chemins est déterminée en intégrant les densités de niveaux jusqu’à l’énergie disponible au point selle. Après ces calculs théoriques, il reste vingt paramètres à ajuster sur les données expérimentales. Ces paramètres sont communs à l’ensemble des systèmes fissionnants.

2.4 Comparaison des différentes données évaluées, expérimentales et calculées avec le code GEF

Dans ce chapitre, nous avons décrit les différents types de données fournissant des rendements de fission ; nous allons à présent comparer leurs valeurs. Tout d’abord, nous nous intéresserons aux évaluations, puis aux données mesurées et enfin aux résultats des calculs du code GEF.

2.4.1 Comparaison des données évaluées

Les figures 2.11 et 2.12 présentent les rendements en masse des produits de fission de l’ ^{233}U et du ^{241}Pu , fournis par les bibliothèques d’évaluations européenne JEFF-3.1.1, américaine ENDF/B-VII.0 et japonaise JENDL-4.0.

Pour obtenir le rendement de la masse A , les rendements isotopiques relatifs à cette masse ont été sommés :

$$Y(A) = \sum_i Y(A, Z_i),$$

et la formule, qui en découle, pour calculer la variance, c’est-à-dire le carré de l’écart-type, est la suivante :

$$\text{var}[Y(A)] = \sum_i \text{var}[Y(A, Z_i)] + 2 \sum_i \sum_{j < i} \text{cov}[Y(A, Z_i), Y(A, Z_j)].$$

Ces bibliothèques ne fournissent cependant aucune matrice de corrélation pour les rendements isotopiques des produits de fission $Y(A, Z)$, ce qui nous conduit à devoir faire une hypothèse : nous supposons que ces rendements sont indépendants. Ainsi la variance de $Y(A)$

est égale à la somme quadratique des incertitudes :

$$\text{var} [Y(A)] = \sum_i \text{var} [Y(A, Z_i)] = \sum_i \sigma_{Y(A, Z_i)}^2.$$

Ces corrélations sont difficiles à prédire. C'est la raison pour laquelle un des objectifs de ce travail sera d'évaluer les corrélations expérimentales entre les différents points de mesure.

Sur la figure 2.11, les rendements des bibliothèques américaine et japonaise se superposent (excepté pour la masse 100 de l' ^{233}U). Cela est dû au fait que la bibliothèque japonaise reprend les rendements de la bibliothèque américaine en y apportant les modifications nécessaires pour rester cohérent avec sa bibliothèque de décroissances radioactives [68]. Ainsi la comparaison peut se limiter aux bibliothèques américaine et européenne.

Celles-ci présentent un accord satisfaisant sur les rendements du pic léger de l' ^{233}U . Au niveau du pic lourd, des disparités apparaissent, elles sont particulièrement visibles pour les masses 130, 135, 136 et 137.

Sur la figure 2.12, les rendements du ^{241}Pu des deux bibliothèques présentent des différences notables pour l'ensemble des masses. Il ne s'agit pas d'une structure en particulier.

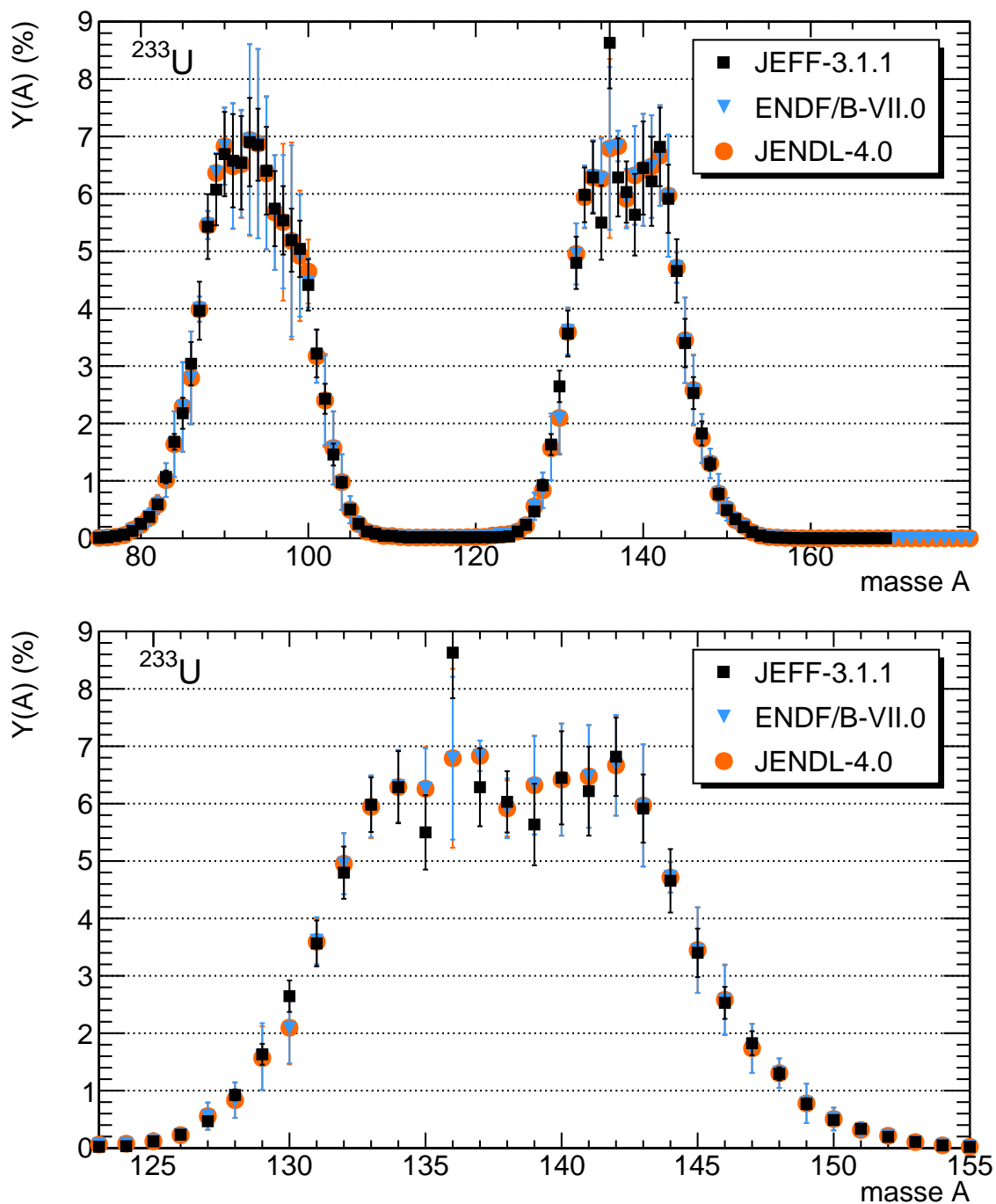


FIGURE 2.11. Les rendements en masse des produits de fission de ^{233}U fournis par les bibliothèques JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.0 et JENDL-4.0.

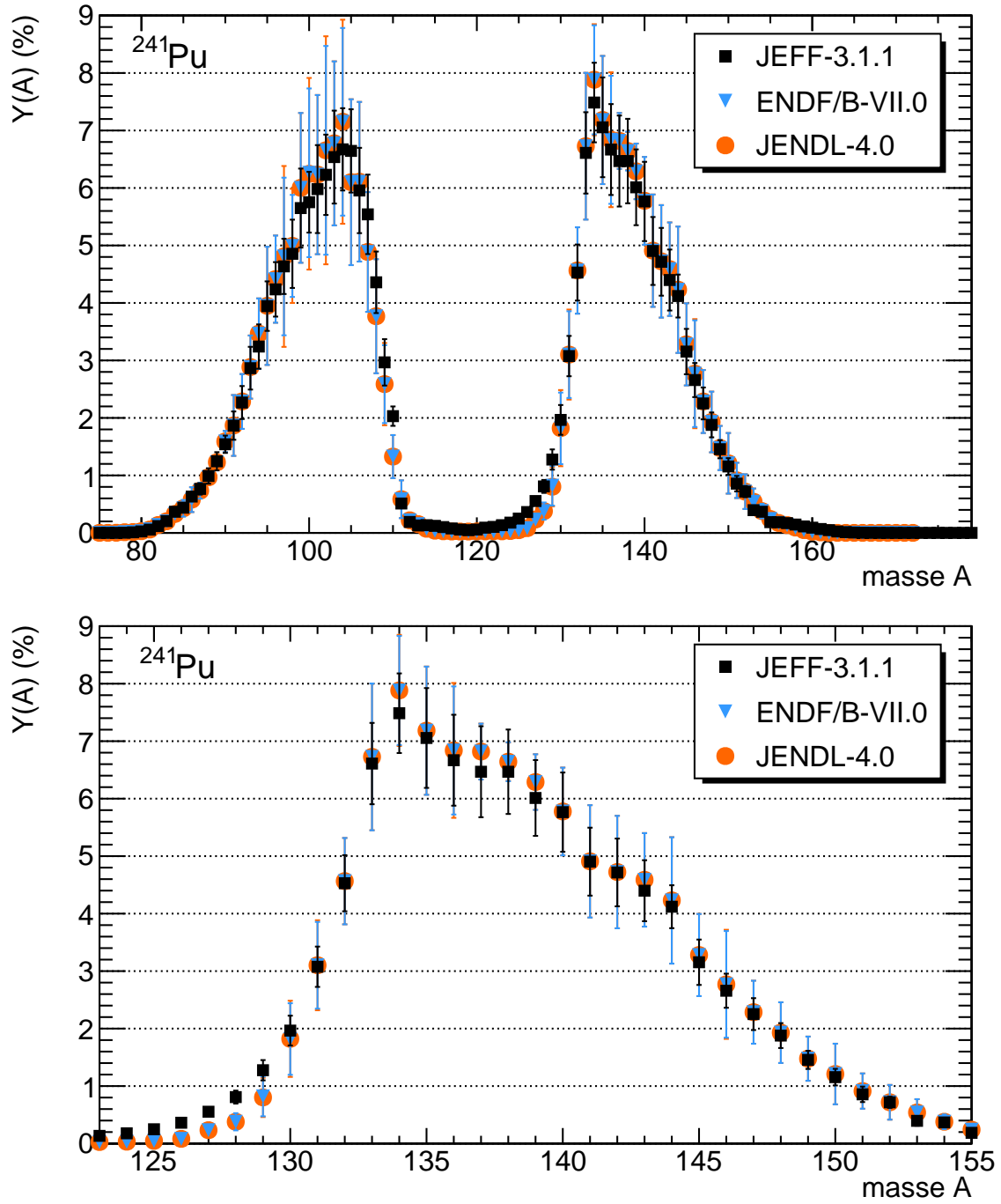


FIGURE 2.12. Les rendements en masse des produits de fission de ^{241}U fournis par les bibliothèques JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.0 et JENDL-4.0.

2.4.2 Comparaison des données mesurées

Dans la bibliothèque EXFOR, la majorité des rendements sont des rendements isotopiques cumulés qui ont été obtenus par radiochimie. Ces rendements cumulés de l'isotope de fin de chaîne sont comparables à des rendements en masse.

Les figures 2.13 et 2.14, présentent les rendements en masse de ^{233}U et ^{241}Pu mesurés comparés à la bibliothèque européenne JEFF-3.1.1. Les données mesurées présentées ici sont exclusivement issues de la bibliothèque EXFOR.

Sur la figure 2.13, comme pour les bibliothèques d'évaluations entre elles, les mesures sur le pic léger de ^{233}U ont des valeurs proches. Sur le pic lourd, les données existantes sont très peu nombreuses et uniquement issues des mesures par radiochimie. De plus, ces mesures présentent de grands écarts avec l'évaluation européenne.

Sur la figure 2.14, les rendements de fission du ^{241}Pu présentent des différences sur l'ensemble des masses, entre mesures et évaluation ainsi qu'entre les différentes mesures. En particulier sur le pic lourd, il existe quatre séries de données mesurées par H. Farrar et al., F.L. Lisman et al., S. A. Chitambar et al. ainsi qu'A. Bail et al. . Les trois premières séries, dont la plus récente date de 1973, sont des mesures par radiochimies. Les mesures d'A. Bail et al. ont été effectuées avec le spectromètre Lohengrin, cependant lors de ces expériences, les cibles utilisées ont présentées d'importants problèmes. C'est la raison pour laquelle, ces rendements sont à nouveau mesurés et présentés dans ce document.

Il existe quelques données de rendements isotopiques indépendants de ^{233}U et du ^{241}Pu , cependant la majorité correspondent au pic léger. U. Quade et al. ont mesurés les rendements isotopiques du pic léger de ^{233}U de la masse 79 à la masse 106. P. Schillebeeckx et al. ont déterminés les rendements isotopiques du pic léger du ^{241}Pu de la masse 87 à la masse 109.

La plupart des données expérimentales de rendements isotopiques indépendants du pic lourd, proviennent des mesures de R. Brissot et al. qui ont déterminé les distributions isotopiques des gaz rares et de leurs précurseurs pour les noyaux suivants : ^{233}U , ^{235}U , le ^{239}Pu et le ^{241}Pu . Ces travaux ont permis de déterminer les rendements isotopiques indépendants du ^{36}Kr (masse 87 à 93) et ^{35}Br (masse 87 à 90) pour le pic léger ainsi que ceux du ^{54}Xe (masse 137 à 142) et de ^{53}I (masse 137 à 139).

Pour ^{233}U , les autres données de rendements indépendants sont des rendements relatifs. En général, ils sont relatifs à un autre noyau ou au rendement de la masse.

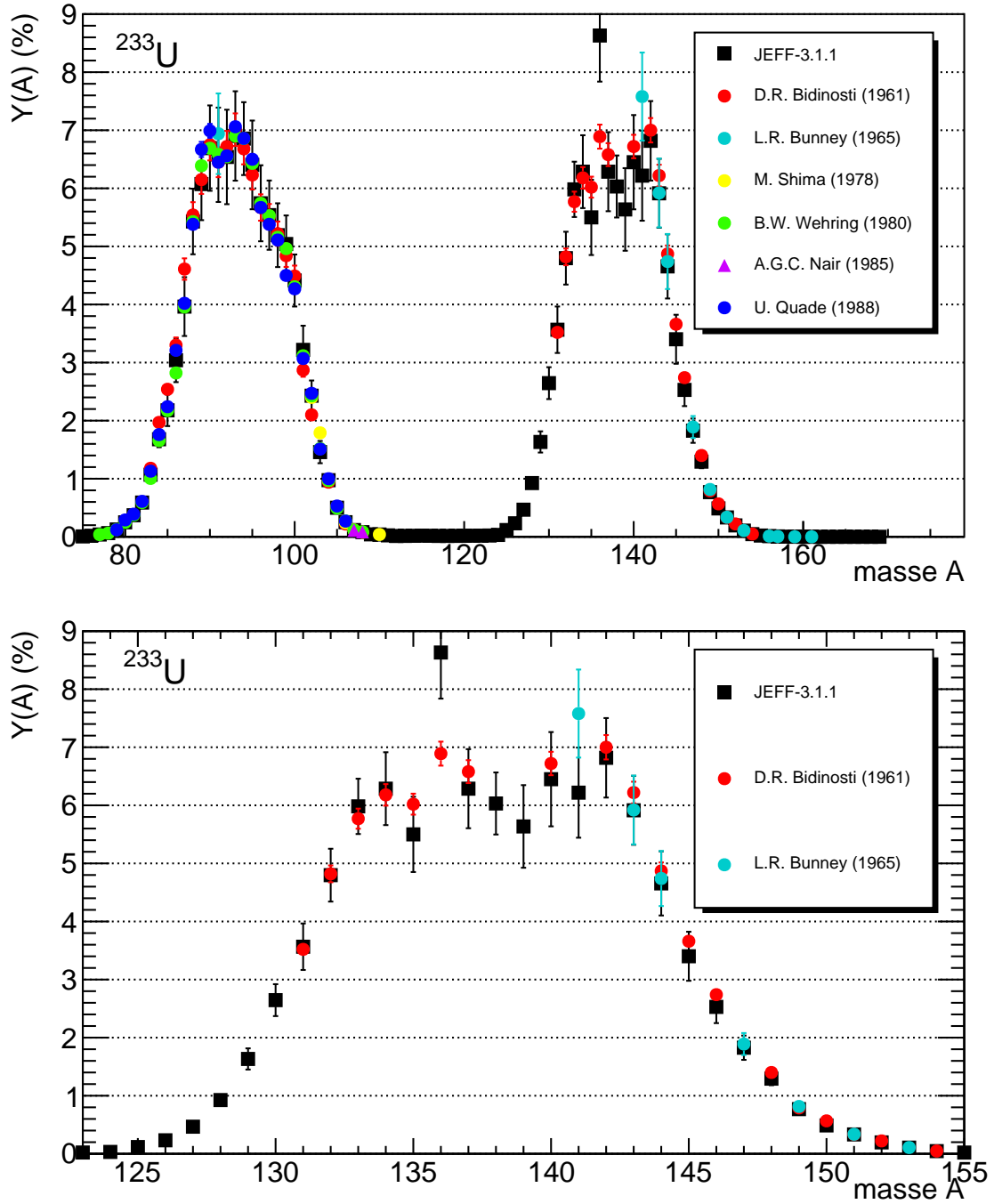


FIGURE 2.13. Les rendements en masse expérimentaux comparés à ceux fournis par la bibliothèque JEFF-3.1.1 des produits de fission de $l^{233}\text{U}$.

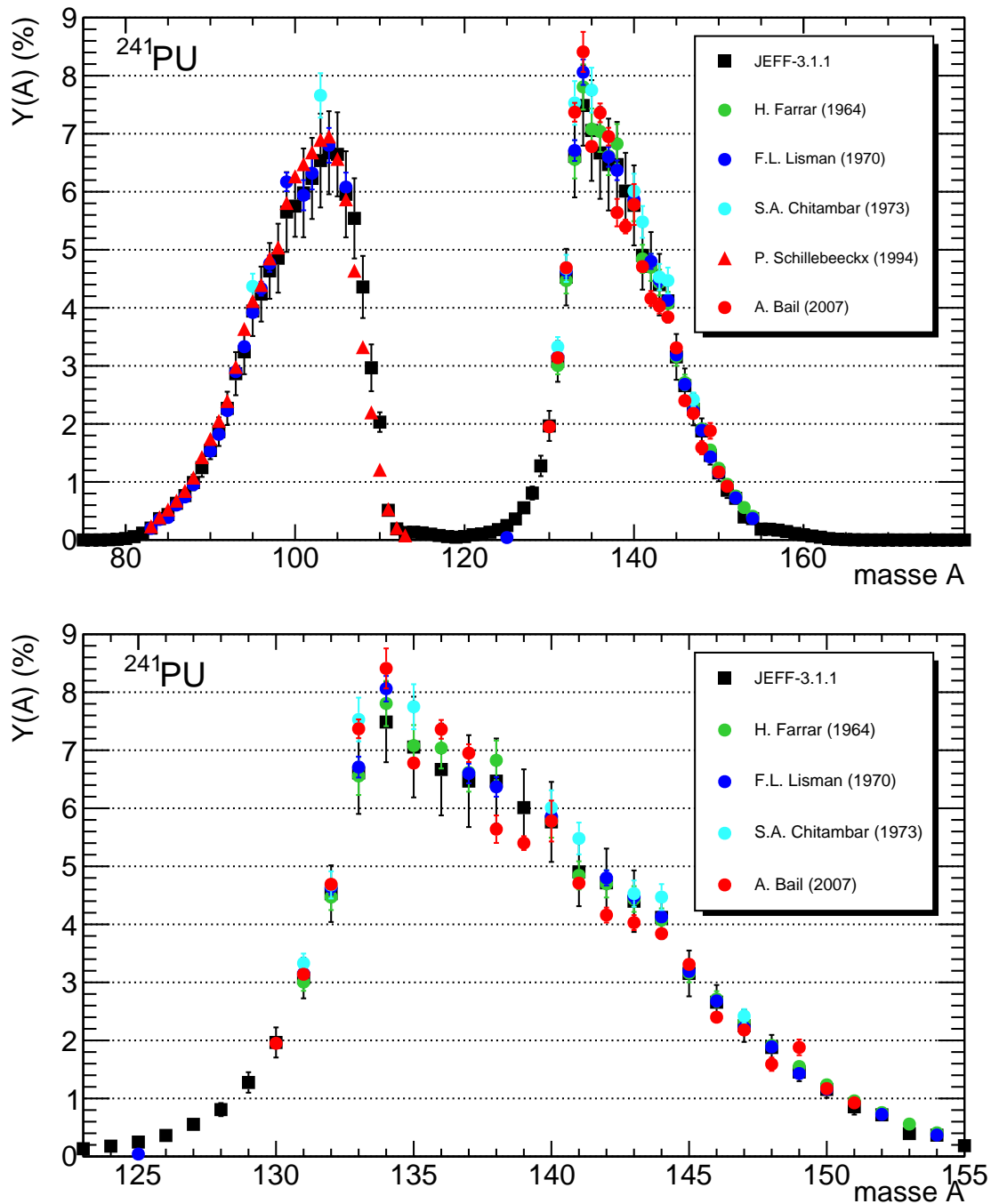


FIGURE 2.14. Les rendements en masse expérimentaux comparés à ceux fournis par la bibliothèque JEFF-3.1.1 des produits de fission du ^{241}Pu .

2.4.3 Comparaison des évaluations aux données calculées par le code GEF

Les figures 2.15, 2.16, 2.17 et 2.18 présentent les rendements en masse des produits de fission calculés avec le code GEF version 2013/1.7 et ceux provenant des bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Ces rendements en masse correspondent aux quatre réactions suivantes : $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$, $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$.

Les calculs de GEF reproduisent la forme globale des rendements en masse, mais avec localement des différences importantes avec les bibliothèques d'évaluations.

Pour $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ et $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$, les calculs de GEF sont translatés d'environ une unité de masse pour le pic léger et le pic lourd par rapport aux évaluations (fig. 2.15 et 2.16). Cette translation ne s'observe pas sur les données du plutonium.

De plus, les écarts entre le code GEF et les évaluations sont bien plus grands que les écarts entre les évaluations elles-mêmes. Pour appréhender ces écarts, la somme des différences absolues entre les rendements provenant des différentes sources a été effectuée pour les quatre réactions citées précédemment. Les résultats sont présentés dans le tableau 2.3. L'écart entre GEF et les évaluations est compris entre 15 % et 30 % ; alors que l'écart entre JEFF et ENDF est compris entre 2.2 % pour ^{235}U et 12.1 % pour ^{241}Pu .

TABLE 2.3. La somme des différences absolues des rendements en masse provenant de trois sources différentes : les deux bibliothèques d'évaluations JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0 ainsi que les calculs effectués avec le code GEF. Les rendements étant exprimés en %, leur différence absolue est aussi exprimée en %.

	^{233}U	^{235}U	^{239}Pu	^{241}Pu
$\sum_A Y_{GEF}(A) - Y_{ENDF}(A) $ (%)	29.4	21.6	15.1	19.2
$\sum_A Y_{GEF}(A) - Y_{JEFF}(A) $ (%)	30.0	21.4	16.4	20.7
$\sum_A Y_{ENDF}(A) - Y_{JEFF}(A) $ (%)	7.7	2.2	5.3	12.1

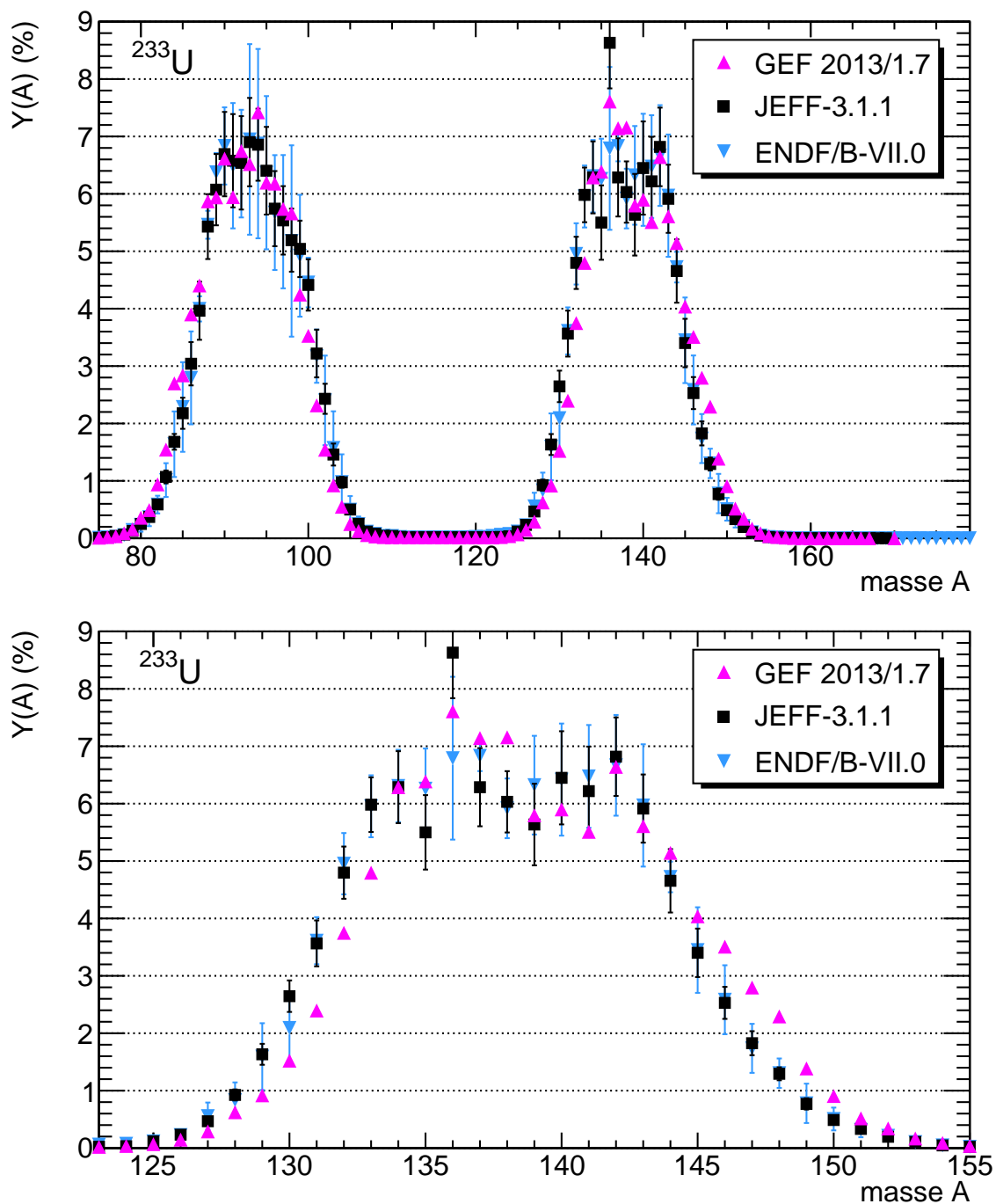


FIGURE 2.15. Les rendements en masse des produits de fission de $l^{233}\text{U}(n_{th},f)$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.

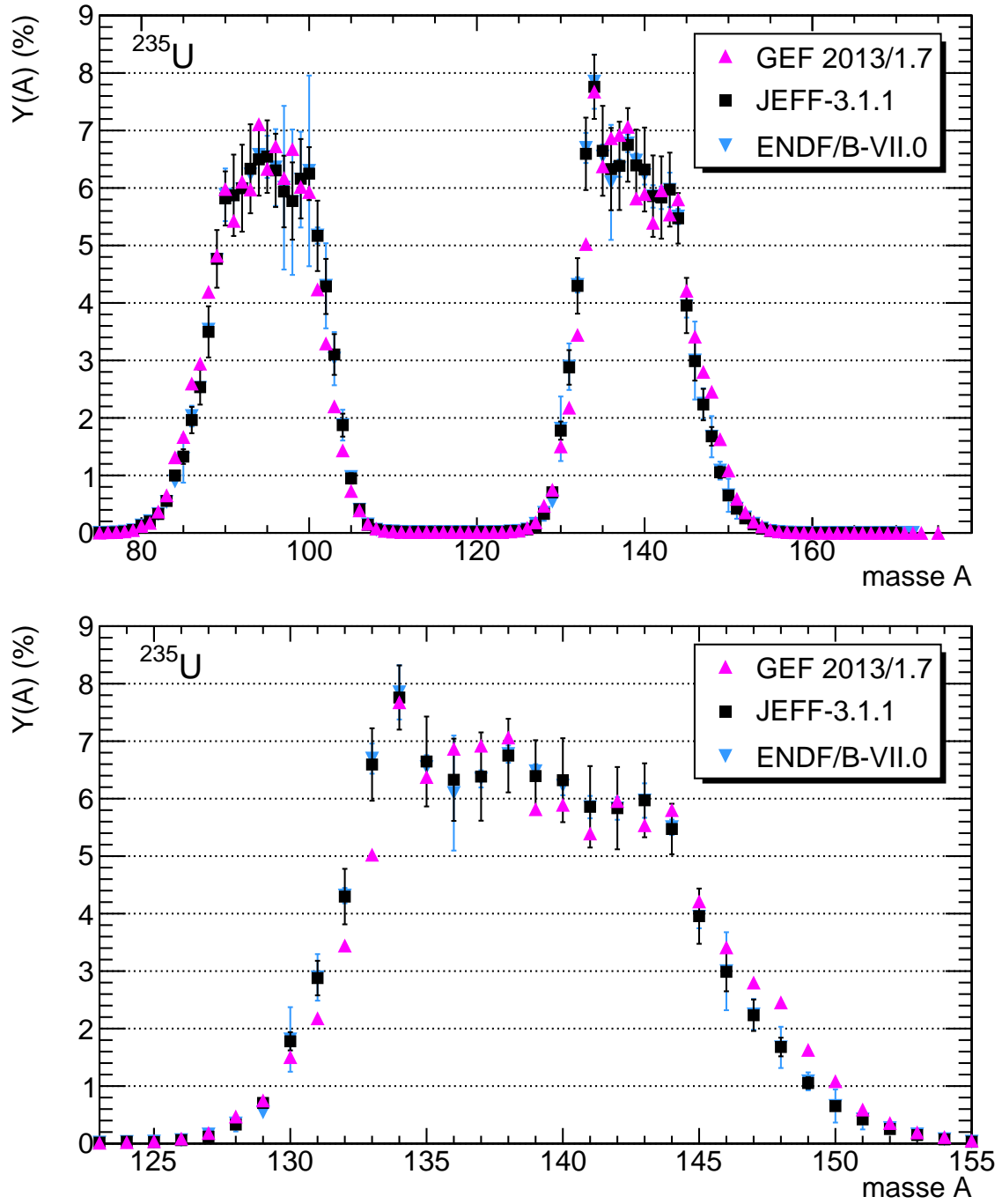


FIGURE 2.16. Les rendements en masse des produits de fission de $l^{235}\text{U}(n_{th},f)$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.

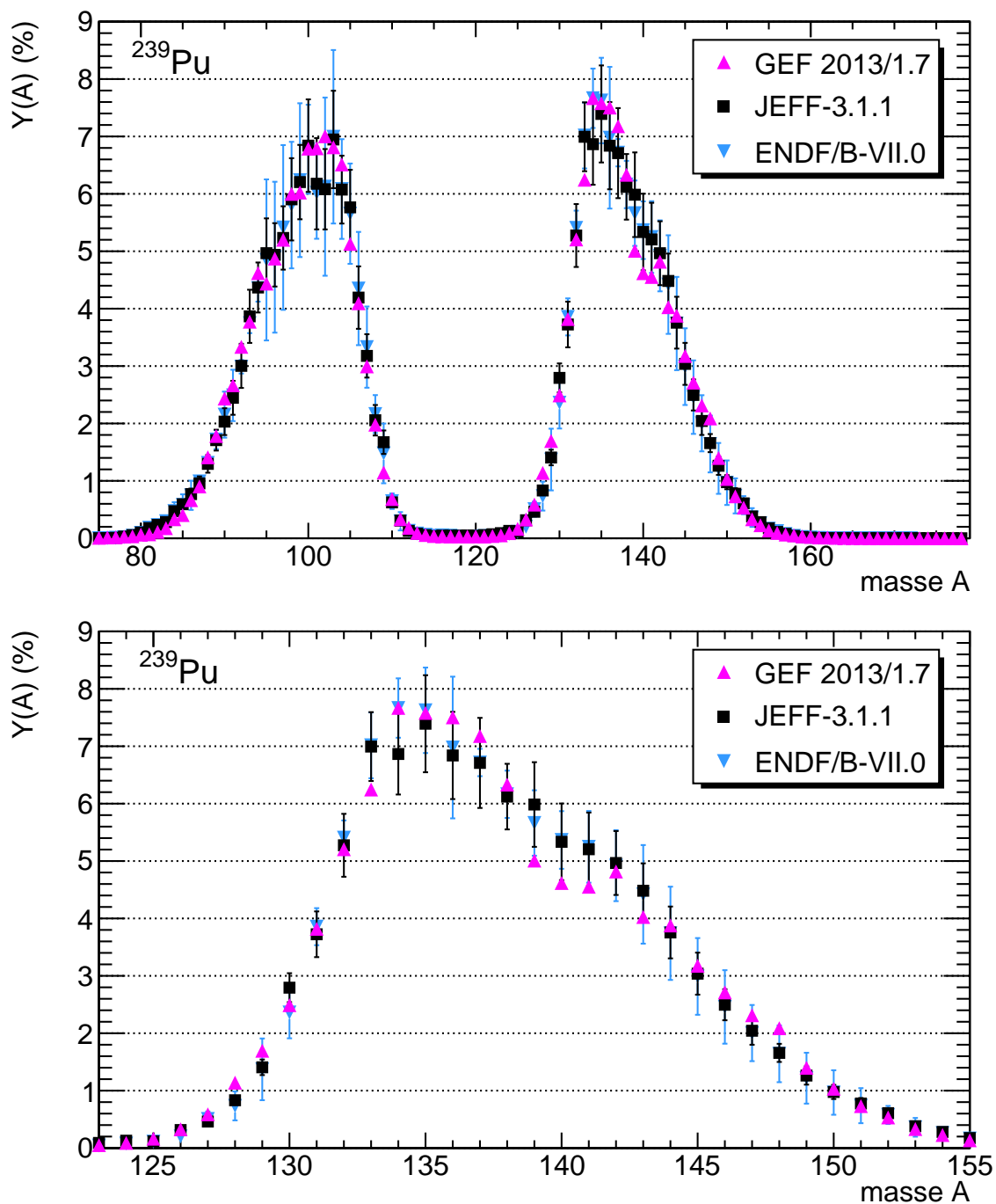


FIGURE 2.17. Les rendements en masse des produits de fission de $l^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.

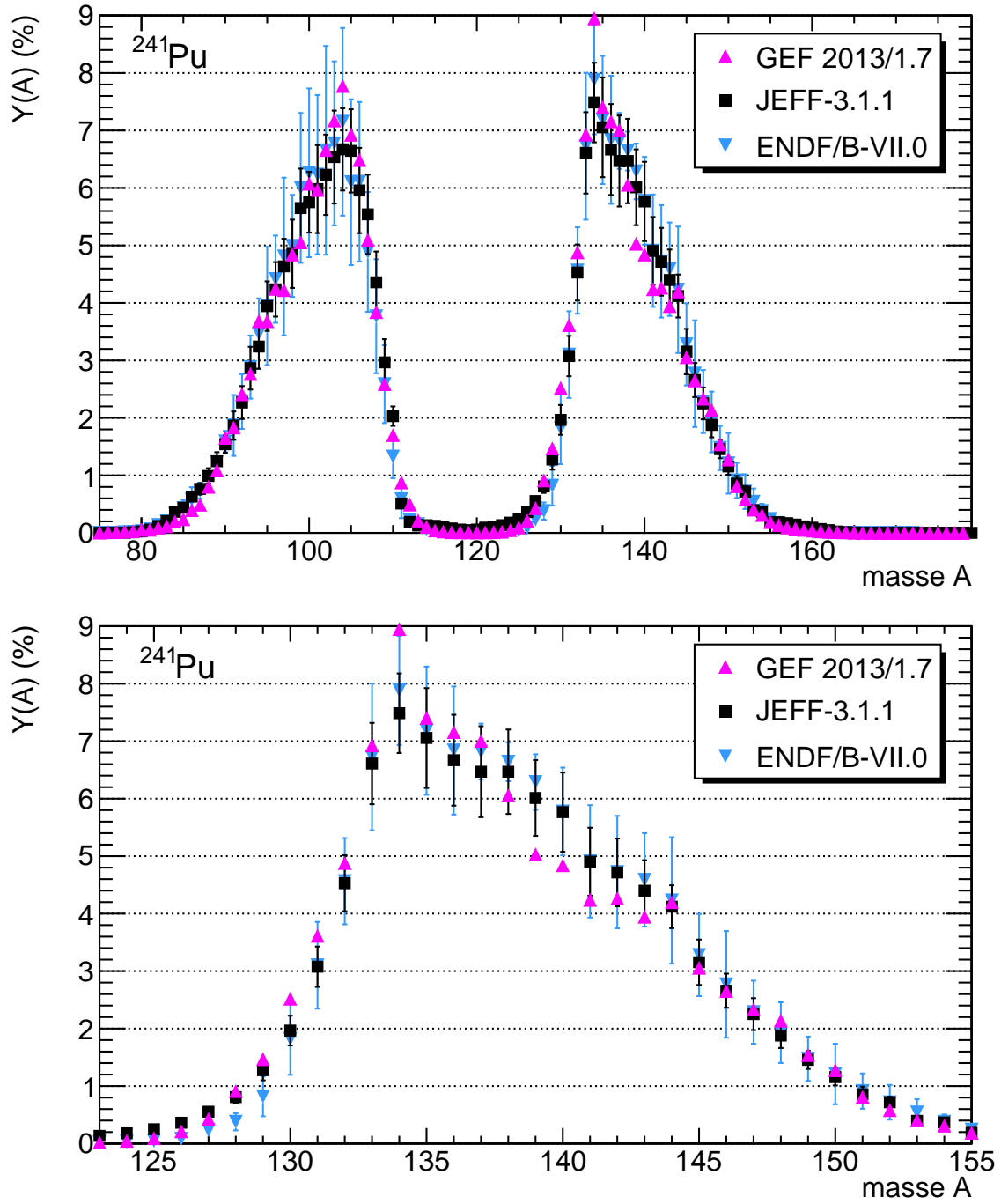


FIGURE 2.18. Les rendements en masse des produits de fission de $l^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ calculés par GEF version 2013/1.7 comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0.

2.5 Conclusion

Ce chapitre présente l'état de l'art sur les rendements de fission en général, et sur la fission de ^{233}U et ^{241}Pu , en particulier. Depuis la découverte de la fission, les physiciens ont proposés des modèles théoriques plus ou moins élaborés, qui ne permettent malheureusement pas de prédire les rendements de fission avec une précision suffisante.

En parallèle, les techniques de mesure ont évoluées depuis les années 50. On peut notamment citer les progrès qui ont été faits en spectrométrie γ avec le développement de détecteurs Ge à haute pureté.

À l'heure actuelle, les évaluations des rendements de fission présentent des disparités entre elles et avec les données expérimentales disponibles sur EXFOR, en particulier dans la région du pic lourd.

Ainsi, afin de répondre aux exigences accrues des physiciens des réacteurs, de nouvelles mesures sont donc nécessaires pour réduire les incertitudes sur ces données nucléaires évaluées. C'est pourquoi ces travaux se sont concentrés sur les mesures de rendements de fission du pic lourd de ^{233}U et du ^{241}Pu .

Le spectromètre de masse Lohengrin et les dispositifs expérimentaux associés

Sommaire

3.1	L’Institut Laue Langevin (ILL)	64
3.2	Le spectromètre de masse Lohengrin	66
3.3	Cibles d’actinides utilisées	71
3.4	Instrumentation des mesures des rendements en masse	73
3.5	Instrumentation des mesures des rendements isotopiques	76
3.5.1	Avec une chambre d’ionisation pour le pic léger	76
3.5.2	Mesures par spectrométrie gamma pour le pic lourd	77
3.6	Conclusion	80

Le spectromètre en masse Lohengrin de l’Institut Laue Langevin est opérationnel depuis mars 1974 [71]. Il constitue, au sein de l’Institut, l’instrument de référence pour l’étude de la fission [72, 62]. Il a permis de mesurer les rendements des produits de fission du pic léger pour de nombreux isotopes : ^{229}Th [73], ^{233}U [74, 75], ^{235}U [76, 77, 78, 79, 80, 75], ^{238}Np [81, 82], ^{239}Pu [83], ^{241}Pu , $^{242m,g}\text{Am}$ [84], ^{245}Cm [85, 86, 87], ^{249}Cf [88, 89] et ^{251}Cf [90].

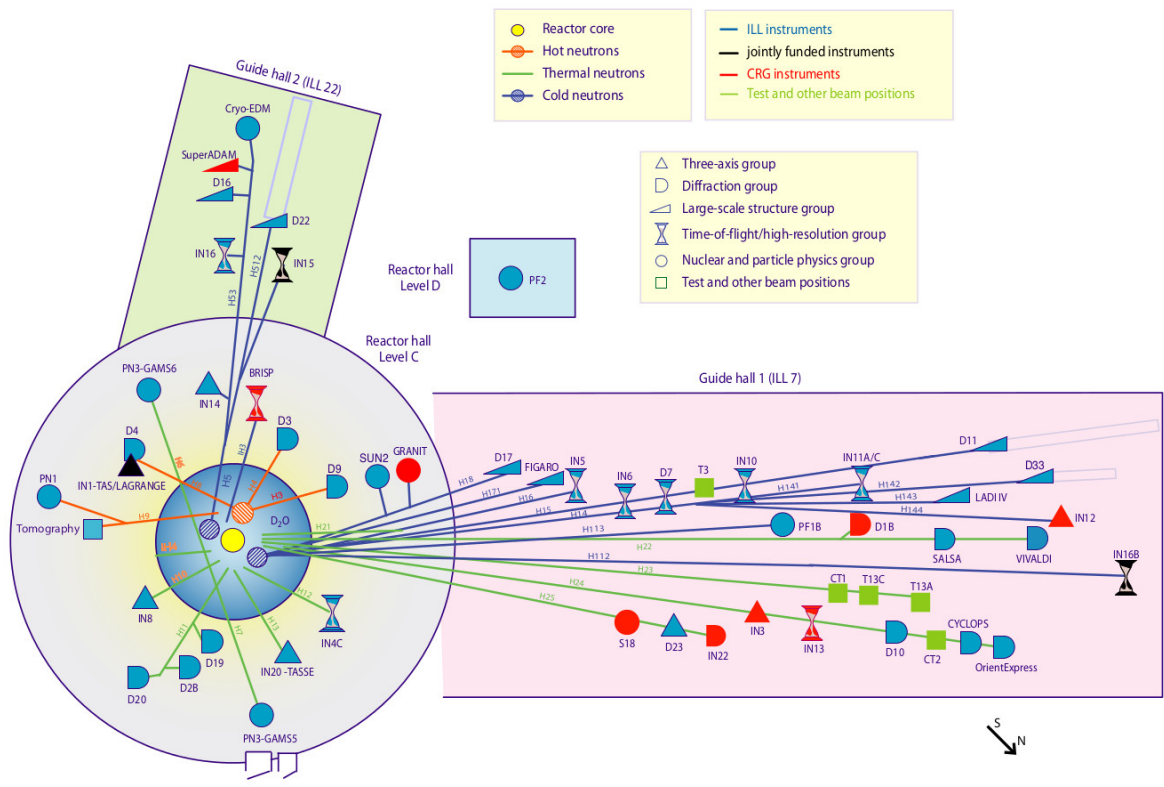
Les rendements des produits de fission du pic lourd n’ont été explorés que récemment sur le spectromètre Lohengrin avec la thèse d’A. Bail [62, 63] pour les actinides suivants : ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu . En 2010, de nouvelles campagnes de mesures ont démarré afin de mesurer les rendements de l’ ^{233}U et du ^{241}Pu (ce travail est présenté dans ce manuscrit). En 2011, la mesure des rendements de l’ $^{242m,g}\text{Am}$ a débuté dans le cadre de la thèse de C. Amouroux [91].

Après une présentation générale de l’Institut Laue Langevin (§ 3.1), nous nous intéresserons au fonctionnement et aux principales caractéristiques du spectromètre Lohengrin (§ 3.2). Nous décrirons ensuite les cibles d’actinides qui ont été utilisées, pour assurer la production des produits de fission (§ 3.3). Enfin nous présenterons les deux dispositifs expérimentaux, chambre d’ionisation et détecteurs germanium, qui ont été associés au spectromètre Lohengrin afin de mesurer les rendements en masse (§ 3.4) et isotopiques (§ 3.5) des produits de fission.

3.1 L’Institut Laue Langevin (ILL)

L’Institut Laue-Langevin (ILL) est un centre de recherche international, qui a été fondé en 1967 à Grenoble. Il dispose d’un réacteur à haut flux, qui alimente en neutrons une quarantaine d’instruments [92]. Ces derniers permettent d’explorer la matière dans de nombreux domaines comme la biologie, la chimie, la physique nucléaire, la science des matériaux... Certains instruments, comme le spectromètre Lohengrin (PN1 sur la figure 3.1), sont positionnés au plus près du cœur du réacteur (rond jaune). Les autres sont placés à l’extrémité de guides de neutrons dans des bâtiments (“Guide hall 1” et “Guide hall 2”) jouxtant le bâtiment réacteur (“Reactor Hall”).

Les performances de ces instruments reposent sur le plus intense flux continu de neutrons thermiques dans le monde. Ce flux atteint dans le modérateur 1.5×10^{15} neutrons par cm^2 et par seconde. Il est produit par le cœur du réacteur, qui est constitué d’un élément combustible unique très enrichi, contenant 8.6 kg d’uranium ^{235}U (teneur en $\text{UAl}_3 = 93\%$) [93, 94]. Le réacteur a une puissance d’environ 58 MW, qui est évacuée grâce à un circuit d’eau lourde. Cette dernière constitue également un excellent modérateur (élément qui ralentit la vitesse des neutrons), car l’eau lourde absorbe moins les neutrons que l’eau légère. Le réacteur est piloté, grâce à une barre qui absorbe les neutrons. Durant un cycle, cette barre est extraite pour compenser la perte en ^{235}U . Le réacteur peut ainsi fonctionner pendant 50 jours consécutifs. Ces périodes de fonctionnement sont alternées avec des périodes d’arrêt durant lesquelles le combustible est changé. S’il n’y a pas de travaux particuliers, une année comporte quatre cycles, soit 200 jours. Le démarrage du réacteur se fait à très bas flux grâce à une source de neutrons Sb-Be. Tant qu’il est bas, le flux est suivi par la chaîne de démarrage. Cette chaîne est ensuite reculée pour sa protection et la conduite du réacteur se fait par la puissance thermique évacuée. Après quelques jours de fonctionnement, les produits de fission majoritaires sont à l’équilibre et la puissance thermique permet de déduire facilement le flux. Ce dernier est par ailleurs surveillé grâce à des chambres à fission.



©2012, Institut Laue-Langevin

FIGURE 3.1. Plan des instruments de l'ILL (extrait de [92]). Le rond jaune représente le coeur du réacteur

3.2 Le spectromètre de masse Lohengrin

Le spectromètre de masse Lohengrin (fig. 3.2) est situé sur la plateforme expérimentale PN1 dans le hall C du réacteur. Il permet de séparer les produits de fission suivant leur masse A , leur énergie cinétique E et leur charge ionique q , grâce à la combinaison d'un champ magnétique et d'un champ électrique. Il est associé avec une chambre d'ionisation, pour mesurer les rendements en masse. Il est combiné avec des détecteurs germanium pour déterminer les rendements isotopiques.

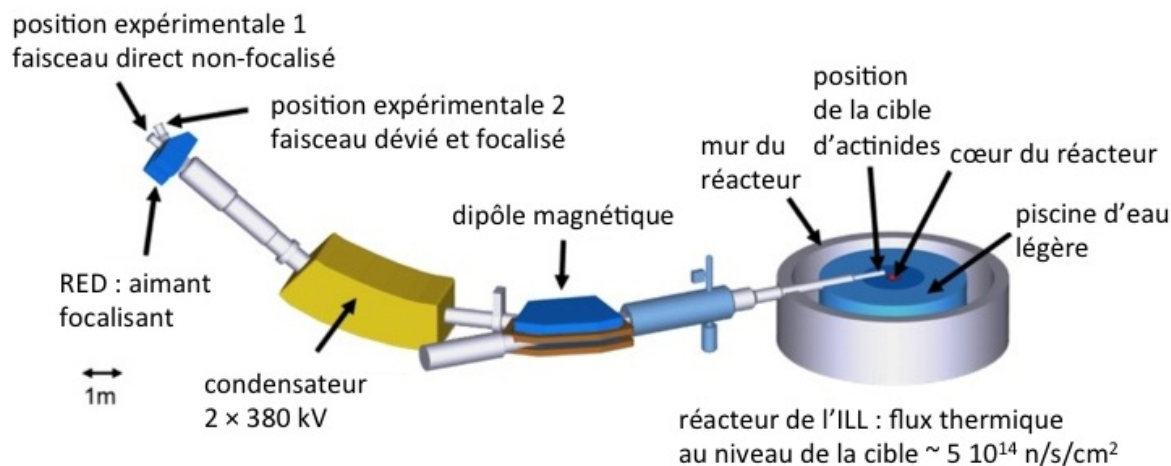


FIGURE 3.2: Schéma du spectromètre Lohengrin

Le spectromètre Lohengrin dispose d'un chariot automatique, qui amène une cible d'actinides fissiles (§ 3.3) près du cœur du réacteur. La cible se trouve à présent dans un flux de neutrons thermiques atteignant 5.3×10^{14} n.cm⁻².s⁻¹ [95]. Ce haut flux de neutrons permet la fission des actinides de la cible. La fission crée des produits de fission dénués d'électrons. Ces noyaux acquièrent un cortège électronique au contact de la matière de la cible. Ce cortège électronique est incomplet, ce qui confère au produit de fission une charge ionique moyenne $\bar{q} \simeq 19$ à la sortie de la cible. Les produits de fission sont maintenant dans le vide. Ils ne peuvent plus acquérir de nouveaux électrons. Ils conserveront ainsi leur charge ionique dans la suite de leur parcours.

Les produits de fission sont émis de la cible de façon isotrope. Cependant ils pénètrent dans le spectromètre Lohengrin avec un angle solide $\Omega \leq 3.2 \times 10^{-5}$ sr [95], ce qui correspond à une probabilité $p \leq 2.5 \times 10^{-6}$. Ils traversent ensuite les 23 m de longueur du spectromètre, en 1–2 μ s environ, c'est-à-dire après émission des particules prompts (neutrons et rayonnements γ) et avant qu'ils ne se désexcitent par décroissances β (si le temps de demi-vie $T_{1/2} > 0.5 \mu$ s [96]). Durant cette traversée, ils subissent une déflexion horizontale due au champ magnétique (dipôle magnétique), puis une déflexion verticale due au champ électrique (condensateur). Les produits de fission sélectionnés par ces deux déflexions, peuvent sortir soit au niveau de la position expérimentale 1, soit au niveau de la position

expérimentale 2. La première position expérimentale est la sortie historique du spectromètre Lohengrin. Elle permet des mesures précises en énergie, car le faisceau de produits de fission sort directement sans être focalisé. La deuxième position expérimentale dispose d'un aimant, appelé "RED" (Reverse Energy Dispersion), qui permet de focaliser le faisceau en énergie et de le dévier. Cette focalisation augmente la densité de produits de fission du faisceau, au détriment de la précision en énergie [97]. Ces deux positions expérimentales accueillent des dispositifs, dont le fonctionnement sera décrit ultérieurement.

Principe de la séparation : les forces électromagnétiques dues au champ magnétique \mathcal{B} (dipôle magnétique) et au champ électrique \mathcal{E} (condensateur) sont orthogonales au vecteur vitesse de la particule qui décrit des trajectoires en arcs de cercles, dont les rayons de courbure sont respectivement notés $\rho_{\mathcal{B}}$ et $\rho_{\mathcal{E}}$ [98]. Dans l'approximation de la cinématique classique, l'accélération centripète $\vec{\gamma}$ est reliée à la vitesse \vec{v} du fragment par l'équation 3.1. Cette dernière, appliquée successivement dans l'aimant puis dans le champ électrique, permet d'obtenir les équations 3.2 et 3.3. Enfin en notant l'énergie cinétique $E = \frac{1}{2}Av^2$ après la sortie de la cible, on peut montrer que le spectromètre Lohengrin permet de séparer les produits de fission suivant deux paramètres, A/q (eq. 3.4) et E/q (eq. 3.5).

$$\gamma = \frac{v^2}{\rho_{\mathcal{B},\mathcal{E}}} \text{ avec } A\vec{\gamma} = q\vec{\mathcal{E}} + q\vec{v} \times \vec{\mathcal{B}} \quad (3.1)$$

$$\text{Dans le champ magnétique : } \frac{Av^2}{\rho_{\mathcal{B}}} = qv\mathcal{B} \quad (3.2)$$

$$\text{Dans le champ électrique : } \frac{Av^2}{\rho_{\mathcal{E}}} = q\mathcal{E} \quad (3.3)$$

$$\text{Premier rapport : } \frac{A}{q} = \frac{\mathcal{B}^2 \rho_{\mathcal{B}}^2}{\mathcal{E} \rho_{el}} \quad (3.4)$$

$$\text{Deuxième rapport : } \frac{E}{q} = \frac{\mathcal{E} \rho_{el}}{2} \quad (3.5)$$

Les équations 3.4 et 3.5 mettent en évidence deux caractéristiques du spectromètre :

- Premièrement, différentes masses peuvent avoir les mêmes rapports A/q et E/q et ainsi être sélectionnées ensemble par le spectromètre Lohengrin. Le tableau 3.1 présente l'exemple des masses 95, 100, 105 et 110 respectivement aux charges 19, 20, 21 et 22 qui partagent le même rapport $A/q = 5$. Pour identifier les différents noyaux, un dispositif expérimental est placé à la sortie du spectromètre. Une chambre d'ionisation a été utilisée pour les rendements en masse (§ 3.4) et huit cristaux de germanium ont servi à mesurer les rendements isotopiques du pic lourd (§ 3.5).
- Deuxièmement, il ressort des équations que pour un champ magnétique et un champ électrique donné, les masses et l'énergie se répartissent à différents rayons. On parlera alors de dispersion en masse et en énergie du spectromètre Lohengrin.

TABLE 3.1. Exemple de différentes masses sélectionnées ensemble par le spectromètre Lohengrin

A	95.	100.	105.	110.
q	19.	20.	21.	22.
E	93.1	98.	102.9	107.8
A/q	5.	5.	5.	5.
E/q	4.9	4.9	4.9	4.9

La dispersion en énergie et en masse du spectromètre : au niveau de la sortie du spectromètre, dans le plan perpendiculaire au faisceau, les dispersions en énergie et en masse sont décrites suivant deux directions orthogonales entre elles (fig. 3.3). L'énergie varie de 1% tous les 7.2 cm. La masse varie de 1% tous les 3.24 cm.

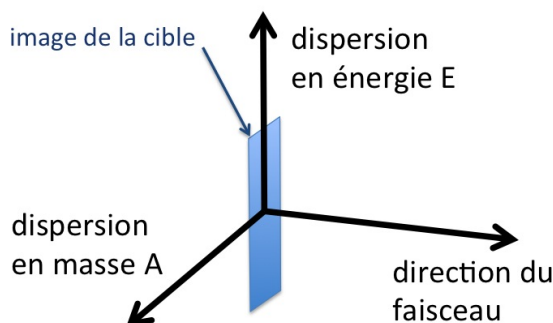


FIGURE 3.3: Positionnement des directions des dispersions en énergie et en masse.

Juste avant la sortie du spectromètre, suivant la direction de l'énergie, treize obturateurs ("shutters" en anglais) sont installés. Chaque obturateur a une dimension de 3.5 cm, ce qui représente une déviation en énergie de $(3.5/7.2) \times 1\% = 0.486\%$. Prenons un exemple : le Lohengrin est réglé sur 80 MeV et trois obturateurs sont ouverts, la dispersion en énergie est de $\Delta E = 3 \times 0.486\% \times 80 \text{ MeV} = 1.17 \text{ MeV}$.

Cette dispersion en énergie du Lohengrin, explique que les distributions en énergie des produits de fission soient mesurées par pas de 2 ou 3 MeV. D'autre part, si pendant une expérience, le nombre d'obturateurs ouverts ne varie pas (ce qui est généralement le cas), la dispersion en énergie est proportionnelle à l'énergie choisie par le spectromètre.

Comme nos mesures sont relatives, la division par $\Delta E = k \times E$ ou par E revient au même. Il est important de diviser chaque mesure par E (ou ΔE) pour s'affranchir de la dispersion en énergie, sinon les mesures à basse énergie seraient très sous-estimées par rapport à celles à haute énergie.

La figure 3.4 présente la succession des masses. Pour un champ électrique fixé, le champ magnétique a été scanné, ce qui revient à observer A/q . Au dessous 1620 G, les pics sont bien isolés. Au dessus de cette valeur, certains pics sont extrêmement proches et peuvent donc être partiellement sélectionnés par le spectromètre Lohengrin. Ce dernier possède un grandissement (rapport entre la taille de l'image dans le plan focal et la taille de la cible) de 1 : 1. Ainsi pour une cible de 4 mm de largeur, il semble suffisant d'ouvrir le spectromètre dans la direction de la dispersion en masse de 5 mm pour tenir compte des aberrations possibles. Cependant, le spectromètre pourrait légèrement se déformer et une partie du faisceau serait alors coupé. Cela induirait un biais non-contrôlable dans nos résultats.

Ainsi, tout au long de nos mesures, nous avons conservé une ouverture de 10 mm au minimum dans la direction de la dispersion en masse. Notons tout de même qu'augmenter la résolution en masse peut être intéressant quand il n'y a pas de nécessité de se normaliser. C'est le cas de la spectroscopie nucléaire, où la présence d'une masse voisine à la sortie du spectromètre peut être extrêmement gênante.

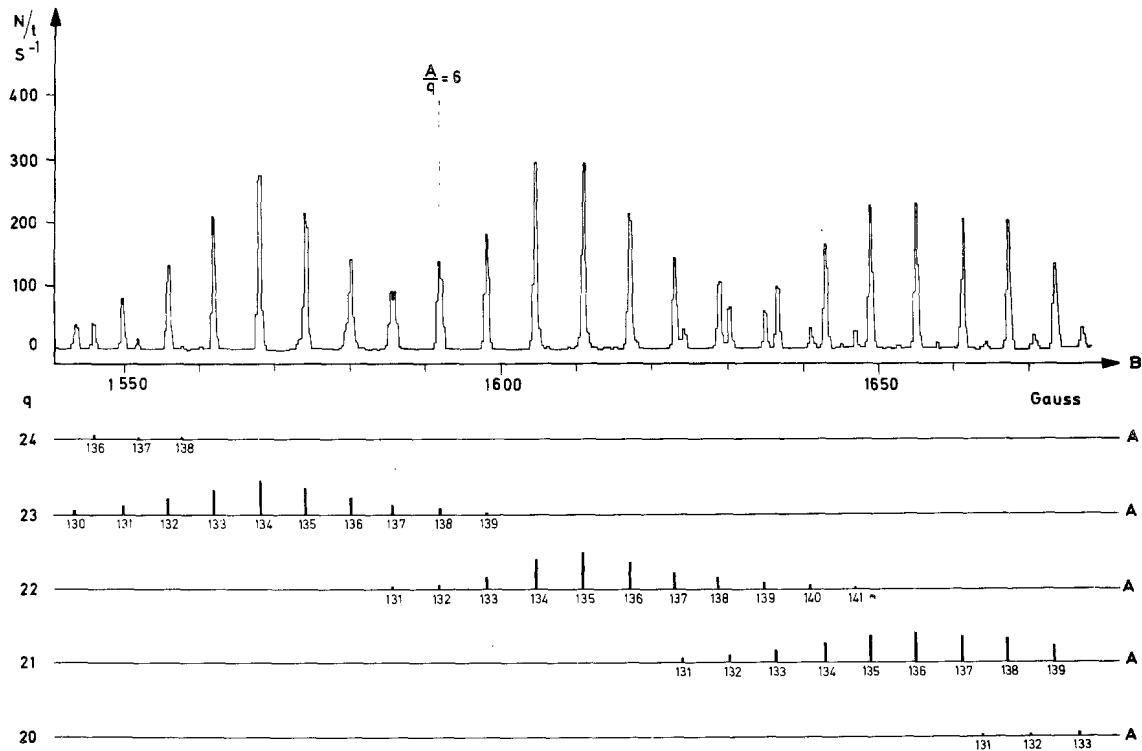


FIGURE 3.4. Spectre en A/q (ou en B) avec un champ électrique \mathcal{E} constant pour les masses du pic lourd (extrait de [71]).

Résumé des caractéristiques techniques : le tableau 3.2 récapitule quelques caractéristiques techniques du spectromètre Lohengrin. Dans le cadre de nos expériences, la résolution en masse étendue est $A/\Delta A \simeq 400$; les différentes image des cibles commencent à se recouvrir (contamination $\simeq 1\%$) pour $A = 151$, c'est-à-dire pour les masses les plus lourdes des produits de fission. Cette résolution en masse est très satisfaisante pour les mesures de rendements.

La sélection en énergie des produits de fission est assurée par le champ électrique \mathcal{E} , qui est établi grâce aux deux hautes tensions du spectromètre. Elles sont présentées sur la photographie en fig. 3.5. Malgré des tensions de l'ordre de la centaine de kV, elles doivent être particulièrement stables, pour obtenir une grande précision en énergie.

Les réglages des tensions (pour les condensateurs) ainsi que des courants (pour les aimants) est géré par le logiciel NOMAD développé à l'ILL [99]. Une fois les réglages établis, NOMAD lance l'acquisition de la chambre d'ionisation ou des détecteurs Ge.

TABLE 3.2: *Quelques caractéristiques techniques du spectromètre Lohengrin [95].*

flux de neutrons au niveau de la cible	$5.3 \times 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$
angle solide Ω	$\leq 3.2 \times 10^{-5} \text{ sr}$
rayon de courbure dans le champ magnétique	4 m
rayon de courbure dans le champ électrique	5.6 m
dispersion en énergie $\Delta E/E=1\%$	7.2 cm
dispersion en masse $\Delta A/A=1\%$	3.24 cm

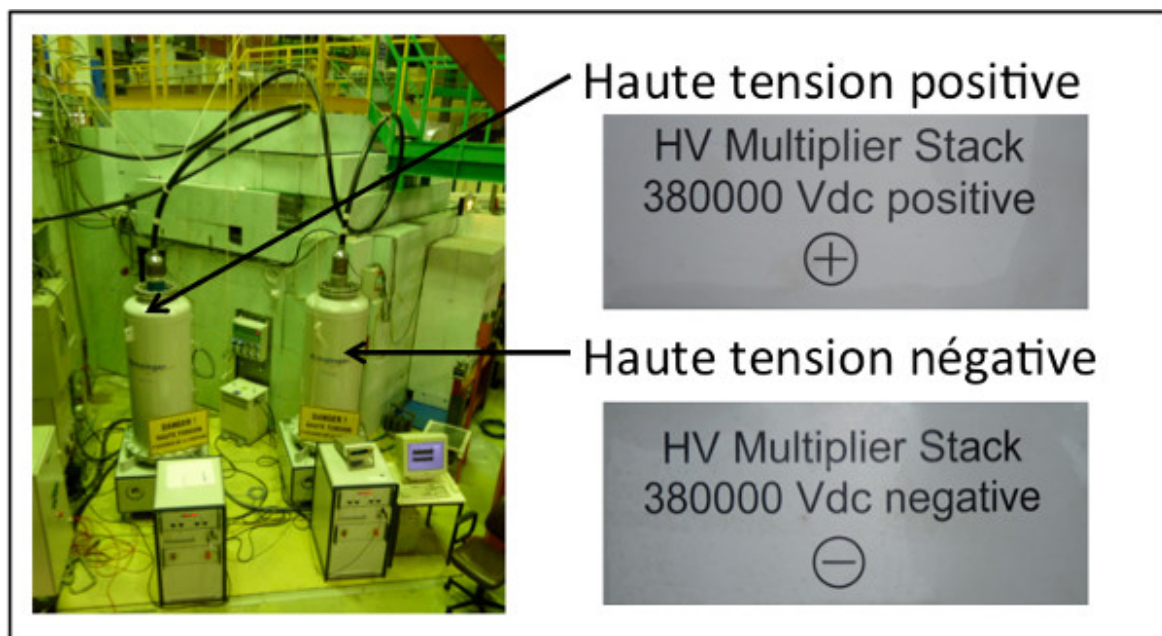


FIGURE 3.5. *Photographie des deux hautes tensions qui permettent d'établir le champ électrique dans le spectromètre Lohengrin*

3.3 Cibles d'actinides utilisées

La mesure des rendements de fission sur le spectromètre Lohengrin nécessite des cibles d'actinides minces : de 50 à 400 μg de matière fissile par cm^2 . La matière fissile est déposée sur une plaque rectangulaire de titane de 0.2 mm d'épaisseur et de $2 \times 9 \text{ cm}^2$ de surface. Cette plaque est fixée sur un porte cible, lui aussi en titane (fig. 3.6). Elle est ensuite recouverte d'un diaphragme muni généralement d'une feuille de nickel.

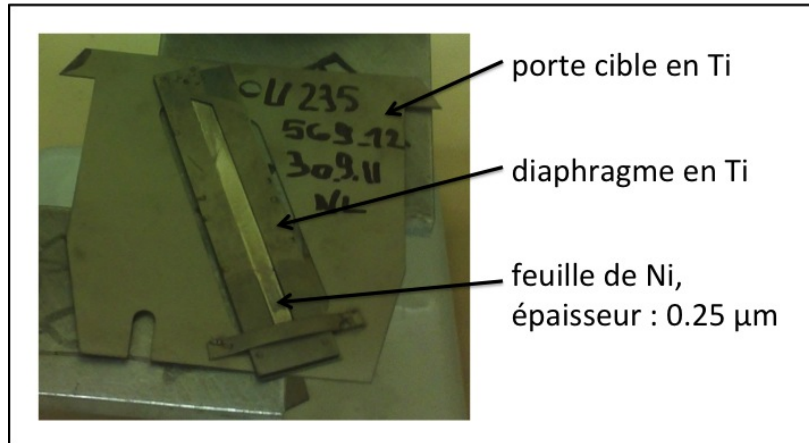


FIGURE 3.6: Photographie du porte cible

Au début de l'expérience, la cible est amenée à 50 cm du cœur du réacteur, dans un flux de neutrons thermiques, d'environ $5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. La fission des actinides induit un échauffement de la cible. Étant dans le vide, elle évacue sa chaleur uniquement par rayonnement et elle atteint alors des températures comprises entre 300 et 600°C. Outre ces hautes températures, la cible subit les dommages des produits de fission, qui peuvent atteindre 50 dpa (déplacements par atome) par jour [96]. Ces conditions extrêmes imposent les caractéristiques de la cible : le titane pour tous les éléments support et une couverture de Ni ou de Ta pour limiter sa combustion.

Le titane est utilisé pour les éléments suivants : le porte cible, le diaphragme et la plaque sur laquelle est déposée la matière fissile. Ce matériau est intéressant principalement pour quatre raisons. Tout d'abord, il conserve ses propriétés mécaniques à haute température, c'est-à-dire qu'il ne se plie pas, ne se déforme pas. Ensuite, il a un coefficient de dilatation thermique similaire à celui de la matière fissile, ce qui évite qu'elle ne se décolle prématurément de la plaque de titane. Troisièmement, il possède une grande émissivité ; cela reflète sa capacité à évacuer une grande quantité de chaleur par rayonnement. Enfin il est peu activé par les neutrons, ce qui est un point positif, lorsqu'il faut évacuer la cible en tant que déchet ainsi qu'en termes de radioprotection.

Une fois placée dans le haut flux de neutrons, la cible se dégrade très vite, bien plus vite qu'avec la fission nucléaire seule. La matière fissile est éjectée de la cible par les produits de fission, qui possèdent une énergie cinétique entre 50 et 100 MeV. Ce phénomène est appelé "self-sputtering". Pour limiter cette dégradation, la cible est généralement recouverte d'une

feuille de nickel (Ni) ou d'une évaporation de tantale (Ta) (tab. 3.3). La couverture doit arrêter les noyaux d'actinides, mais ne doit pas déformer trop sévèrement la distribution en énergie des produits de fission. Le tantale avec son numéro et sa masse atomique élevés ($Z=73$, $m_{\text{Ta}}=181$ u) possède un fort pouvoir d'arrêt. Ce matériau est déposé uniquement par évaporation, car les feuilles de tantale les plus fines que l'on peut manipuler, sont encore trop épaisses pour laisser passer les produits de fission. Cependant, l'ILL ne possède pas encore d'évaporateur dédié aux cibles. C'est la raison pour laquelle les cibles qui n'ont pas été livrées avec une évaporation de tantale, sont recouvertes d'une feuille de nickel. Car malgré un numéro atomique peu attractif ($Z=28$), la feuille de nickel est la feuille la plus fine sur le marché, qui peut encore être manipulée.

La table 3.3 résume les caractéristiques des cibles utilisées. Ces caractéristiques dépendent des expériences réalisées. On peut tout d'abord remarquer que la cible d' ^{233}U "énergie 1/1" ne possède aucune couverture. Ce choix a été fait au dépend de la durée de vie de la cible (3 jours), pour obtenir les distributions en énergie les moins dégradées possibles. On peut ensuite s'attarder sur les différentes épaisseurs de matière fissile. Les cibles utilisées pour les rendements isotopiques sont plus épaisses que pour les autres expériences. Cela permet de maximiser le taux de comptage pour la spectrométrie γ . Cependant les pertes en énergie dans la cible sont tellement grandes, que les distributions en énergie possèdent une contribution à basse énergie, qui n'est pas toujours évidente à mesurer. Enfin, les dimensions des diaphragmes choisis ont aussi changé en fonction de l'expérience. La largeur des diaphragmes régit la résolution en masse et leur longueur participe à la résolution en énergie. Ainsi, quand le taux de comptage n'est pas une contrainte majeure (masse, énergie, corrélations énergie-charge), les diaphragmes étaient moins longs et surtout moins larges.

TABLE 3.3: *Caractéristiques des cibles utilisées*

isotope mesuré	expérience & numéro de cible	dimensions du diaphragme (mm ²)	épaisseur ($\mu\text{g} / \text{cm}^2$)	couverture	
^{233}U	masse 1/2	30×4	68	évaporation Ta	(139 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
^{233}U	masse 2/2	70×5	103	évaporation Ta	(120 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
^{233}U	énergie 1/1	30×4	50	aucune	
^{233}U	corrélation 1/1	30×4	55	évaporation Ta	(148 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
^{233}U	isotopique 1/4	70×10	323	feuille Ni	(0.50 μm)
^{233}U	isotopique 2/4	70×10	323	feuille Ni	(0.25 μm)
^{233}U	isotopique 3/4	70×8	323	feuille Ni	(0.25 μm)
^{233}U	isotopique 4/4	70×10	323	feuille Ni	(0.25 μm)
^{241}Pu	masse 1/1	40×6	187	feuille Ni	(0.25 μm)

3.4 Instrumentation des mesures des rendements en masse

Pour identifier les différentes masses des produits de fission sélectionnées par le spectromètre Lohengrin, une chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch (fig. 3.7) est placée au niveau de la position expérimentale 1 (le faisceau direct non-focalisé).

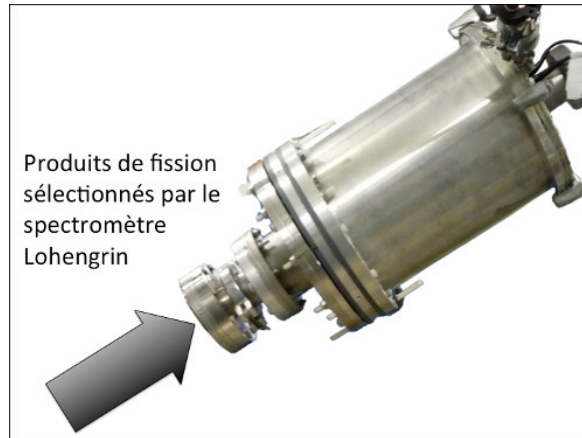


FIGURE 3.7. Photographie de la chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch. La flèche représente les produits de fission sélectionnés par le spectromètre Lohengrin.

Principe de fonctionnement d'une chambre d'ionisation : quand une particule chargée pénètre dans une chambre d'ionisation, elle dépose son énergie cinétique par interaction coulombienne avec le milieu gazeux ([42], ch. 1). Cette interaction engendre la création de paires électron-ion primaires, qui dérivent sous l'effet d'un champ électrique et interagissent potentiellement à leur tour avec le milieu pour créer des paires secondaires. Les électrons sont collectés au niveau de l'anode et forment un signal proportionnel à l'énergie déposée dans la chambre. Le signal formé par les ions n'est pas analysé, car leur vitesse de dérive est mille fois plus lente que celle des électrons.

Chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch : la figure 3.8 est un schéma de cette chambre d'ionisation, qui est remplie du gaz isobutane. Les deux anodes sont soumises au même potentiel de 800 V. L'unique cathode est au potentiel nul. La grille de séparation est connectée à la cathode afin de repousser les électrons. La grille de Frisch est à un potentiel intermédiaire de 400 V. Les produits de fission sélectionnés par le spectromètre pénètrent dans la chambre par la fenêtre. Ils déposent leur énergie en créant des paires électron-ion. Une partie de cette énergie ΔE est déposée dans la première moitié de la chambre et le reste de leur énergie E_{res} est déposé dans la seconde moitié. Les électrons créés dérivent sous l'effet du champ électrique et sont collectés au niveau des deux anodes. La première anode permet de mesurer ΔE et la seconde anode permet de mesurer E_{res} . En sommant les deux signaux, on obtient l'énergie totale déposée du produit de fission $E_{\text{tot}} = \Delta E + E_{\text{res}}$.

La grille de Frisch permet d'isoler les anodes des effets des ions positifs [60, 100, 101]. En effet, les ions sont encore présents au milieu de la chambre, quand les électrons sont collectés au niveau des anodes et forment les signaux qui sont analysés. Ces ions induisent un potentiel qui est d'une part proportionnel à leur charge, et qui d'autre part dépend de leur position moyenne dans la chambre. Sur la figure 3.8, les ions positifs créés sur la trajectoire A ont une position moyenne plus proche des anodes que les ions créés sur la trajectoire B. Ce potentiel est mesurable au niveau de la grille de Frisch, qui est située entre les ions et les anodes. Les anodes perçoivent uniquement le potentiel généré par les électrons, qui ont franchi la grille de Frisch. Ainsi le signal analysé est proportionnel à l'énergie déposée par le produit de fission.

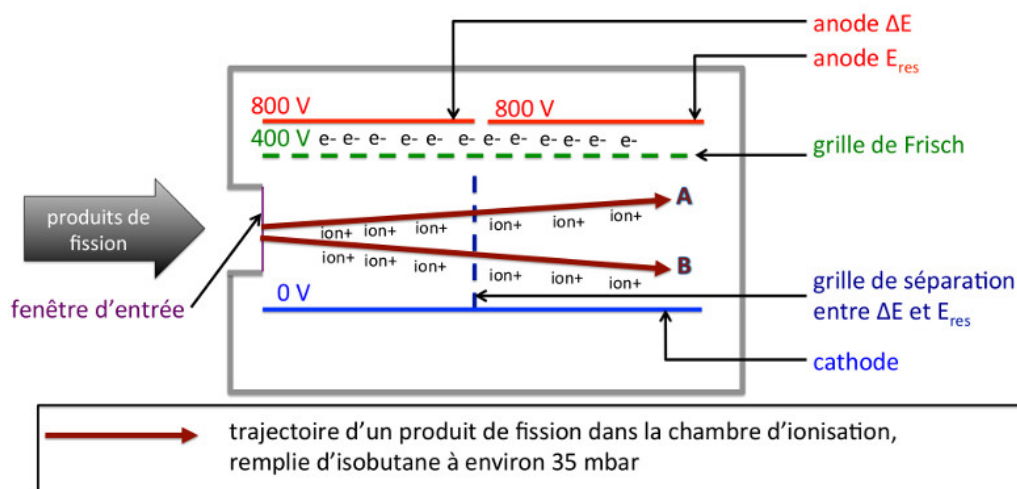
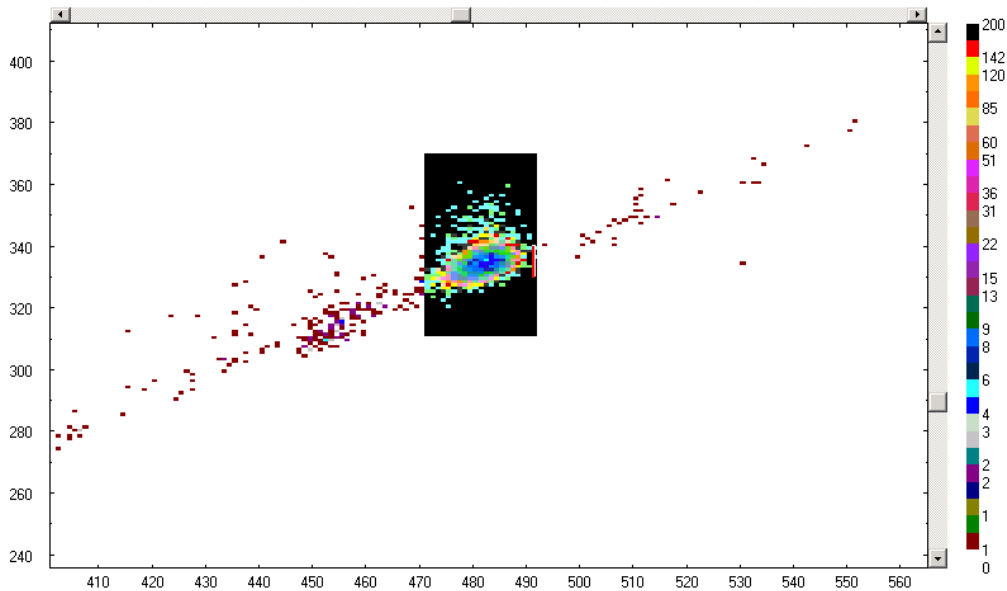


FIGURE 3.8: Schéma de la chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch.

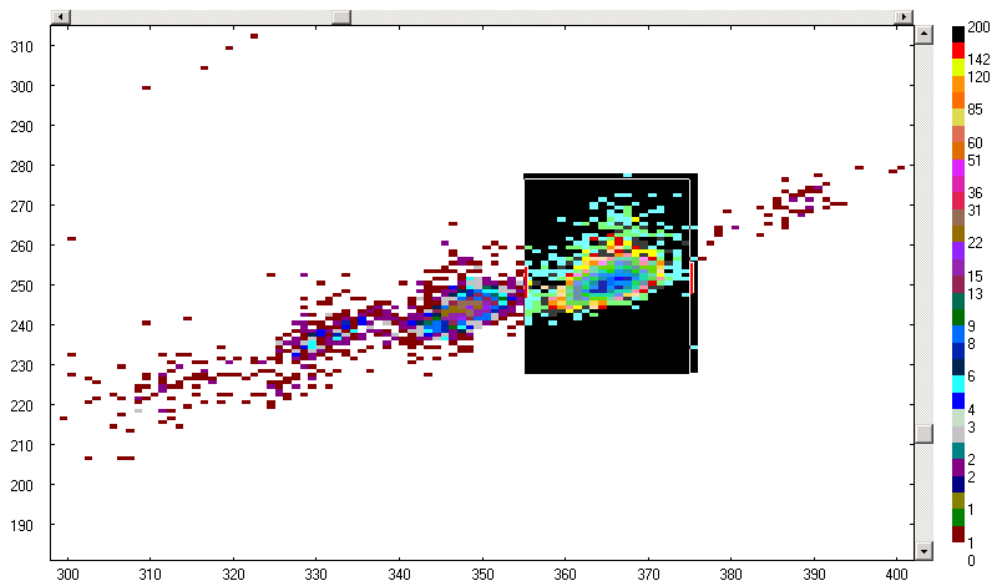
La mesure, effectuée avec la chambre d'ionisation pendant un temps Δt , peut être présentée sur un histogramme 2D. La figure 3.9 présente deux exemples de mesure. En abscisse les canaux correspondent à l'énergie totale E_{tot} , et en ordonnée à l'énergie ΔE déposée dans la première moitié de la chambre. Le nombre d'événements enregistrés pour $(E_{tot}, \Delta E)$ est représenté par une échelle de couleur.

Sur la figure du haut, la tâche se distingue parfaitement. En effet, pour le réglage $A/q = 136/21$, seule la masse 136 possède une charge ionique correspondante entière. La contamination sur la gauche de la tâche, correspond à la masse 130, pour une "charge ionique" de 20.07. Sur la figure du bas, les limites sont plus floues. Cela est principalement dû à deux raisons. D'une part, le réglage $A/q = 149/21$, sélectionne en grande partie les masses 135 et 142, car les charges ioniques correspondante 19.026 et 20.013 sont extrêmement proches d'une valeur entière. D'autre part, l'énergie moyenne des produits de fission diminue avec leur masse pour le pic lourd. Cela entraîne aussi une diminution de l'écart en énergie entre deux masses sélectionnées par le spectromètre. La figure du haut présente une mesure de la masse 136, à la charge ionique 21 et à l'énergie cinétique de 67 MeV. Si la masse correspondant à la charge ionique 20 est sélectionnée, son énergie cinétique est de $67 \times 20/21 = 63.8$ MeV. Ce qui fait un écart en énergie de $67 - 63.8 = 3.2$ MeV. De la même façon, pour la figure du bas,

qui correspond à la masse 141 à la charge ionique 21 et à l'énergie cinétique de 53 MeV : si la masse correspondant à la charge ionique 20 est sélectionnée, son énergie cinétique est de $53 \times 20/21 = 50.5$ MeV. Ce qui fait un écart en énergie de $53 - 50.5 = 2.5$ MeV. Les tâches sont donc de plus en plus rapprochées, lorsque la masse augmente.



(a) masse 136, charge 21, énergie 67 MeV



(b) masse 149, charge 21, énergie 53 MeV

FIGURE 3.9. Capture d'écran du logiciel MPANT (version 1.67) [102] pour deux mesures. En abscisse E_{tot} , en ordonnée ΔE , l'énergie est exprimée en canaux. L'aspect des tâches dépend des paramètres d'entrée (masse, charge, énergie).

3.5 Instrumentation des mesures des rendements isotopiques

3.5.1 Avec une chambre d'ionisation pour le pic léger

Dans le passé, les rendements isotopiques du pic léger ont été déterminés en combinant le spectromètre Lohengrin avec une chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch [73, 80, 82, 84, 89, 86] (voir § 3.4 pour la description de cette chambre d'ionisation). Selon la formule de Bethe [103], la perte d'énergie par unité de distance est proportionnelle au carré de Z . Ainsi, plus un noyau a un numéro atomique Z élevé, plus il déposera d'énergie dans la première moitié de la chambre d'ionisation. La figure 3.10 présente un exemple de résultat obtenu avec ce dispositif expérimental. Cette méthode est limitée aux isotopes possédant un $Z \leq 38$ [73].

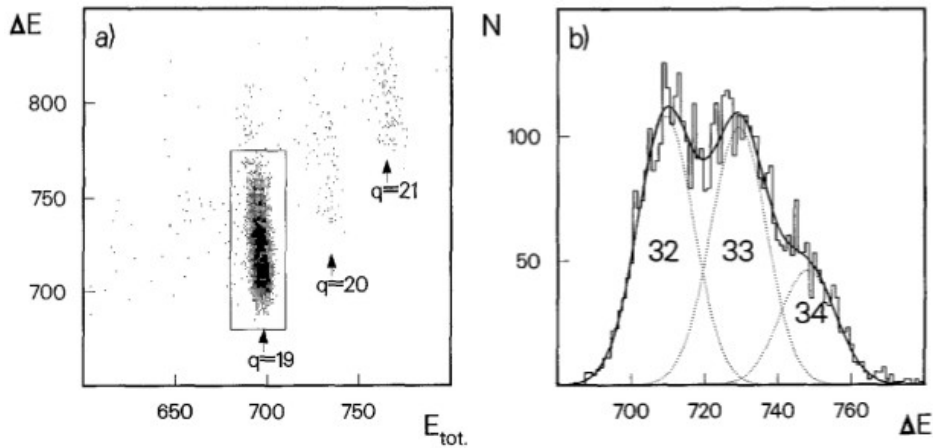


FIGURE 3.10. Mesure de rendements isotopiques du $^{229}\text{Th}(n_{\text{th}},f)$ obtenue avec une chambre d'ionisation à deux anodes munie d'une grille de Frisch, combinée avec le spectromètre Lohengrin réglé sur la ligne $A/q = 82/19$ (extrait de [73]). a) Comptage dans le plan ($E_{\text{tot}}, \Delta E$), où E_{tot} représente l'énergie totale du produit de fission et ΔE représente l'énergie déposée dans la première moitié de la chambre d'ionisation. L'énergie est exprimée en canaux. b) Projection du rectangle sur l'axe ΔE . Les différents isotopes ($^{82}_{32}\text{Ge}$, $^{83}_{33}\text{As}$ et $^{82}_{34}\text{Se}$) sont ajustés avec des distributions gaussiennes.

On obtient une meilleure identification des isotopes en ajoutant un absorbeur passif entre la chambre d'ionisation et la sortie du spectromètre Lohengrin [104, 105, 74, 85]. Plus un noyau a un numéro atomique Z élevé, plus il perdra rapidement d'énergie dans la matière de l'absorbeur. Cette méthode présente deux contraintes majeures. D'une part, elle est limitée à des charges nucléaires inférieures à 45. Au-delà, la résolution en énergie ne permet plus de séparer les différents isotopes, par conséquent cette méthode ne peut pas être appliquée au pic lourd. D'autre part, le faisceau sortant du Lohengrin doit être constitué d'une seule masse, pour cela la charge ionique doit être judicieusement choisie, comme par exemple $A=93$ et $q=20$ (fig. 3.11), ce qui signifie que toute la distribution en q ne peut pas être mesurée.

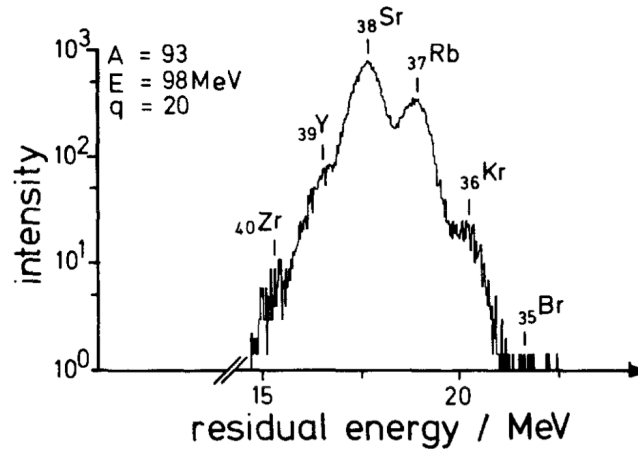


FIGURE 3.11. Énergie résiduelle mesurée avec une chambre d'ionisation montée après un absorbeur parylène-C pour la masse $A=93$, la charge $q=20$ et l'énergie $E=98$ MeV de la fission de $l^{233}\text{U}$. Plus la charge nucléaire Z est grande, plus le noyau perd de l'énergie dans l'absorbeur et donc, plus l'énergie résiduelle mesurée par la chambre est faible. Le positionnement des contributions des différentes charges nucléaires est présenté sur ce graphe (extrait de [74]).

3.5.2 Mesures par spectrométrie γ pour le pic lourd

Les produits de fission, sélectionnés par le spectromètre Lohengrin suivant A/q et E/q , sont focalisés par l'aimant "RED" et sont arrêtés sur une bande déroulante installée à l'intérieure d'une chambre à vide. Ces isotopes, riches en neutrons, rejoignent la vallée de la stabilité par désintégrations β^- , par désintégrations (β^- ,n) et/ou par transitions isomériques. Les rayonnements γ , caractéristiques de la désexcitation des noyaux fils, sont mesurés par deux détecteurs (clovers) constitués de quatre cristaux germanium.

Les photons interagissent avec la matière par effet photoélectrique, par effet Compton ou par création de paires électron-positron (e^- , e^+).

L'effet photoélectrique est l'absorption totale d'un photon par un électron du cortège électronique. L'énergie de l'électron est alors : $E = h\nu - E_L$ où E_L est l'énergie de liaison de l'électron. Avec cette interaction, toute l'énergie du photon est déposée en une seule fois dans le cristal. Cette propriété est à l'origine d'un pic dans le spectre en énergie, le pic photoélectrique. Il faut de plus noter que la section efficace de l'effet photoélectrique augmente avec le numéro atomique Z des atomes du détecteur.

La diffusion Compton est la diffusion élastique d'un photon sur un électron du cortège électronique. Le dépôt d'énergie a un spectre continu. Néanmoins, le photon peut interagir une nouvelle fois avec le cristal, soit par effet photoélectrique, soit par une autre diffusion Compton et ainsi déposer toute son énergie. Il faut donc ajouter au pic photoélectrique la contribution du multi Compton, le pic prendra ainsi le nom pic d'énergie totale, en anglais "Full Energy Peak (FEP)" (fig. 3.12).

La production de paires (e^-/e^+) est une réaction à seuil (l'énergie du photon est au minimum de 1022 keV) qui résulte de l'interaction du photon avec le champ électrique des atomes.

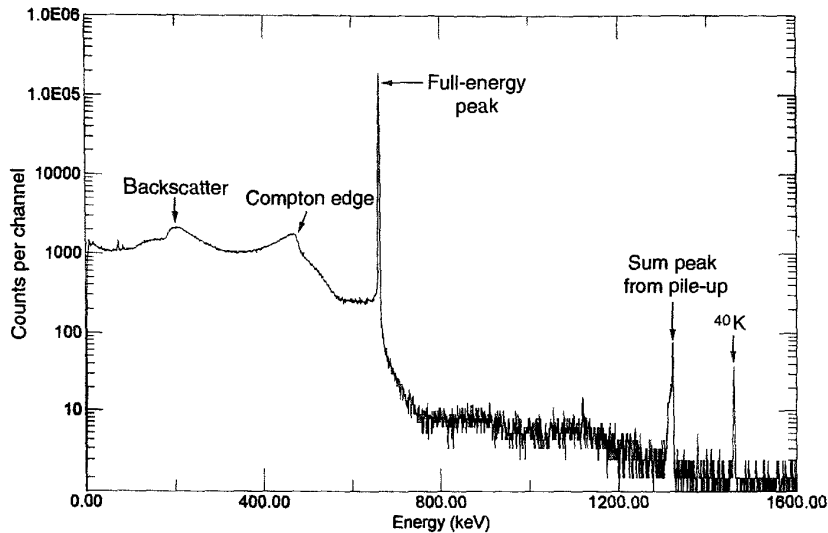


FIGURE 3.12. Spectre de la raie γ de 662 keV émise par une source de ^{137}Cs (extrait de [60]).

Le germanium est un matériau semi-conducteur. L'énergie déposée par le photon permet la création de paires électron-trou, qui migrent sous l'action d'un champ électrique pour former un signal proportionnel à l'énergie déposée. Les semi-conducteurs ont principalement deux avantages par rapport à une chambre d'ionisation pour la détection des rayonnements γ . Premièrement, ils ont un plus grand pouvoir d'arrêt, car la densité d'un solide est beaucoup plus grande que celle d'un gaz. Deuxièmement, ils ont une meilleure résolution. En effet, l'énergie de création d'une paire électron-trou est environ dix fois plus faible que celle d'une paire électron-ion, ce qui conduit à un nombre de création de paires d'autant plus grand, et à une résolution autour de 2 keV pour la raie γ à 1173 keV du ^{60}Co . Les détecteurs utilisés sont des HPGé (High Purity Germanium) qui sont des cristaux de germanium avec une concentration d'impuretés inférieure à 10^{10} atomes/cm³. Pour pouvoir fonctionner, ils doivent être refroidis avec de l'azote liquide (fig. 3.13).

Un clover est un détecteur constitué de quatre cristaux de germanium. Les spectres des huit cristaux des deux clovers (fig. 3.13) ont été étalonnés en énergie puis sommés, pour obtenir une plus grande efficacité de détection. Un exemple de spectre γ obtenu est présenté sur la figure 3.15.

Les produits de fission ne se déposent pas sur un support fixe, mais sur une bande, qui est déroulée entre chaque acquisition (fig. 3.13). Cela permet d'éloigner des détecteurs germanium les noyaux encore radioactifs provenant des acquisitions précédentes et d'assurer ainsi une mesure "propre" à chaque fois. La bande défile et est enroulée, grâce à un système de bobines et un moteur (photographie 3.14). Ce processus se fait sous vide dans une enceinte spécifique, appelée chambre à vide.

Les clovers permettent de distinguer les différents isotopes, mais ces détecteurs ne sont pas optimaux pour suivre l'évolution de la cible dans le temps. Ainsi pour mesurer les rendements isotopiques, il a fallu combiner les mesures faites avec les clovers et celles faites avec la chambre d'ionisation.

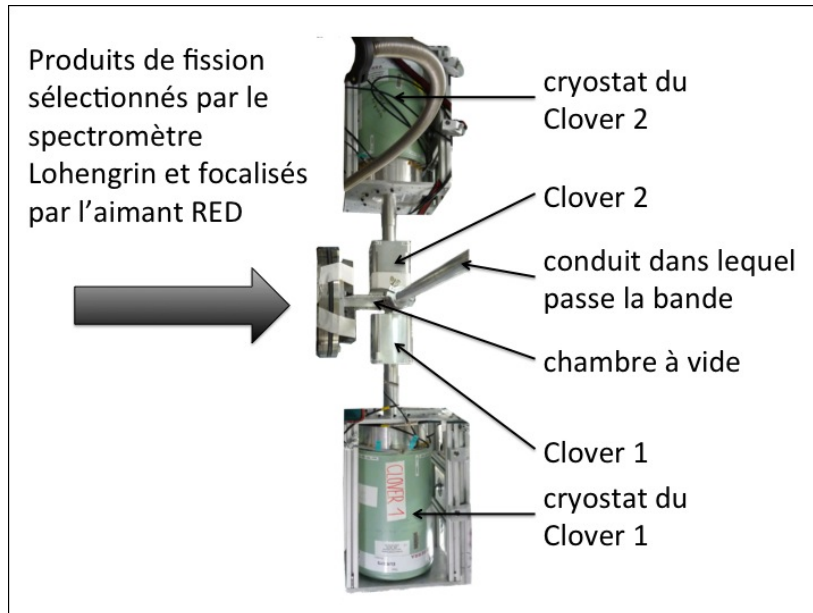


FIGURE 3.13. Photographie des deux détecteurs germanium nommés “clovers” avec leur cryostat rempli d’azote liquide.



FIGURE 3.14. Photographie du système qui permet de gérer le défilement et l’enroulement de la bande

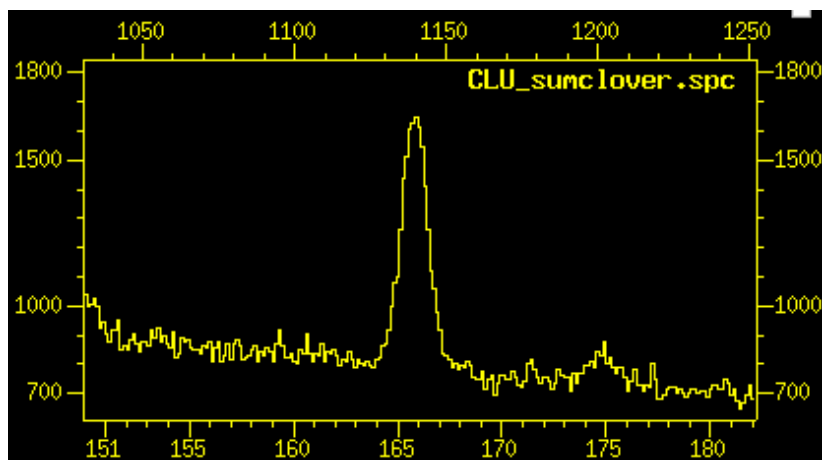


FIGURE 3.15: Impression écran d'un spectre γ , avec le logiciel TV [106].

3.6 Conclusion

Ce chapitre présente les deux dispositifs expérimentaux qui ont été mis en place pour mesurer les rendements en masse et les rendements isotopiques des produits de fission. Ces deux dispositifs ont en commun le spectromètre en masse Lohengrin de l'Institut Laue Langevin (ILL) qui permet de sélectionner les noyaux suivant la masse sur la charge ionique (A/q) et l'énergie cinétique sur la charge ionique (E/q).

Pour mesurer les rendements en masse, le spectromètre Lohengrin est combiné à une chambre d'ionisation à deux anodes avec grille de Frisch. Cette chambre d'ionisation permet d'une part de séparer les différentes masses sélectionnées par le spectromètre, et d'autre part de compter les noyaux considérés.

Les rendements isotopiques sont mesurés en plaçant des détecteurs germanium après l'aimant focalisant RED de la sortie numéro 2 du spectromètre Lohengrin. Les spectres de rayonnements γ acquis par les détecteurs germanium permettent de déterminer le nombre de désintégrations de chaque isotope radioactif. Ainsi les noyaux sont identifiés suivant leur masse A et leur numéro atomique Z .

Les distributions en énergie cinétique et en charge ionique

Sommaire

4.1	La méthodologie d'analyse des distributions	82
4.1.1	Exemples de distributions en énergie cinétique	82
4.1.2	Ajustement des distributions en énergie cinétique	84
4.1.3	Exemples de distributions en charge ionique	86
4.1.4	Ajustement des distributions en charge ionique	87
4.2	Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse	88
4.2.1	Les distribution en énergie cinétique en fonction de la cible	88
4.2.2	Les distributions en énergie cinétique en fonction de la masse	94
4.3	Les distributions en charge ionique en fonction de la masse	99
4.3.1	Evolution de la distribution en charge ionique avec la combustion de la cible	102
4.3.2	Charge moyenne et largeur des distributions	102
4.3.3	Le modèle de V.S. Nikolaev	103
4.3.4	Le modèle de K. Shima	103
4.4	Corrélation entre charge ionique et énergie cinétique	107
4.5	Conclusion	110

Le spectromètre Lohengrin sélectionne les produits de fission suivant leur masse A , leur charge ionique q et leur énergie cinétique E . Il offre ainsi la possibilité de mesurer les distributions en énergie cinétique E et en charge ionique q , pour une masse donnée A . Ces distributions sont obtenues en fixant deux des trois paramètres et en faisant varier le troisième : il faut faire varier E pour mesurer les distributions en énergie et q pour mesurer les distributions en charge ionique.

La détermination de ces distributions constitue la première étape de l'analyse des rendements en masse (cf. chapitre 5) et isotopiques (cf. chapitre 6) des produits de fission sur le spectromètre Lohengrin. Cependant, ces distributions sont intéressantes en elles-mêmes pour les informations qu'elles fournissent. Les distributions en énergie sont le reflet de la déformation des fragments au moment de la scission. L'énergie cinétique totale est une donnée intéressante pour les applications. Enfin les distributions en charge déformées résultent de la présence d'isomères nanosecondes.

Les distributions en énergie pour les rendements en masse ont été mesurées avec des cibles recouvertes de Tantale. Cette couverture prolonge la vie de la cible, mais induit des pertes en énergie cinétique des produits de fission d'environ 2 MeV selon le logiciel SRIM [107, 108]. Les données provenant des rendements en masse ont été complétées par une série de mesures dédiées à l'étude des distributions en énergie. Ces mesures ont été réalisées avec une cible extrêmement mince sans couverture de Tantale (épaisseur $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d' ^{233}U).

Dans ce chapitre, nous commencerons par aborder la méthodologie d'analyse des distributions en énergie cinétique et en charge ionique (§ 4.1). Puis nous nous intéresserons à l'influence des caractéristiques de la cible et de la masse sur la moyenne et l'écart-type des distributions en énergie. Ces informations seront comparées aux données bibliographiques. De façon similaire, nous calculerons la moyenne et l'écart-type des distributions en charge ionique. Ces valeurs expérimentales seront comparées à deux modèles semi-empiriques : celui de Nikolaev et celui de Shima (§ 4.3). La fin de ce chapitre est consacrée à l'étude des corrélations entre énergie cinétique et charge ionique (§ 4.4). Nous verrons que l'existence de ces corrélations modifie le calcul des rendements.

4.1 La méthodologie d'analyse des distributions en énergie cinétique et en charge ionique

4.1.1 Exemples de distributions en énergie cinétique

Une distribution en énergie s'obtient avec le spectromètre Lohengrin en fixant la masse A et la charge ionique q et en faisant varier l'énergie cinétique E . Par exemple, la distribution 136/21/E est réalisée à la masse 136 et à la charge ionique 21, avec un pas en énergie de 2 ou 3 MeV. Le pas ne peut guère être plus fin du fait de la dispersion intrinsèque en énergie du spectromètre (voir § 3.2). Positionnée à la sortie historique de l'instrument, la chambre d'ionisation permet d'identifier les produits de fission possédant le même rapport A/q mais des masses A différentes.

Les distributions en énergie dépendent de deux facteurs : de la cible et de la masse. La figure 4.1 présente une mesure de distribution de la masse 136 à la charge ionique 21, pour chaque cible d' ^{233}U employée. Ces cibles possèdent des caractéristiques différentes tant au niveau de leur épaisseur que de leur couverture. On remarque que plus l'énergie moyenne diminue avec l'épaisseur de la cible. Inversement, la largeur de la distribution augmente avec l'épaisseur de la cible. Pour comprendre ce phénomène, il faut s'intéresser au trajet du produit de fission entre sa naissance et le moment où il sort de la cible. Plus la cible est épaisse, plus la distance moyenne de matière traversée par le produit de fission est grande et plus il perdra d'énergie avant d'atteindre le vide du Lohengrin. Cela explique l'énergie moyenne plus basse. D'autre part, la fission peut avoir lieu n'importe où dans la matière fissile. Ainsi dans une cible épaisse, l'éventail de distances de matière à traverser est plus grand que pour une cible mince. Il en résulte une plus grande dispersion dans la quantité d'énergie déposée dans la cible par le produit de fission. Cette dispersion est renforcée par l'hétérogénéité de la surface de la cible. Cela se traduit sur la distribution en énergie par un écart-type plus important.

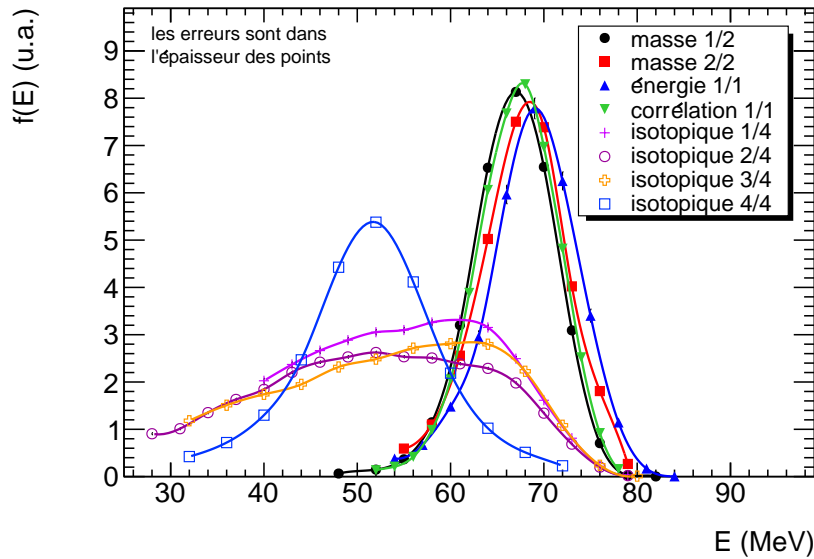


FIGURE 4.1. La distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 pour chacune des cibles d' ^{233}U employées. Les lignes correspondent à des interpolations.

La figure 4.2 correspond aux distributions en énergie de deux masses différentes, 135 et 136, effectuées à la charge ionique 21 avec la même cible. L'énergie moyenne de $A = 136$ est inférieure à celle de $A = 135$ d'environ 1 MeV. L'influence de la masse sur l'énergie moyenne sera étudié dans le paragraphe 4.2.

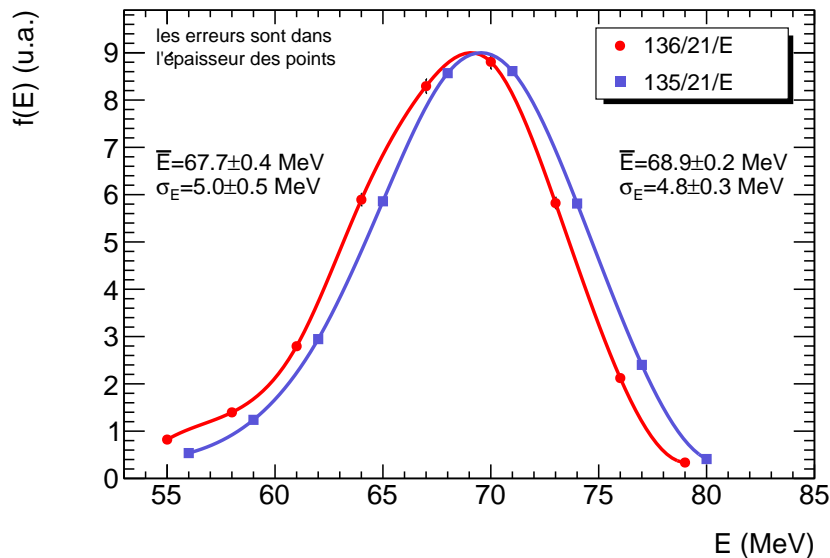


FIGURE 4.2. Les distributions en énergie cinétique des masses 135 et 136, effectuées à la charge ionique 21 avec une cible mince d' ^{233}U . Les lignes correspondent à des interpolations.

4.1.2 Ajustement des distributions en énergie cinétique

L'énergie cinétique est une variable continue. Il faut donc ajuster la distribution pour pouvoir en extraire l'énergie moyenne, l'écart-type ou encore l'aire. Cette dernière donnée est centrale dans le calcul des rendements. Pour suivre l'évolution dans le temps de la combustion de la cible, la distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 a été mesurée de nombreuses fois. Ces mesures répétées fournissent un échantillon intéressant pour tester différentes fonctions d'ajustement : l'interpolation Spline, la Cristall Ball, une distribution normale et la somme de deux distributions normales.

La TSpline3 de ROOT est une interpolation qui permet de passer par les points de mesure ; cependant cette fonction présente non seulement l'inconvénient de ne fournir aucune erreur sur l'aire de la distribution en énergie, mais aussi l'inconvénient de ne faire aucune estimation de l'aire des ailes de la distribution en énergie.

La Cristal Ball cb une distribution gaussienne avec une queue exponentielle. Elle possède quatre paramètres : la normalisation, la moyenne de la gaussienne m_0 , l'écart-type de la gaussienne σ et un paramètre α décrivant l'importance de la queue exponentielle. Elle est définie dans ROOT de la manière suivante : soit la variable $t = (E - \mu)/\sigma$, définie à partir de la variable E et des paramètres μ et σ . Si $\alpha < 0$ alors $t = -t$.

$$cb(t) = \begin{cases} \exp(-\frac{t^2}{2}) & \text{si } t > -|\alpha| \\ \exp(-\frac{|\alpha|^2}{2}) \frac{(n/|\alpha|)^n}{(n/|\alpha| - |\alpha| - t)^n} & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.1)$$

La distribution gaussienne g non-normalisée possède trois paramètres (eq. 4.2), et donc, la somme de deux distributions gaussiennes non-normalisées en possède six (eq. 4.3).

$$g(E) = \frac{I}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp - \frac{(E - \mu)^2}{2\sigma^2} \quad (4.2)$$

$$dg(E) = \frac{I_1}{\sqrt{2\pi}\sigma_1} \exp - \frac{(E - \mu_1)^2}{2\sigma_1^2} + \frac{I_2}{\sqrt{2\pi}\sigma_2} \exp - \frac{(E - \mu_2)^2}{2\sigma_2^2} \quad (4.3)$$

Les fonctions ci-dessus sont ajustées sur des points expérimentaux possédant une erreur uniquement statistique : $N \pm \sqrt{N}$. Ces points expérimentaux suivent une distribution gaussienne, car ils ont été acquis avec un haut taux de comptage ou pendant un long temps de mesure. Par conséquent, le maximum de vraisemblance de l'ajustement est équivalent à appliquer la méthode des moindres carrés. Cette méthode prend comme estimateur des paramètres p_k les valeurs qui minimisent la fonction :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n [th(E_i, p_k) - exp(E_i)] V_{ij}^{-1} [th(E_j, p_k) - exp(E_j)], \quad (4.4)$$

avec $th(E_i, p)$ la valeur théorique et $exp(E_i)$ la valeur expérimentale à l'énergie E_i . V est la matrice de variance covariance des mesures [109].

Si les observations sont indépendantes, ce qui est le cas ici : la matrice V est diagonale et $V_{ii} = \sigma_i^2$. L'équation 4.4 peut ainsi s'écrire :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{th(E_i, p_k) - exp(E_i)}{\sigma_i^2}. \quad (4.5)$$

Ces trois ajustements ont des χ^2 réduits supérieurs à l'unité pour la majorité des distributions en énergie 136/21/E. La somme des deux distributions normales a systématiquement été dotée d'un meilleur χ^2 réduit. C'est la raison pour laquelle notre choix final s'est porté sur cette fonction. Cependant les erreurs fournies sur les paramètres, notamment celle sur l'aire des distributions, sont sous-évaluées par l'ajustement. Pour remédier à ce problème, il a été envisagé d'ajouter une erreur systématique. Ce choix n'était pas concluant, car en modifiant le poids des points, la fonction s'écartait des mesures de hauts rendements. Il a été choisi de corriger l'erreur de l'aire, en multipliant l'écart-type de l'aire totale fournie par ROOT par la racine carrée du χ^2 réduit. Cette méthode a par ailleurs été comparée à son équivalent, soit la réévaluation des erreurs des points en les multipliant par la racine carrée du χ^2 réduit. Cela donne au final les mêmes résultats d'une part pour les paramètres de la fonction d'ajustement et d'autre part pour les erreurs des aires. La figure 4.3 présente l'incertitude relative sur l'aire de la distribution 136/21/E en fonction du χ^2 réduit.

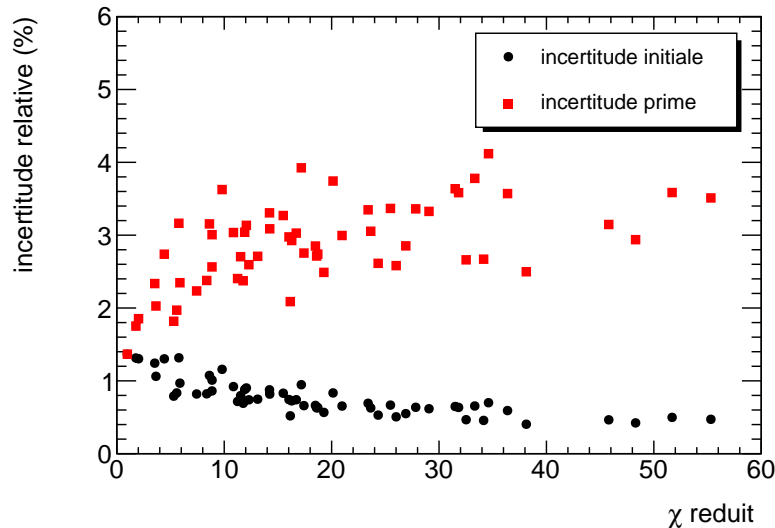


FIGURE 4.3. Incertitude relative sur l'aire de la distribution 136/21/E en fonction du χ^2 réduit. Les ronds correspondent à l'incertitude obtenue initialement avec ROOT. Les carrés correspondent à l'incertitude précédente multipliée par la racine carrée du χ^2 réduit (incertitude prime).

4.1.3 Exemples de distributions en charge ionique

Le spectromètre Lohengrin combiné à une chambre d'ionisation permet d'étudier les distributions en charge ionique en fixant la masse A et l'énergie cinétique E et en faisant varier la charge ionique q , par pas de un. De façon générale, ces distributions sont moins sensibles à l'épaisseur de la cible que celles en énergie. La figure 4.4 présente la distribution en q de la masse 136 pour une cible mince et une cible épaisse.

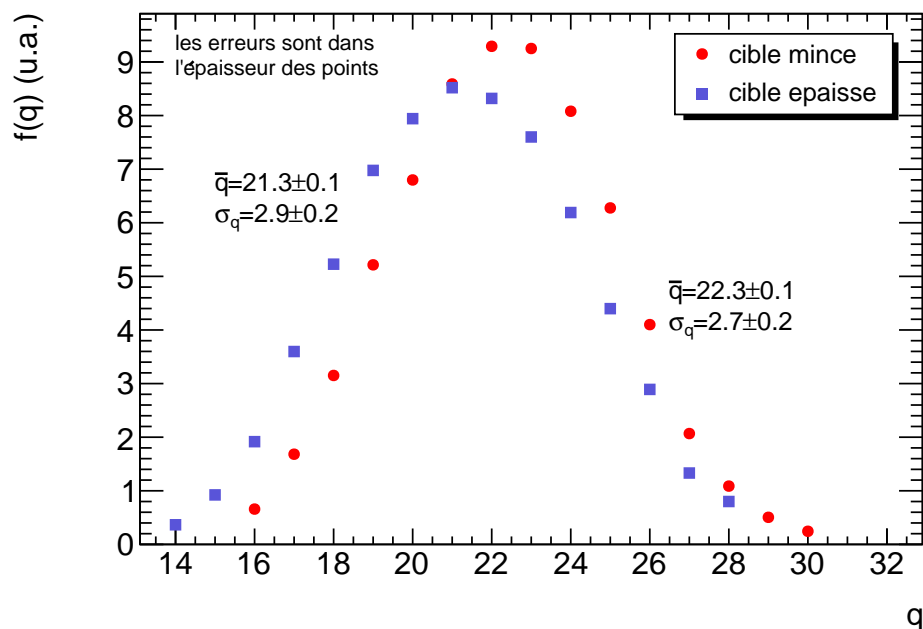


FIGURE 4.4. La distribution en charge ionique des masses 136 avec une cible mince et une cible épaisse

En revanche, les distributions en charges sont fortement dépendantes de la masse considérée. La figure 4.5 présentent les distributions en charge de la masse 136 et de la masse 144. La masse 136 a une forme assez proche d'une distribution gaussienne, alors que la masse 144 présente une composante pour les hautes charges.

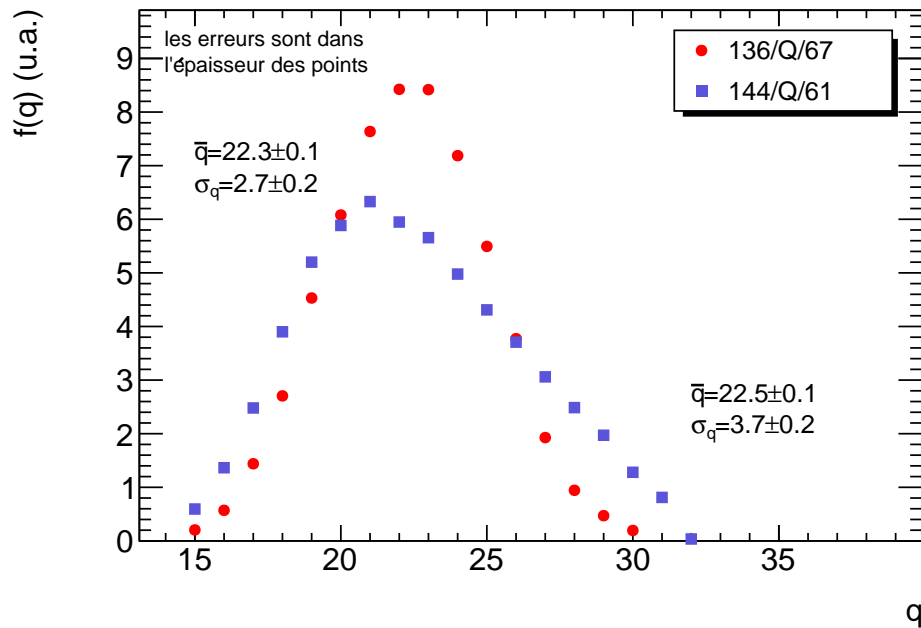


FIGURE 4.5: La distribution en charge ionique des masses 136 et 144

4.1.4 Ajustement des distributions en charge ionique

La distribution de la charge ionique est par nature discrète (les charges sont des nombres entiers). Ainsi le recours à un ajustement n'est pas indispensable, les mesures seules permettent d'évaluer en grande partie la distribution. Cependant cela nécessite de mesurer les points de bas rendements situés dans les ailes de la distribution. Cela implique d'augmenter le temps nécessaire pour mesurer une masse. Ainsi la gamme de charges ioniques mesurées relève d'un compromis entre le temps de mesure et une meilleure connaissance de notre distribution.

La figure 4.6 présente la distribution en charge ionique de la masse 133 mesurée à l'énergie cinétique de 73 MeV. Les charges mesurées sont comprises entre $q = 16$ et $q=28$. Les mesures sont ajustées par la somme de deux gaussiennes. La distribution a été évaluée en prenant les valeurs expérimentales entre $q=16$ et $q=28$ et les valeurs fournies par l'ajustement pour les charges $q \leq 15$ et $q \geq 29$. La somme des valeurs fournies par l'ajustement, représente dans ce cas là moins de 0.1 % de l'ensemble de la distribution.

En résumé, l'évaluation repose en majorité sur les valeurs mesurées, et l'ajustement n'a servi qu'à compléter l'extrémité des ailes. Comme pour l'énergie cinétique, l'ajustement le plus approprié est la somme de deux gaussiennes.

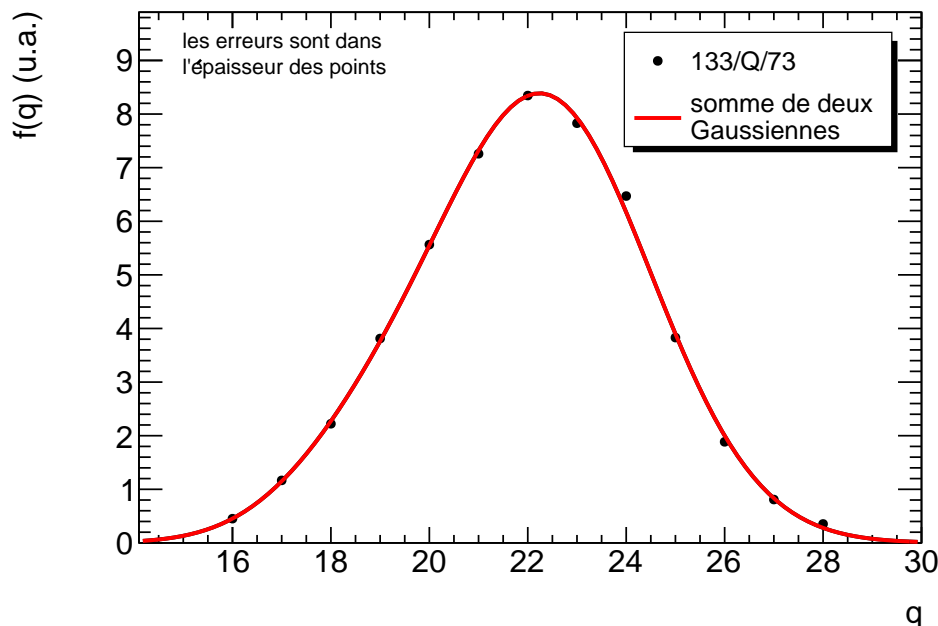


FIGURE 4.6. Distribution en charge ionique de la masse 133 à l'énergie cinétique de 73 MeV.

4.2 Les distributions en énergie cinétique E en fonction de la cible et de la masse

4.2.1 Les distribution en énergie cinétique en fonction de la cible

La cible, placée dans le haut flux de neutrons thermiques fourni par le réacteur de l'ILL, perd sa matière fissile en une semaine environ. Néanmoins, ce temps peut varier de quelques jours à plus de deux semaines. Cette combustion (ou burn-up) est due principalement à deux phénomènes qui sont la perte des éléments fissiles par fission et le "self-sputtering". Le "self-sputtering" correspond à l'éjection de matière par les produits de fission qui sortent de la cible avec l'énergie cinétique acquise lors de la fission. Pour suivre l'évolution de la combustion, la distribution de la masse 136 à la charge 21 a été mesurée à de nombreuses reprises au cours du temps.

L'énergie cinétique moyenne \bar{E} et l'écart-type σ_E de la distribution en énergie $f(E)$ sont définis dans les équations suivantes :

$$\bar{E} = \int_E E f(E) dE \quad (4.6)$$

$$\sigma_E = \left[\int_E (E - \bar{E})^2 f(E) dE \right]^{1/2} \quad (4.7)$$

4.2. Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse

Dans l'annexe B, ces équations sont appliquées à la somme de deux gaussiennes. Il en résulte une expression analytique de \bar{E} et σ_E en fonctions des aires I_1 et I_2 , des moyennes μ_1 et μ_2 et des écarts types σ_1 et σ_2 de chacune des deux gaussiennes.

$$\bar{E} = \frac{I_1 \mu_1 + I_2 \mu_2}{I_1 + I_2} \quad (4.8)$$

$$\sigma_E = \left[\frac{I_1 \sigma_1^2 + I_2 \sigma_2^2}{I_1 + I_2} + \frac{I_1 I_2 (\mu_1 - \mu_2)^2}{(I_1 + I_2)^2} \right]^{1/2} \quad (4.9)$$

La figure 4.7 présente l'énergie moyenne (eq. 4.8) ainsi que l'écart-type (eq. 4.9) de la distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 en fonction du temps. Ces distributions proviennent des mesures faites avec les cibles "masse 1/2" et "masse 2/2".

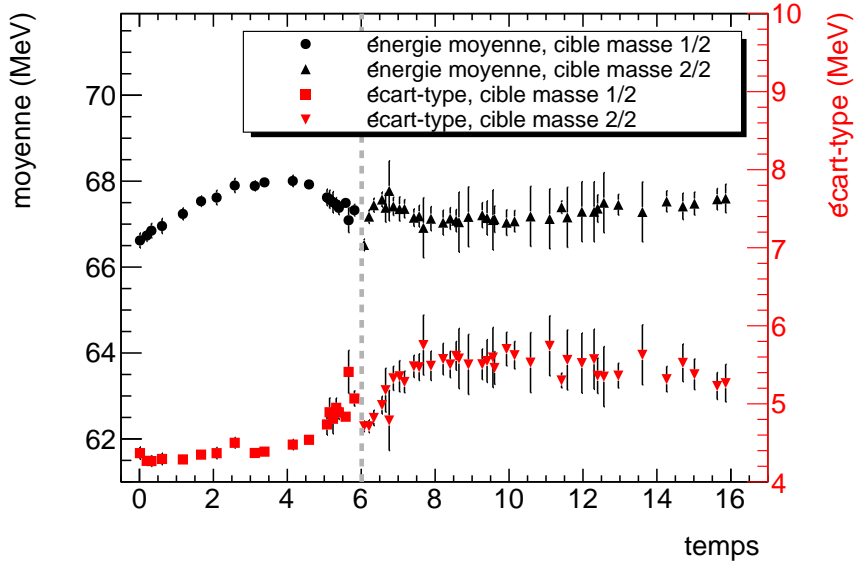


FIGURE 4.7. *Energie moyenne (échelle de gauche) et écart-type (échelle de droite) de la distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 en fonction du temps. Ces distributions ont été mesurées avec les cibles "masse 1/2" et "masse 2/2".*

Avec la cible "masse 2/2", l'énergie moyenne reste relativement constante au cours du temps, alors qu'avec la cible "masse 1/2", l'énergie moyenne augmente jusqu'à atteindre un maximum et puis diminue sur la fin de la vie de la cible. L'explication de ce phénomène réside dans l'évolution des caractéristiques de la cible au cours du temps. La figure 4.8 présente l'évolution qualitative de la matière fissile et de la couverture. Dans un premier temps, l'épaisseur de matière fissile et de couverture diminue (état 1). Les produits de fission ont ainsi moins de matière à traverser pour sortir de la cible. Cela implique une augmentation de l'énergie cinétique moyenne. Dans un second temps, la couche de matière fissile a quasiment

disparu, il ne reste plus que les actinides qui ont été implantés dans le titane par “self-sputtering” (état 2). D’où la possibilité d’une diminution de l’énergie moyenne en fin de vie de la cible.

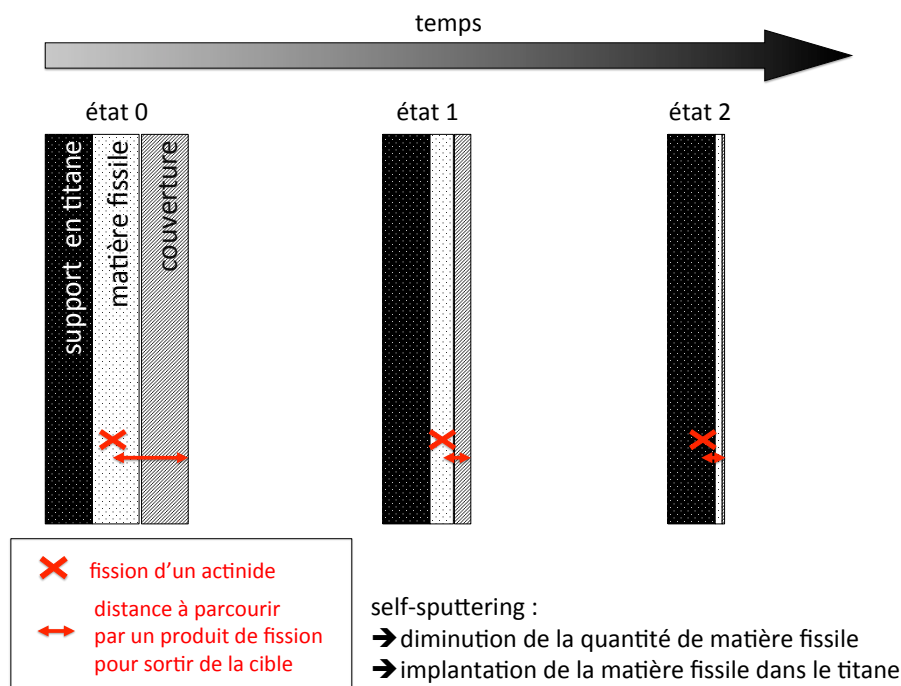


FIGURE 4.8. Evolution qualitative dans le temps du profil de la cible (matière fissile et couverture).

Une expérience dédiée à la mesure des distributions en énergie a été faite avec une cible mince, qui n’a pas été recouverte de Tantale. Sans couverture, sa durée de vie a été d’environ 3 jours. Pour suivre la combustion de la cible (burn-up) au cours du temps, nous avons choisi la distribution en énergie de la masse 136 à la charge ionique 23. Ce suivi va permettre de s’assurer que la combustion de la cible n’altère pas la forme des distributions en énergie.

La figure 4.9 présente les résultats obtenus pour cette distribution au cours du temps. Sur le graphe du haut, trois BU mesurés au début (burn-up 1) au milieu (burn-up 5) et à la fin de l’expérience (burn-up 16). La forme des distributions semble avoir peu évolué entre le début et la fin de la vie de la cible, trois jours plus tard.

L’énergie moyenne n’évolue pas en fonction du numéro de burn-up, ainsi l’énergie moyenne d’une masse A_1 mesurée au début de l’expérience est parfaitement comparable à l’énergie moyenne d’une masse A_2 , mesurée en fin d’expérience.

Le graphe situé en bas correspond à l’écart-type de la distribution en énergie en fonction de leur numéro. L’écart-type reste globalement constant au cours du temps. Il présente néanmoins des variations, qui s’expliquent par sa grande sensibilité aux changements de la forme de la distribution.

4.2. Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse 91

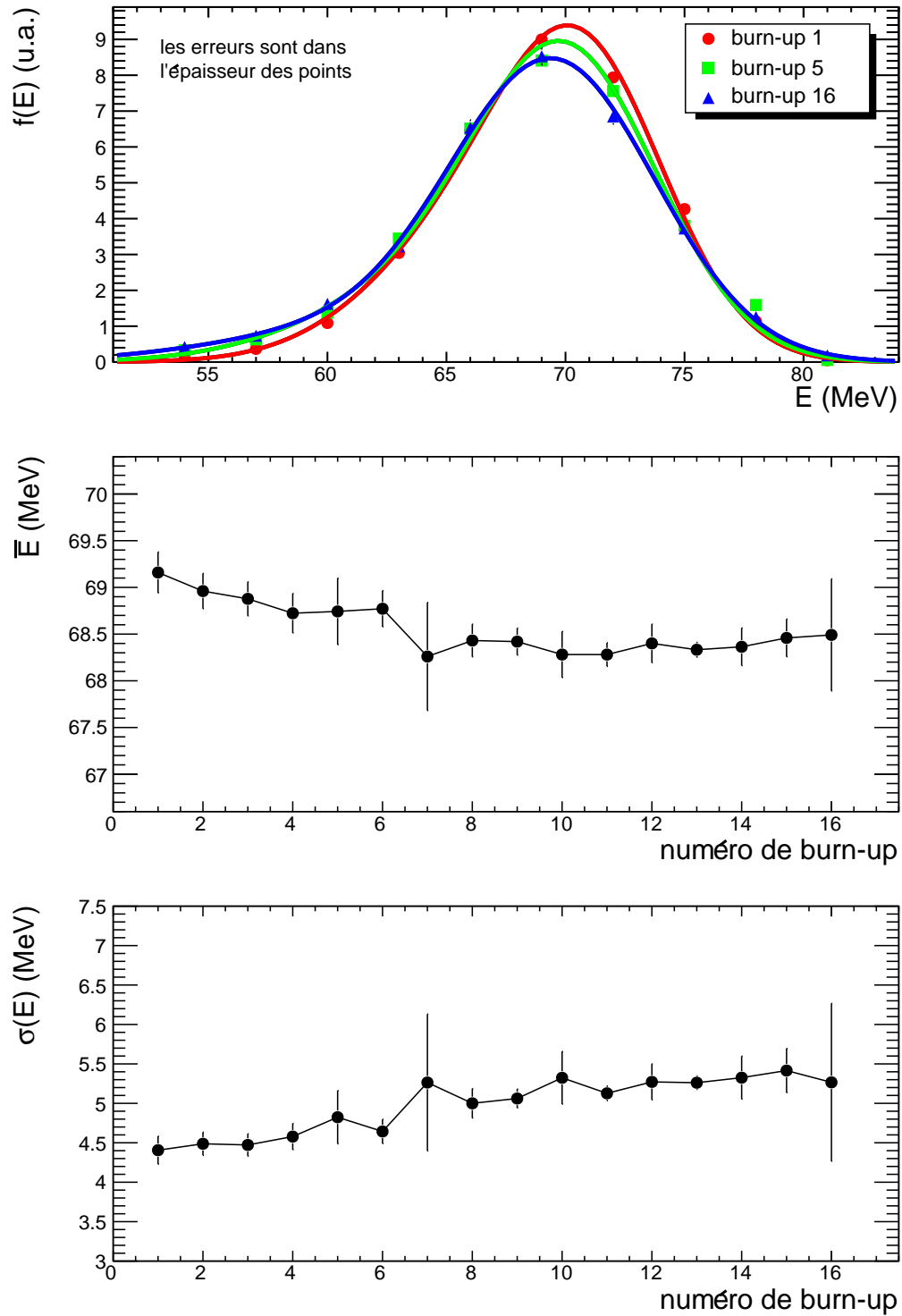


FIGURE 4.9. Différentes distributions en énergie de la masse 136 à la charge 23 mesurées au cours du temps lors de l'expérience dédiée à la détermination des énergies cinétiques. Les résultats sont présentés sans correction de perte d'énergie dans la cible.

Des simulations Monte Carlo de perte d'énergie des produits de fission dans la cible ont été réalisées à l'aide du code SRIM [107] afin notamment de mieux comprendre et de quantifier l'effet du phénomène de combustion de la cible au fil des jours, schématisé dans la figure 4.8, et de corriger les valeurs des énergies moyennes mesurées.

Pour ce faire, la géométrie de la cible "masse 1/2" a été simulée, en procédant à un échantillonnage de la portion de matière fissile en dix éléments afin d'obtenir la perte d'énergie d'un produit de fission créé en début de cible, en milieu de cible ou en fin de cible (cf. fig 4.10). Le but premier de cette subdivision étant d'estimer l'élargissement de la distribution induit par cet effet.

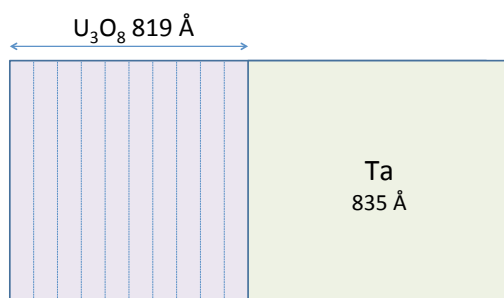


FIGURE 4.10: Schéma de la cible "masse 1/2".

La figure 4.11 présente les résultats d'une telle simulation pour un produit de fission de la masse 136 émis à 70 MeV par une fission ayant eu lieu aux dix positions décrites. Les dix distributions obtenues, correspondant à une épaisseur de matière fissile traversée différente, induisent une perte d'énergie de 2 à 3 MeV sur les 70 MeV initiaux, avec un écart-type compris entre 0.6 et 0.9 MeV.

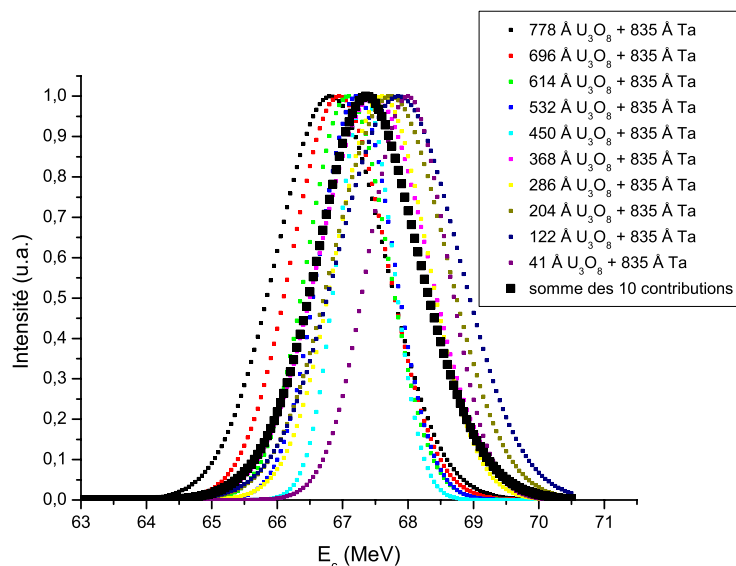


FIGURE 4.11. Distribution en énergie pour différentes épaisseurs de cible traversées par un produit de fission de masse 136 ayant une énergie cinétique initiale de 70 MeV.

4.2. Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse

Ces dix positions étant considérées équiprobables, la fission pouvant se produire autant en début qu'en fin de cible, la somme de ces contributions donne une distribution gaussienne d'écart-type 0.81 MeV. Cette valeur quantifie donc au final l'élargissement de la distribution en énergie dû à la traversée de la cible par les produits de fission, et doit être comparée aux 4.5 à 5 MeV de largeur de distribution en énergie cinétique mesurées pour la cible "masse 1/2" (cf fig. 4.7).

Ce résultat montre que l'élargissement dû à la perte d'énergie dans la cible n'est pas prépondérant, ainsi la largeur d'une distribution en énergie cinétique découle principalement de la production par la fission, et se retrouve peu influencée par l'épaisseur de la cible. Ce résultat est en accord avec le même genre d'étude réalisée dans [62].

De telles simulations ont été réalisées pour l'ensemble des masses mesurées avec la cible "masse 1/2". L'énergie initiale des produits de fission simulés couvre l'ensemble des distributions en énergie cinétique respectives pour chaque masse. La figure 4.12 montre la perte d'énergie simulée des produits de fission de masses 128, 134 et 143, et la figure 4.13 présente la perte d'énergie moyenne pour chaque masse.

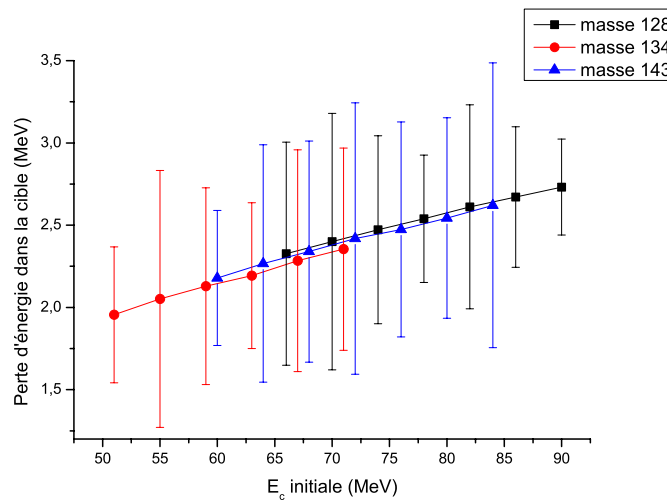


FIGURE 4.12. La perte d'énergie dans la cible en fonction de l'énergie initiales des produits de fission pour les masses 128, 134 et 143.

Un des buts de ces simulations était d'arriver au final à corriger les énergies cinétiques moyennes mesurées pour chaque masse de la perte d'énergie dans la cible. Cependant l'évolution non maîtrisée de l'épaisseur de la cible au fil des jours complique fortement ce travail. Il est intéressant toutefois de noter la cohérence des valeurs simulées avec l'évolution de l'énergie cinétique moyenne mesurée au fil des jours. La simulation donne en effet environ 2 MeV de perte d'énergie d'un produit de fission de masse 136 dans le tantale, ce qui correspond tout à fait à l'augmentation de l'énergie moyenne au cours des quatre premiers jours d'utilisation de la cible "masse 1/2" (cf fig. 4.7). La diminution de cette énergie moyenne pour les cinquième et sixième jours peut quant à elle être attribuée au phénomène d'implantation dans le titane, qui correspond à l'état 2 décrit sur la figure 4.8.

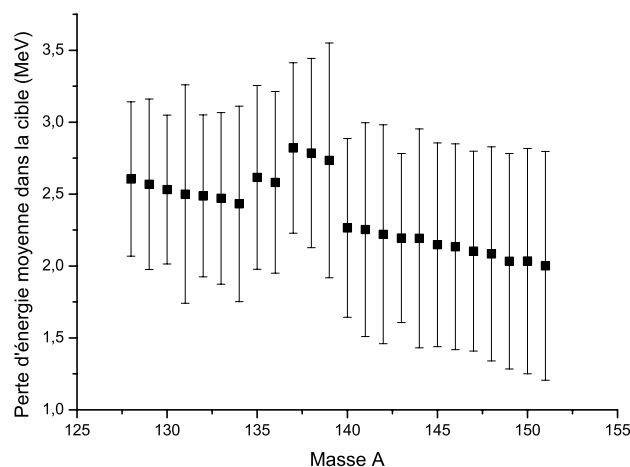


FIGURE 4.13: La perte d'énergie moyenne en fonction de la masse.

Au final, ces simulations montrent dans un premier temps la faible contribution de la perte d'énergie des produits de fission dans la cible à l'élargissement des distributions en énergie cinétique. Elles sont par ailleurs indispensables pour corriger les énergies moyennes mesurées de la perte d'énergie dans la cible. Cependant ce dernier travail nécessite de prendre en compte l'évolution de l'épaisseur de la cible au fil des jours, ce qui peut être réalisé via l'ajustement de l'évolution de l'énergie moyenne mesurée, mais n'est pas inclus dans ce travail de thèse.

4.2.2 Les distributions en énergie cinétique en fonction de la masse

La figure 4.14 présente les distributions en énergie des masses 87, 93, 127, 137, 139 et 150, obtenues avec la cible mince d'uranium ^{233}U non recouverte de Tantale (cible "énergie 1/1"). Les masses 87 et 93 appartiennent au pic léger et les masses 127, 137, 139 et 150 appartiennent au pic lourd. Contrairement aux cinq autres masses présentées ici, qui ont été ajustées avec la somme de deux gaussiennes, la masse 150 a pu être ajustée avec une seule gaussienne.

La figure 4.15 présente l'énergie cinétique moyenne \bar{E} en fonction de la masse A des produits de fission. Ces énergies ont été mesurées avec trois cibles : "masse 1/2", "masse 2/2" et "énergie 1/1". Ces données n'ont pas été corrigées des pertes en énergie dans la cible, ce qui explique que les mesures provenant de la cible "énergie 1/1" soient en moyenne 1.1 MeV au-dessus des mesures effectuées avec les cibles "masse" qui sont recouvertes d'une évaporation de Ta ($148 \mu\text{g}/\text{cm}^2$).

4.2. Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse

Comme la plupart des actinides cette courbe présente trois comportements distincts. Au niveau des masses du pic léger, l'énergie cinétique moyenne décrit un plateau. Au niveau des masses du pic lourd, elle diminue d'environ d'environ 1 MeV par unité de masse, avec un maximum obtenu autour de la masse 130. Enfin elle présente un creux entre les masses 103 à 128, qui correspondent à la fission symétrique.

Lors de la fission, une partie de l'énergie de liaison du noyau composé est transformée en énergie cinétique. Cette énergie cinétique E_{tot} est partagée entre les deux fragments en respectant la conservation de l'énergie cinétique (eq. 4.10), de la masse (eq. 4.11) et de la quantité de mouvement (eq. 4.12).

$$\text{conservation de l'énergie cinétique : } E_{tot} = E_1^* + E_2^* \quad (4.10)$$

$$\text{conservation de la masse : } A_{nc}^* = A_1^* + A_2^* \quad (4.11)$$

$$\text{conservation de la quantité de mouvement : } A_1^* E_1^* = A_2^* E_2^* \quad (4.12)$$

A_{nc}^* est la masse du noyau composé. A_i^* et E_i^* sont la masse et l'énergie cinétique du fragment de fission i .

Il en résulte que l'énergie cinétique E_i^* du fragment i est inversement proportionnelle à sa masse A_i^* , pour une énergie cinétique E_{tot} donnée :

$$E_i^* = \frac{A_{nc} - A_i^*}{A_{nc}} E_{tot} \quad (4.13)$$

Cependant la courbe que nous avons décrite précédemment n'est pas une droite affine décroissante. Cela laisse supposer que l'énergie cinétique totale E_{tot} varie en fonction du système (A_1^*, A_2^*) considéré. La figure 4.16 présente E_{tot} en fonction de la masse A avant évaporation des neutrons de la fission $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ [54]. L'énergie cinétique totale est maximale entre les masses 129 et 132, cela correspond sur le pic léger aux masses allant de 102 à 105. Elle décroît ensuite pour les masses supérieures de façon régulière (μ compris entre 133 et 155), l'équivalent sur le pic léger est une énergie cinétique totale qui croît de façon régulière pour μ compris entre 79 et 101. Enfin, dans la région symétrique ($117 \leq \mu \leq 128$), l'énergie cinétique totale présente une diminution quasiment équivalente à la fission très asymétrique.

Ces variations dans l'énergie cinétique totale sont la conséquence directe de la forme du noyau composé au moment de la scission. À ce moment là, plus les fragments naissant sont déformés, plus leur centre de gravité est éloigné l'un de l'autre. Plus la distance qui les sépare est grande, plus l'énergie potentielle de répulsion coulombienne est faible. L'énergie potentielle est transformée en énergie cinétique quand les fragments s'éloignent l'un de l'autre. Pour résumer, la déformation des fragments diminue l'énergie cinétique totale. Ainsi la fission symétrique et la fission très asymétrique donnent naissance à des fragments très déformés.

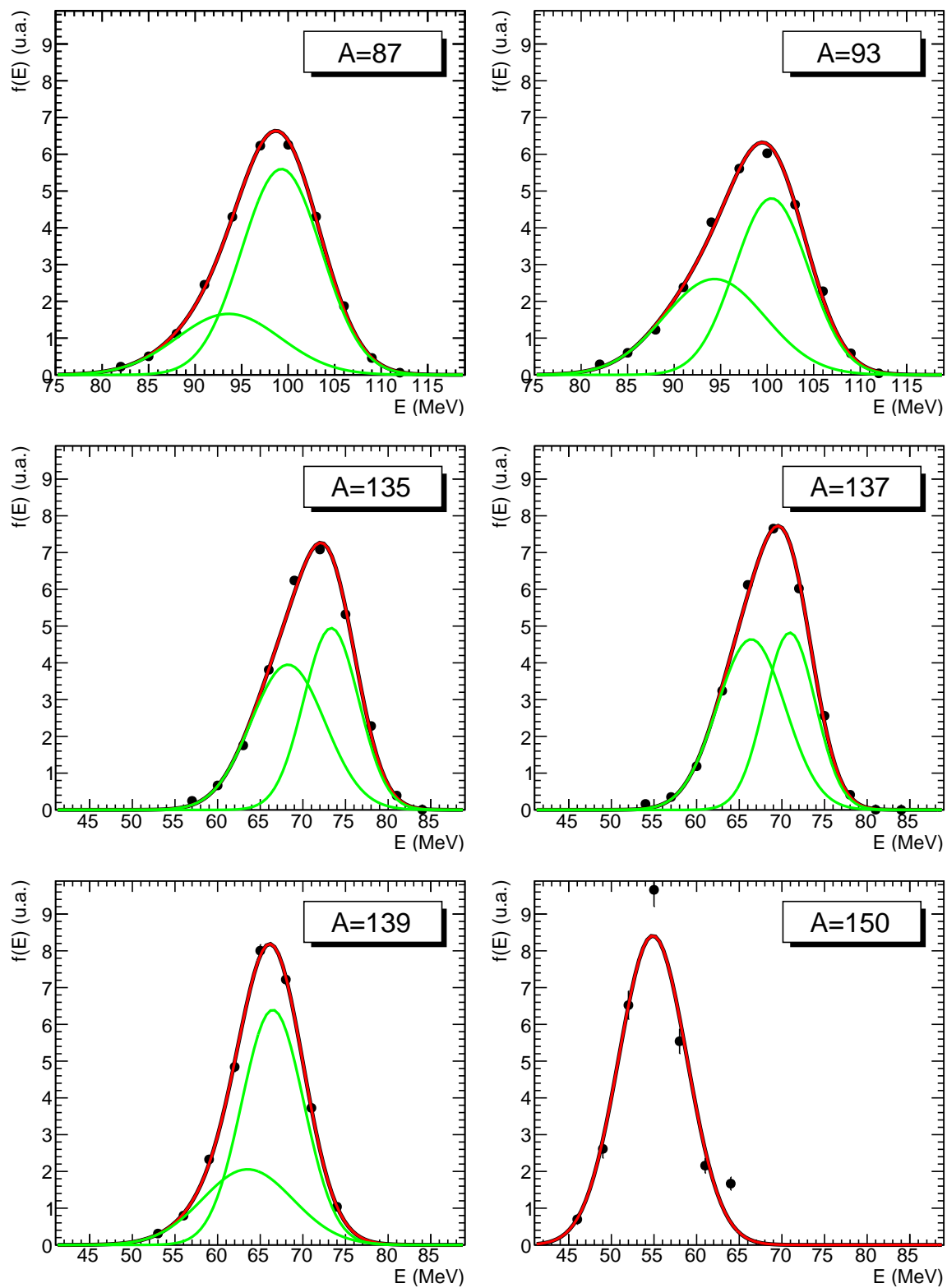


FIGURE 4.14. Les distributions en énergie des masses 87, 93, 135, 137, 139 et 150. Les erreurs sont dans l'épaisseur des points.

4.2. Les distributions en énergie cinétique en fonction de la cible et de la masse 97

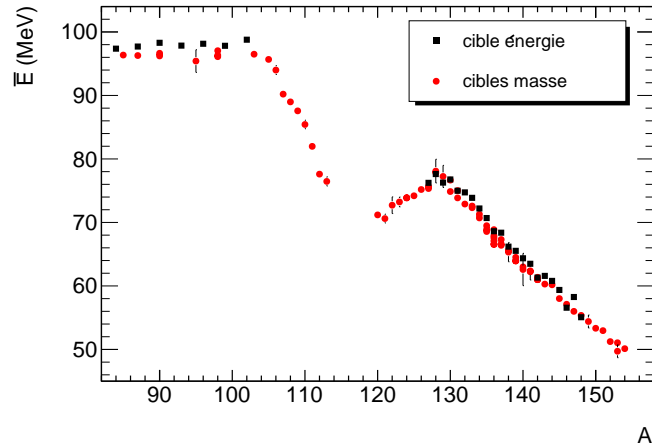


FIGURE 4.15. Énergies moyennes en fonction de A , mesurées avec les cibles “énergie 1/1”, “masse 1/2” et “masse 2/2”. Les données ne sont pas corrigées de la perte d’énergie dans la cible.

En conclusion, les trois comportements observés sur la figure 4.15 sont la résultante de deux mécanismes : la conservation de la quantité de mouvement et la variation de l’énergie cinétique totale. Pour le pic léger, la décroissance due à la conservation de la quantité de mouvement est compensée par l’augmentation de l’énergie cinétique totale. Pour le pic lourd, les deux mécanismes s’ajoutent et il en résulte la décroissance de l’énergie cinétique en fonction de la masse. Au niveau de la symétrie, le creux lié à l’énergie cinétique totale est toujours visible, même si sa forme est un peu modifiée par la conservation de la quantité de mouvement.

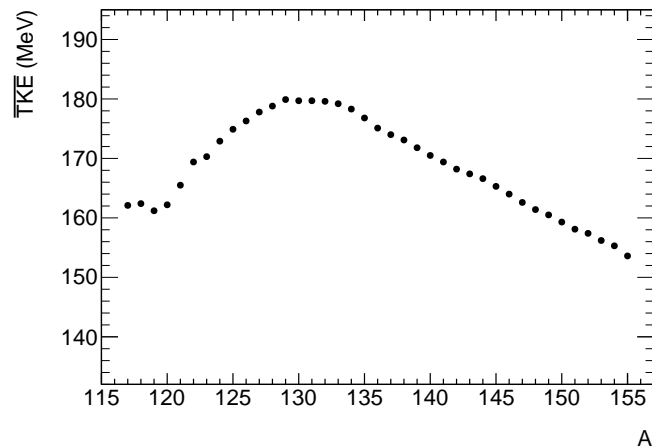


FIGURE 4.16. Énergie cinétique totale $\overline{\text{TKE}}$ (“Total Kinetic Energy”) avant l’émission des neutrons prompts en fonction de la masse A des fragments de fission de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$. Ces données ont été obtenues par H. Baba et al. [54] en appliquant la méthode de Schimtt à des mesures $2E$.

La figure 4.17 présente l'énergie moyenne en fonction de la masse des produits de fission mesurés avec la cible fine. Ces résultats ne sont pas corrigés des pertes d'énergie dans la cible. Ces données sont comparées aux mesures de H. Faust et al. [110], H. Baba et al. [54] et à celles obtenues avec le code GEF (version février 2013) [70].

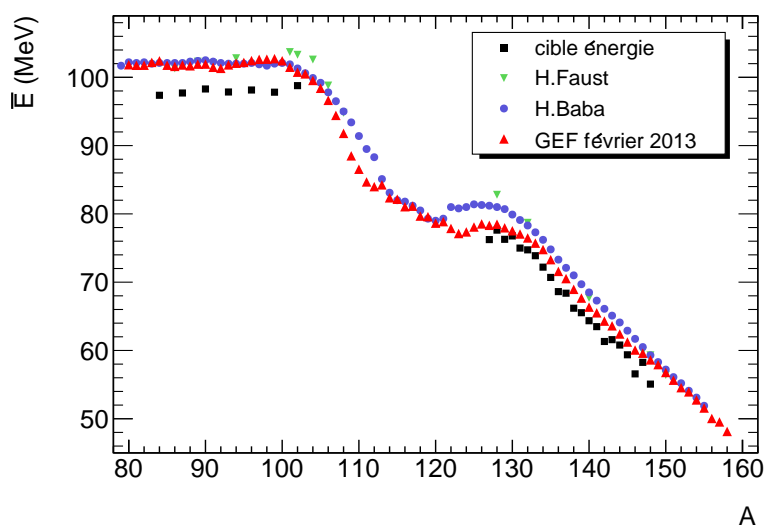


FIGURE 4.17: *Energie moyenne en fonction de la masse des produits de fission.*

Les mesures de H. Faust et al. ont été réalisées auprès du spectromètre Lohengrin, avec une cible de $65 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ recouverte d'une évaporation de Tantale $151 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, c'est-à-dire une cible très comparable aux cibles "masse". Néanmoins ces données sont en moyenne de 4.0 MeV supérieures aux mesures faites avec la cible "énergie". Cette différence s'explique en lisant l'article par le fait qu'une correction des pertes en énergie dans la cible a été évaluée à 4.0 à 4.6 MeV. Par ailleurs, cette correction est supérieure à ce que prévoit SRIM avec une correction inférieure à 3 MeV.

Les mesures de H. Baba et al. correspondent énergies cinétiques pré-émission neutrons prompts en fonction de la masse des fragments de fission. Ces données ont été obtenues avec la méthode 2E suivie de la procédure de Schmitt.

Les données fournies par le code GEF correspondent aux noyaux après l'émission des neutrons prompts.

La figure 4.18 présente l'écart-type de la distribution en énergie cinétique en fonction de la masse des produits de fission.

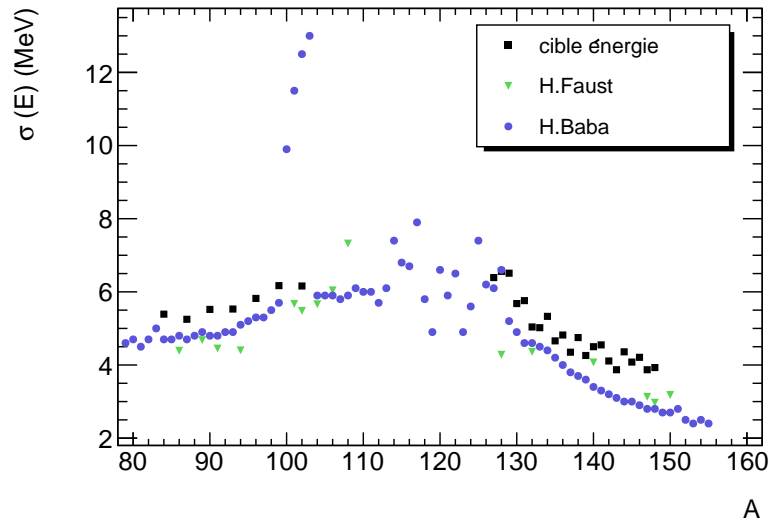
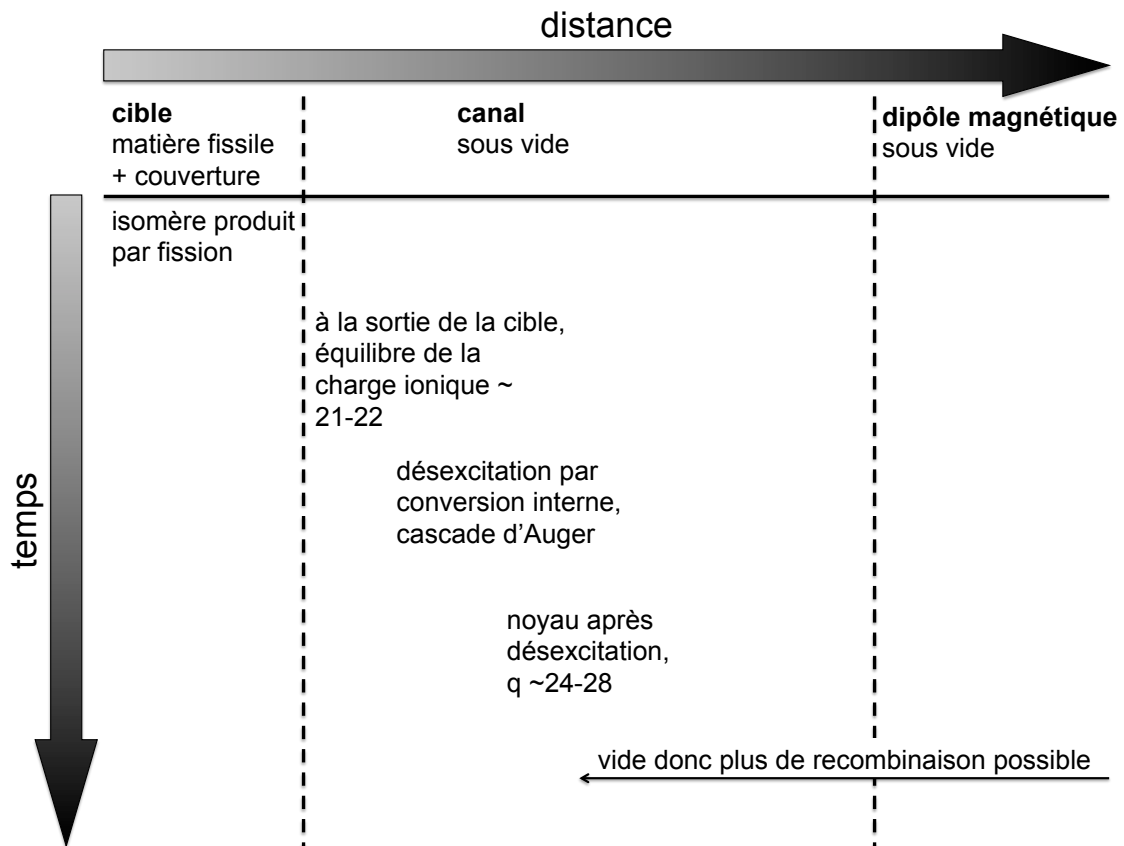


FIGURE 4.18: *Ecart-type de la distribution en énergie en fonction de la masse*

4.3 Les distributions en charge ionique en fonction de la masse

Cette composante s'explique par la présence d'isomères nanosecondes dans la masse [111, 112, 113, 62]. La figure 4.19 présente le déroulement dans le temps et dans l'espace de la perte d'électrons par un isomère nanoseconde. Après être sorti de la cible et avant l'aimant du spectromètre, l'isomère peut se désexciter par conversion interne. L'électron éjecté appartient aux couches profondes (K ou L) du cortège électronique. L'espace vacant sur la couche interne est remplie par un électron d'une couche supérieure. Ce phénomène s'accompagne soit de l'émission d'un rayon-X, soit de l'éjection d'un électron, appelé électron d'Auger [60]. Étant dans le vide, l'isomère ne peut pas acquérir de nouveaux électrons et conserve donc sa nouvelle charge ionique jusqu'à la sortie du spectromètre.

Le cas de la masse 140 illustre particulièrement bien la présence d'une contribution à haute charge. Les figures 4.20 et 4.21 présentent les distributions en charge de la masse 140, ainsi que celles du xénon ^{140}Xe et du césium ^{140}Cs . La contribution à haute charge ionique de la distribution de la masse 140 s'explique par la présence d'un isomère nanoseconde qui décroît sur le ^{140}Cs .

FIGURE 4.19: *Déexcitation par conversion interne.*

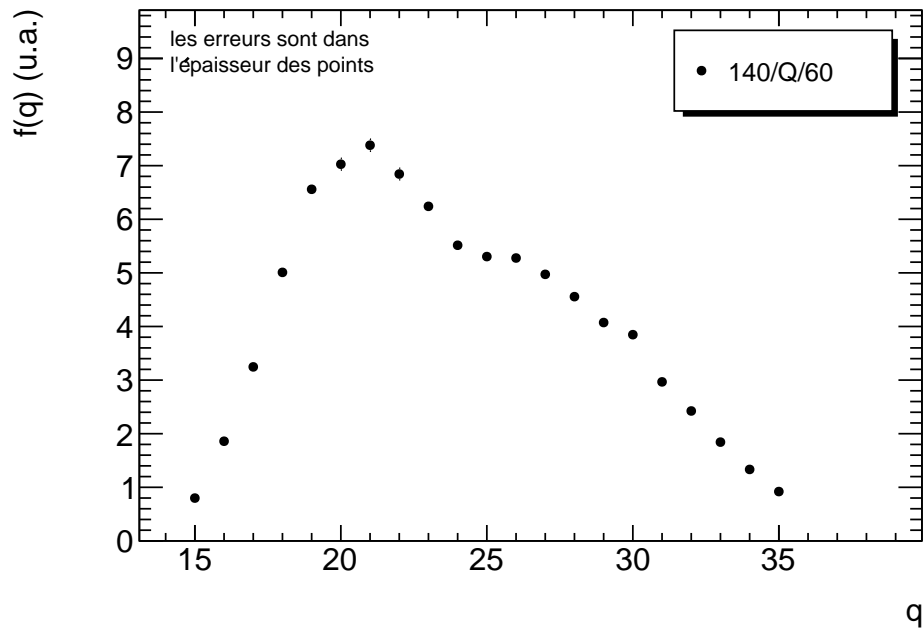


FIGURE 4.20. La distribution en charge ionique de la masse 140 à l'énergie cinétique de 60 MeV.

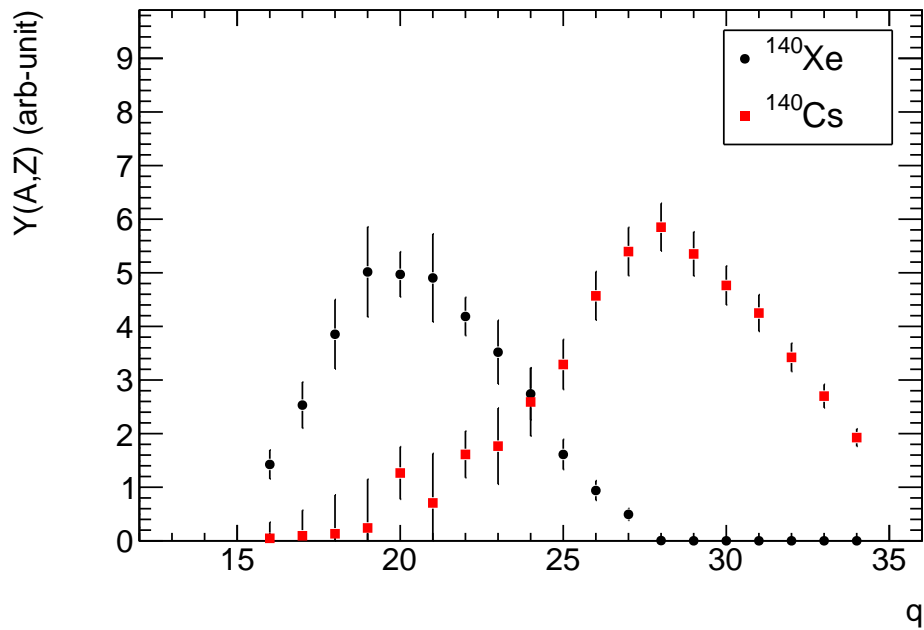


FIGURE 4.21. Les distributions en charge ionique des isotopes ^{140}Xe et ^{140}Cs à l'énergie cinétique de 60 MeV. Ces données proviennent des mesures obtenues par spectrométrie γ .

4.3.1 Evolution de la distribution en charge ionique avec la combustion de la cible

La figure 4.22 présente la première et la troisième distributions en charge de la masse 136 effectuée sur la première cible.

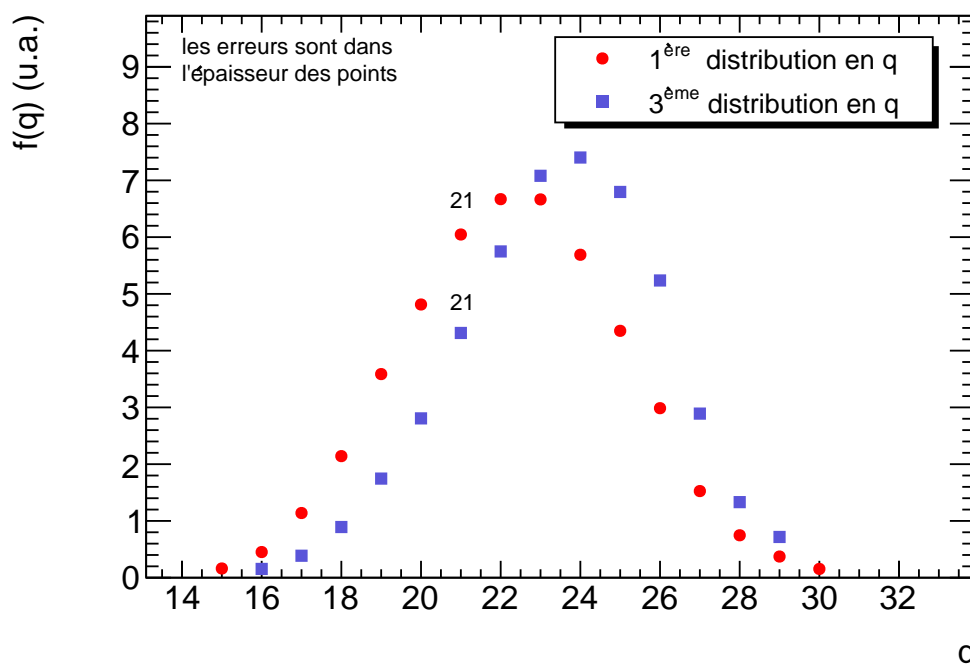
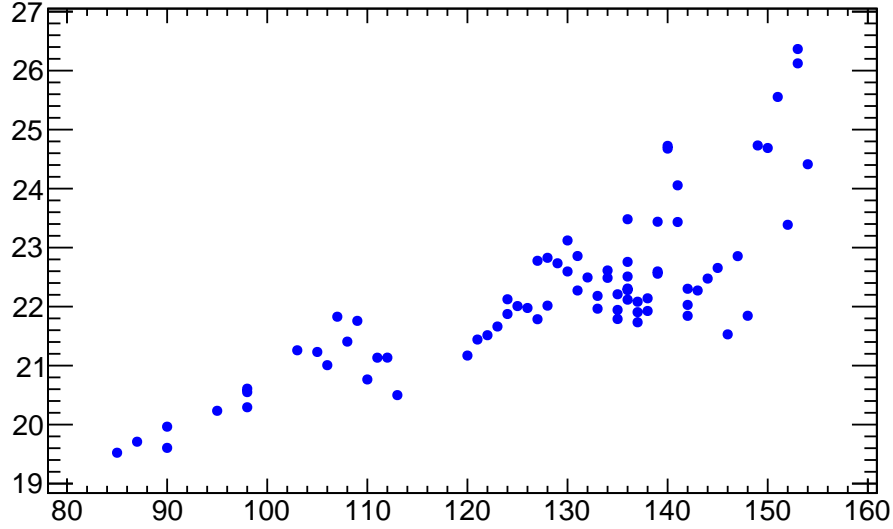


FIGURE 4.22. La première et la troisième distributions en q de la masse 136 mesurées avec la cible 1. Ces deux distributions ont été effectuées respectivement aux énergies de 67 MeV et de 68 MeV. Cette faible différence d'énergie n'explique pas la cause de la dérive de la charge.

4.3.2 Charge moyenne et largeur des distributions

Pour caractériser ces distributions, la charge moyenne est tracée en fonctions de la masse sur la figure 4.23. Ces résultats sont ensuite comparés à deux modèles empiriques : celui de V.S. Nikolaev (1968) et celui de K. Shima (1982).

FIGURE 4.23. La charge ionique moyenne en fonction de la masse A des produits de fission.

4.3.3 Le modèle de V.S. Nikolaev

Le modèle de V.S. Nikolaev [114] s'appuie sur différents travaux et mesures, notamment ceux de H. D. Betz [115]. Ce modèle est une formule semi-empirique qui donne la moyenne \bar{q} et la largeur σ_q de la distribution en charge ionique pour un faisceau d'ions lourds ($Z \geq 20$) après la traversée d'un solide. Cette formule est exprimée dans la publication de V.S. Nikolaev en fonction de la vitesse v , mais en posant $E = (1/2)Av^2$ avec E l'énergie cinétique et A la masse, il est possible d'obtenir la charge moyenne \bar{q} et l'écart type σ_q en fonction de A (en uma), E (en MeV) et Z (eq. 4.14).

$$\begin{cases} \bar{q}(A, E, Z) = Z \left[1 + \left(3.86 \sqrt{E/A} / Z^\alpha \right)^{-1/k} \right]^{-k} \\ \sigma_q(A, E, Z) = \sigma_0 \left\{ \bar{q} \left[1 - (\bar{q}/Z)^{1/k} \right] \right\}^{1/2} \end{cases} \quad (4.14)$$

Les paramètres proposés par V.S. Nikolaev sont : $\alpha = 0.45$, $k = 0.6$ et $\sigma_0 = 0.5$.

4.3.4 Le modèle de K. Shima

Ce modèle reprend le travail de V.S. Nikolaev pour y inclure les résultats de nouvelles expériences. Outre les paramètres déjà pris en compte dans le précédent modèle, le modèle de K. Shima [116] inclut le numéro atomique de l'ion et de la matière traversée Z_c .

$$\bar{q}(A, E, Z) = Z \left[1 - \exp(-1.25X + 0.32X^2 - 0.11X^3) \right] \left[1 - 0.0019(Z_c - 6)\sqrt{X} + 0.00001(Z_c - 6)^2 X \right] \quad (4.15)$$

$$\text{avec } X = \frac{\sqrt{2E/A}}{3.6 \cdot 10^8 (\text{cm/s}) Z^{0.45}} \quad (4.16)$$

Dans notre cas, la matière traversée est celle de la cible, composée d' ^{233}U qui possède une charge nucléaire Z_c égale à 92.

La figure 4.24 présente les résultats calculés avec les modèles de V.S. Nikolaev et de K. Shima ainsi que les résultats expérimentaux mesurés avec le spectromètre Lohengrin.

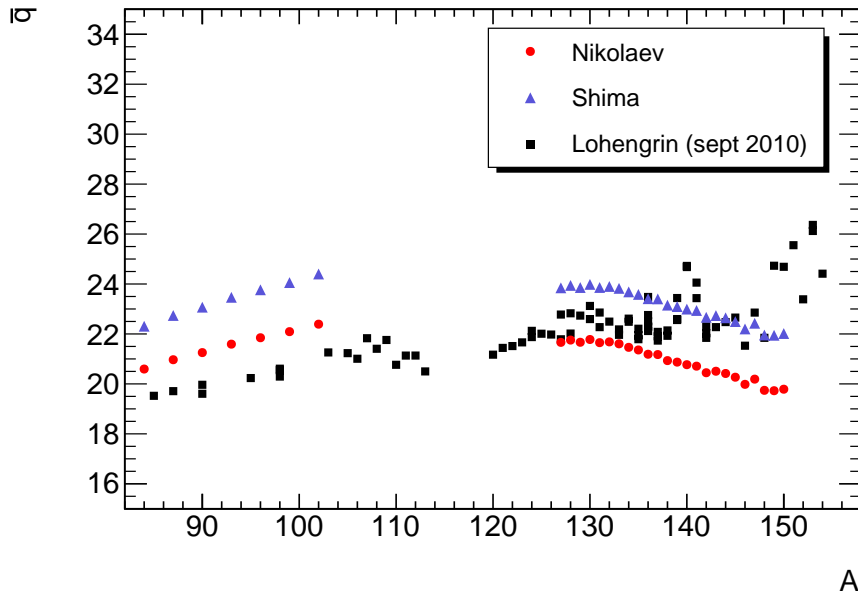


FIGURE 4.24. Comparaison des modèles de Shima et de Nikolaev aux données expérimentales

Les mesures effectuées sur le spectromètre Lohengrin ont permis de déterminer une charge ionique moyenne par masse $\bar{q}(A)$. Afin de comparer ces données aux modèles, la charge nucléaire moyenne \bar{Z} et l'énergie cinétique moyenne \bar{E} ont été évaluées pour chaque masse.

La charge nucléaire moyenne $\bar{Z}(A)$ est calculée à partir des rendements isotopiques $Y(A, Z)$ de la librairie JEFF-3.1.1 (eq. 4.17).

$$\bar{Z} = \frac{\sum_i Z_i Y(A, Z_i)}{\sum_i Y(A, Z_i)} \quad (4.17)$$

L'énergie cinétique moyenne $\bar{E}(A)$ provient des données mesurées sur le spectromètre Lohengrin avec une cible sans couverture (§ 4.2)

Les calculs donnent le bon ordre de grandeur. Cependant, la baisse de la charge moyenne en fonction de la masse A au niveau du pic lourd, prédite par les modèles, n'est pas présente dans les données expérimentales. Cela peut s'expliquer par la présence d'isomères nanosecondes qui introduisent une contribution à haute charge ionique.

Afin d'interpréter les charges ioniques mesurées et les modèles dans la région des produit de fission lourd, il est intéressant d'étudier les distributions en charge par isotopes. Les mesures obtenues par spectrométrie gamma associées à un nucléide (A, Z) (cf ch. 6 et annexe G) présentent des distorsions importantes d'un isotope à l'autre au sein d'une même masse. Une analyse bayésienne par composantes gaussiennes de ces distributions en charge a permis d'interpréter ces déformations comme une conséquence du rapport de populations entre des états isomères de très courte durée de vie (de quelques ps à quelques ns) et l'état fondamental [117, 118]. Ces états isomères de très faible énergie d'excitation (quelques centaines de keV) peuvent avoir une probabilité non-négligeable de désexcitation par conversion interne, perturbant ainsi l'équilibre de la charge ionique établi à la sortie de la cible d'actinide (cf fig. 4.19).

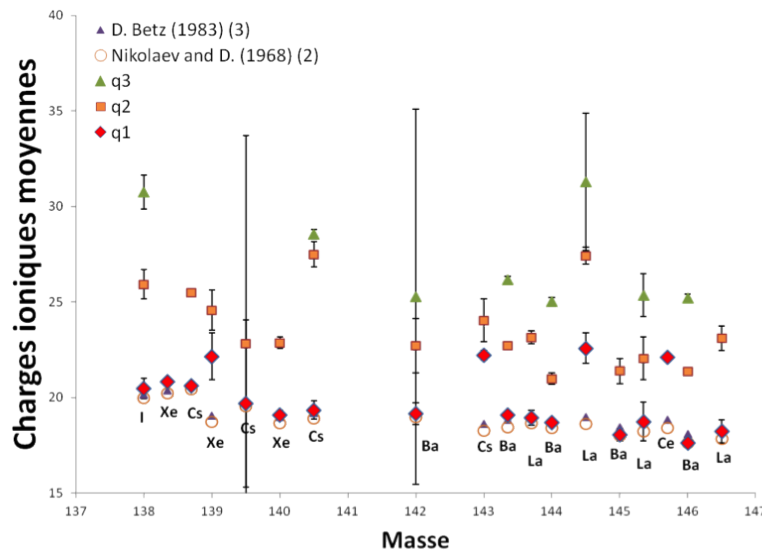


FIGURE 4.25. Comparaison des charges moyennes déconvoluées (sans contrainte) pour 18 isotopes dans la région des produits de fission lourds. On observe une très bonne adéquation entre les modèles de H.D.Betz ou V.S.Nikolaev et l'état de charge moyenne le plus bas (extrait de [117]).

Ces rapports de populations dépendent fortement de la distribution en moment angulaire induite par la fission et de l'état de spin-parité de l'état isomère. À l'issue de la cascade de désexcitation prompt d'un noyau, pour des états excités faiblement peuplés, on s'attend à ce que la déformation de la distribution en charge ionique soit faible. À l'inverse un rapport de population en faveur de l'état isomère aura de grandes chances de déplacer les distributions vers les grandes charges si la désexcitation se fait par conversion interne. La figure 4.25 présente les charges moyennes déconvoluées pour 18 isotopes du pic lourd. Ces résultats ont

été obtenus sans imposer aucune contrainte sur l'ajustement gaussien. On constate une très bonne adéquation entre les charges ioniques calculées par Nikojev [114] ou Betz [119] et l'état de charge le plus faible (points rouges). Cet état de charge est associé à la formation de l'ion dans l'état fondamental ou à la désexcitation de l'état isomère par transition électromagnétique. Seuls quatre isotopes ne présentent pas un état de charge prévu par les modèles. Cela pourrait s'interpréter comme une très faible production de ce noyau dans l'état fondamental par la fission thermique.

Interprétation de la distribution en charge ionique du ^{140}Xe : La figure 4.26 présente le résultat de la déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{140}Xe [118]. On obtient un état de charge moyen le plus bas de 19.38 ± 0.38 à comparer 18.68 selon V.S. Nikolaev et al. De plus, la largeur de ce premier mode est de 2.1 ± 0.2 à comparer à 1.96 selon le même modèle. Dans la base de données évaluées ENSDF, si l'on cherche les désexcitations par conversion interne dont la probabilité est supérieure à 1 %, on trouve seulement deux états responsables de ces transitions de charge : l'isomère à 834.3 keV (16 ps) et celui à 376.7 keV (70 ps). La multiplicité des cascades pour ces transitions est égale à 2, ce qui se traduit par la prédiction de trois charges ioniques moyenne différentes (trois modes) :

- la charge de l'ion correspondant à l'état fondamental,
- la charge correspondant à une seule transition par conversion interne,
- la charge correspondant à deux transitions par conversion interne.

L'analyse des différents ajustements montre que la déconvolution la plus probable correspond à trois modes gaussiens. Cela permet de conclure que les modèles de V.S. Nikolaev ou H.S. Betz sont crédibles et de rejeter le modèle de K. Shima.

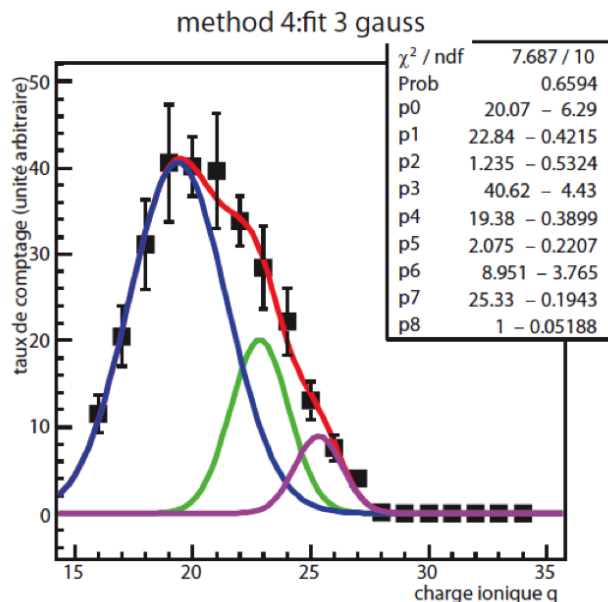


FIGURE 4.26. Déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{140}Xe (extrait de [118]).

4.4 Corrélation entre charge ionique et énergie cinétique

Jusqu'à présent, les rendements de fission ont été calculés en supposant les distributions en énergie cinétique et en charge ionique indépendantes. Dans la thèse d'A. Bail [62], les masses 98 et 136 ont été mesurées de façon quasi-exhaustive : la distribution en énergie E a été déterminée pour chaque charge ionique q .

Le tableau 4.1 présente l'erreur obtenue sur les rendements des masses 98 et 136, en supposant les distributions en E et q indépendantes. Les masses 98 et 136 ne présentent pas de distributions en charge déformées. Cependant, l'erreur induite par l'hypothèse d'indépendance est de 1 % dans le meilleur des cas. Cette erreur atteint 2 à 3 % en changeant seulement d'une unité la charge de la distribution en énergie, et de 4 MeV l'énergie de la distribution en charge. Ces résultats ont conduit à ajouter une erreur systématique sur les rendements en masse, sans pour autant changer la façon de calculer ces derniers.

TABLE 4.1. Erreur sur le calcul des rendements des masses 98 et 136 induite par l'hypothèse d'indépendance des distributions en charge et en énergie. $\langle q \rangle$, $\langle E \rangle$ sont les valeurs moyennes des distributions en charge et en énergie. L'erreur sur le calcul est présentée en fonction de la charge ($\langle q \rangle - 3$, $\langle q \rangle - 2$, ...) de la distribution en énergie et de l'énergie ($\langle E \rangle - 8$ MeV, $\langle E \rangle - 4$ MeV...) de la distribution en charge [62]

	$\langle q \rangle - 3$	$\langle q \rangle - 2$	$\langle q \rangle - 1$	$\langle q \rangle$	$\langle q \rangle + 1$	$\langle q \rangle + 2$	$\langle q \rangle + 3$
$\langle E \rangle - 8$ MeV	> 15 %	> 11 %	> 7 %	> 4 %	> 7 %	> 11 %	> 15 %
$\langle E \rangle - 4$ MeV	> 15 %	> 7 %	> 3 %	> 2 %	> 3 %	> 7 %	> 15 %
$\langle E \rangle$	> 15 %	> 5 %	> 2 %	> 1 %	> 2 %	> 5 %	> 15 %
$\langle E \rangle + 4$ MeV	> 15 %	> 7 %	> 3 %	> 2 %	> 3 %	> 7 %	> 15 %
$\langle E \rangle + 8$ MeV	> 15 %	> 11 %	> 7 %	> 4 %	> 7 %	> 11 %	> 15 %

Les résultats précédents ont motivés une étude plus approfondie sur les corrélations entre énergie cinétique et charge ionique. La corrélation entre E et q d'une masse donnée est déterminée en mesurant la distribution en énergie à trois charges ioniques différentes. Ces trois charges correspondent typiquement, au maximum de la distribution en charge et à ce maximum plus ou moins trois ou quatre unités de charge.

Par exemple pour la masse 136, trois distributions en énergie ont été mesurées aux charges ioniques 19, 22 et 26 et sont représentées sur la figure 4.27. En supposant que l'énergie moyenne \bar{E} dépende linéairement de la charge ionique q ($\bar{E}(q) = a \times q + b$), la corrélation (E, q) est de 0.277 MeV par unité de charge quelle que soit la charge (dans la formule précédente la corrélation correspond au coefficient a). Dans cet exemple, la corrélation (E, q) est positive, l'énergie moyenne augmente avec la charge ionique, en d'autres termes le nombre d'électrons manquants augmente avec l'énergie cinétique. Cela est en accord avec les modèles de Nikolaev et de Shima (§ 4.3.2).

La corrélation entre E et q pour la fission thermique de ^{233}U a été mesurée pour quelques masses avec les cibles "masse". Ces corrélations ont été introduites dans les calculs des ren-

dements. Les résultats de ces calculs ont révélé des différences sur les taux de comptages pouvant atteindre 5-6 %. Ainsi des mesures de corrélation (E, q) ont été effectuées avec la cible “corrélation” pour les masses allant de 127 à 150. Les corrélations obtenues sont présentées sur la figure 4.28. La majorité des corrélations (E, q) sont positives et comprises entre 0.1 et 0.4 MeV par unité de charge. Aucune tendance en fonction de la masse n’a pu être observée. On remarque de plus que les corrélations obtenues avec différentes cibles donnent des résultats différents. Cela implique que dans le futur, on s’attachera toujours à mesurer les corrélations et les rendements avec la même cible.

La figure 4.29 présente l’énergie moyenne en fonction de la masse. Cette énergie moyenne est calculée en supposant d’une part les distributions en énergie et en charge indépendantes et d’autre part en considérant une corrélation entre ces deux distributions. Les deux calculs donnent des résultats extrêmement proches. Ainsi, il n’est pas nécessaire de connaître les corrélations entre charge et énergie pour pouvoir déterminer de manière précise l’énergie moyenne d’une masse donnée. Pour cela, il suffit de connaître la distribution en énergie autour de la charge ionique moyenne. Cette méthode est celle qui a toujours été appliquée jusqu’à présent sur le spectromètre Lohengrin.

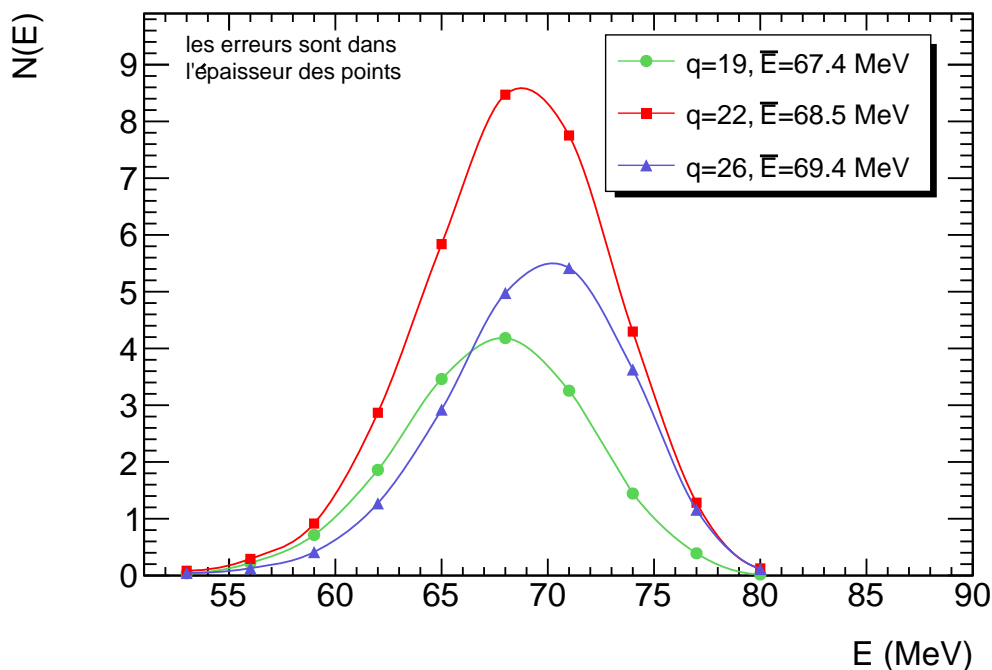


FIGURE 4.27. Mesures de trois distributions en énergie cinétique de la masse 136 effectuées à trois charges ioniques différentes ($q=19, 22$ et 26), montrant l’augmentation de l’énergie moyenne avec la charge. Ces données proviennent de la cible “corrélation 1/1”.

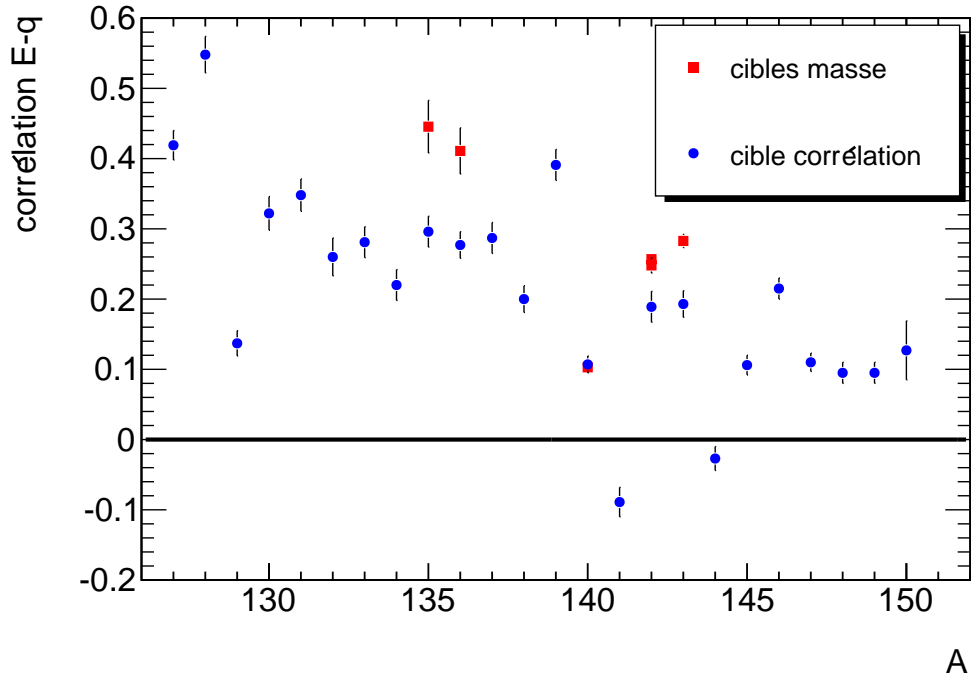


FIGURE 4.28. Corrélation entre énergie et charge en fonction de la masse A . La corrélation est exprimée en MeV par charge ionique pour $l^{233}\text{U}$.

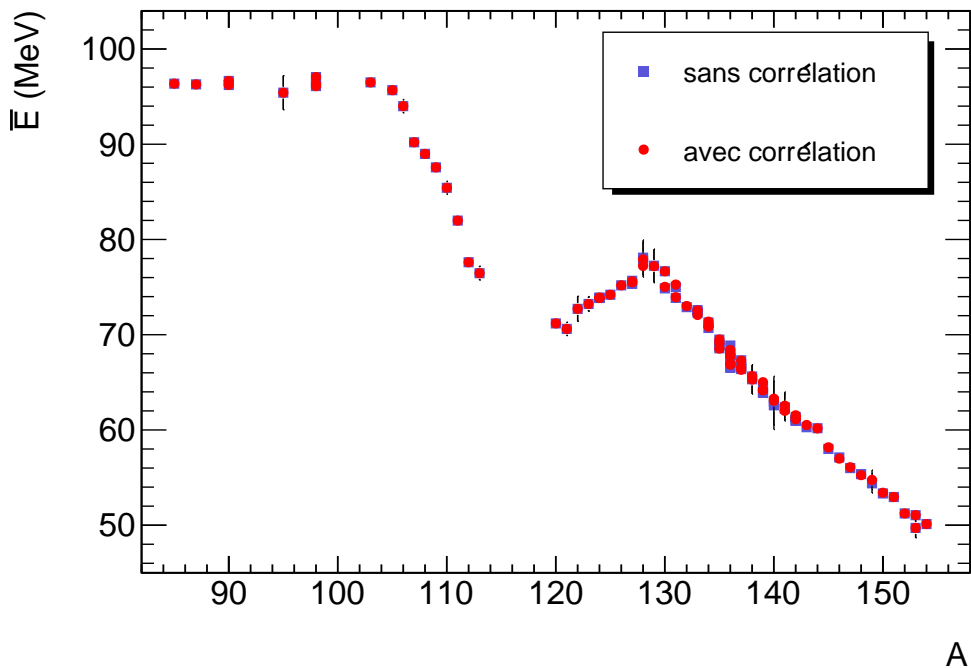


FIGURE 4.29. Mesures des énergies moyennes en fonction de A avec et sans corrélation entre l'énergie E et la charge ionique q . Les données ne sont pas corrigées de la perte d'énergie dans la cible. Les deux calculs donnent des résultats extrêmement proches.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés aux distributions en énergie cinétique et en charge ionique. L'évaluation de ces deux distributions est un préambule obligatoire à toute l'analyse des rendements des produits de fission. Ainsi il est très important de les caractériser aussi précisément que possible. Ces distributions apportent aussi leur lot d'informations sur la fission ainsi que des données intéressantes pour les applications.

Nous nous sommes tout d'abord intéressés à l'ajustement des distributions en énergie. Ces distributions doivent être ajustées pour pouvoir en extraire leur aire, leur moyenne ou encore leur écart-type. Cependant, nous ne disposons d'aucun modèle théorique, qui donne la forme des distributions juste après la fission. Et nous ne connaissons pas l'état de surface de la cible, ce qui implique que nous ne pouvons prédire précisément les pertes en énergie dans la cible. Pour pouvoir tout de même caractériser les distributions en énergie, nous avons étudié de près la distribution en énergie de la masse 136 à la charge 21 qui a été mesurée de nombreuses fois pour suivre la combustion de la cible. Différentes fonctions d'ajustement ont été testées et il est apparu que celle qui fournissait systématiquement le meilleur χ^2 réduit était la somme de deux gaussiennes. Comme cette fonction n'est pas un modèle prédictif, il est très important de mesurer la distribution en énergie jusque dans les ailes, pour s'assurer de contraindre au maximum l'ajustement.

Pour les distributions en charge ionique, l'ajustement a un rôle moins important. La charge est toujours entière, ainsi le spectromètre Lohengrin fournit les mesures de l'ensemble de la distribution en charge. L'ajustement permet de compléter la distribution sur les extrémités des ailes. De la même façon que pour les distributions en énergie, il est important de mesurer les ailes des distributions, car l'ajustement n'est pas toujours capable de réaliser des prédictions précises.

Après avoir choisi la méthode d'analyse des distributions, nous nous sommes intéressés à l'influence de la cible et de la masse sur leur moyenne et leur écart-type.

La distribution en énergie dépend fortement des caractéristiques de la cible. L'emploi d'une cible épaisse ("isotopique") déforme de manière irréversible la distribution. Ainsi, l'étude des énergies moyenne a été réalisée avec des cibles fines. Nous avons même pu disposer d'une cible extrêmement fine sans couverture, ce qui a permis de minimiser les pertes d'énergie dans la matière.

La distribution en charge ionique est, quant à elle, beaucoup moins sensible aux caractéristiques de la cible. Cependant, en fonction de la masse, elle peut présenter des formes très éloignées d'une simple gaussienne. Ces déformations sont liées à la présence d'isomères nanosecondes. Ceux-ci se désexcitent après la sortie de la cible et perdent des électrons une fois qu'ils sont dans le vide. Ainsi la présence d'isomères nanosecondes au sein d'une masse se traduit par une contribution à haute charge ionique.

Jusqu'à présent les rendements en masse des produits de fission ont toujours été calculés en supposant les distributions en énergie et en charge indépendantes. Dans le dernier paragraphe de ce chapitre, les corrélations (E, q) ont été étudiées en fonction de la masse A . La valeur de ces corrélations dépend de la cible.

Ainsi, à l'avenir, il faudra toujours évaluer les corrélations et les rendements en masse avec la même cible. Le résultat du calcul de l'énergie moyenne est très peu sensible à l'introduction des corrélations. Par conséquent, l'énergie moyenne peut donc être déterminée uniquement en considérant une distribution en énergie autour de la charge ionique moyenne. Nous verrons dans le chapitre suivant comment ces corrélations modifient le calcul des rendements en masse et les différences que cela implique dans les résultats.

L'analyse des rendements en masse

Sommaire

5.1	Le taux de comptage de A	114
5.1.1	Calcul du taux de comptage de A en supposant les distributions en énergie cinétique et en charge ionique indépendantes	115
5.1.2	Calcul du taux de comptage de A avec une corrélation (E,q)	116
5.2	Le suivi de la combustion de la cible	119
5.3	La normalisation des taux de comptages	122
5.3.1	Définition de la moyenne employée dans cette analyse	122
5.3.2	Normalisation par cible	122
5.3.3	Normaliser les données, pour obtenir des rendements absolus	123
5.4	La construction de la matrice de variance-covariance	125
5.4.1	Taux de comptage $N(A)$	125
5.4.2	Correction de la combustion de la cible	126
5.4.3	Normalisation par cible	128
5.4.4	Moyenne	129
5.4.5	Normalisation	130
5.5	Conclusion sur l'analyse des rendements en masse	130

Le rendement indépendant $Y(A)$ correspond à la probabilité de création par fission d'un noyau de masse A après l'émission des neutrons prompts. Il a été mesuré en plaçant une chambre d'ionisation à la sortie du spectromètre Lohengrin (cf. chapitre 3, section 3.4).

Chaque mesure effectuée avec ce dispositif expérimental conduit à un taux de comptage $N_A(q, E)$ qui correspond à la masse A , à la charge ionique q et l'énergie cinétique E . Le taux de comptage N_A de la masse A est obtenu en intégrant $N_A(q, E)$ sur l'énergie E et en faisant la somme des contributions des différentes charges ioniques q . Cette première étape est développée dans la section 5.1 avec une attention particulière pour l'étude de l'hypothèse, usuellement admise, d'indépendance des distributions en charge ionique q et en énergie cinétique E .

La cible se consume en une semaine environ, et le taux de comptage N_A évolue avec cette combustion, nommée burn-up, dont il faut donc suivre l'évolution en fonction du temps. Cette correction est détaillée à la section 5.2.

Durant cette étape, le taux de comptage corrigé de la combustion de la cible N_A est normalisé pour obtenir le rendement indépendant de fission $Y(A)$. Pour cela, les mesures

des deux cibles utilisées doivent être réunies. Ensuite, si la masse A a été mesurée plusieurs fois, il est nécessaire de faire la moyenne des mesures. Enfin, il faut déterminer le facteur de normalisation absolue k_{norm} tel que $Y(A) = k_{norm} \times N_A$; le choix qui a été fait est de s'auto-normaliser en posant $\sum_{pic\ loured} Y(A) = 1$. L'ensemble de cette étape est expliquée plus en détail à la section 5.3.

Enfin chacune des étapes précédentes ont corrélées les mesures. La construction de la matrice de variance-covariance expérimentale est décrite dans le paragraphe 5.4.

Cette méthodologie d'analyse a été validée avec les données acquises sur la fission de l'uranium ^{233}U , ce qui a permis de l'appliquer de manière quasi-systématique à la fission du plutonium ^{241}Pu .

5.1 Le taux de comptage de A

Commençons par préciser comment sont obtenues les données $N_A(q, E)$. Le spectromètre Lohengrin est réglé pour sélectionner les produits de fission ayant un rapport masse sur charge ionique A_{Loh}/q_{Loh} et un rapport énergie cinétique sur charge ionique E_{Loh}/q_{Loh} égales à A/q et E/q respectivement. La chambre d'ionisation permet de compter et d'identifier les produits de fission suivant leur énergie et donc leur masse. À ce niveau, la donnée brute est un nombre de coups correspondant à la masse recherchée. Pour obtenir un taux de comptage, il faut diviser le nombre de coups par la durée de la mesure ΔT . De plus, les produits de fission sélectionnés ont une énergie comprise dans l'intervalle $[E - \Delta E/2, E + \Delta E/2]$. ΔE est la dispersion en énergie du spectromètre Lohengrin (§ 3.2), qui est proportionnelle à E . Pour s'affranchir de cette dispersion, le taux de comptage est donc divisé par ΔE . Nos mesures étant connues à un facteur près indéterminé, on peut directement diviser par E . Finalement, $N_A(q, E)$ s'obtient ainsi :

$$N_A(q, E) = \frac{\text{nombre de coups}}{\Delta T \times E} \quad (5.1)$$

Le taux de comptage N_A de la masse A est obtenu à partir de $N_A(q, E)$ en intégrant sur E et en sommant sur q :

$$N_A = \sum_q \int_E N_A(q, E) dE \quad (5.2)$$

Cela implique que $N_A(q, E)$ devrait être évalué pour toute énergie E et toute charge q . Les expériences étant limitées dans le temps à quelques semaines, il n'est pas possible de mesurer la distribution en énergie pour chaque charge q . Pour limiter le nombre de mesures, il est usuellement admis que les distributions en charge et en énergie sont indépendantes (§ 5.1.1). Or nous avons vu que cette hypothèse n'était pas rigoureuse (cf. chapitre 4). Nous verrons au paragraphe 5.1.2 que l'existence d'une corrélation entre charge et énergie a un effet non négligeable sur le taux de comptage N_A .

5.1.1 Calcul du taux de comptage de A en supposant les distributions en énergie cinétique et en charge ionique indépendantes

En supposant que les distributions en charge ionique q et en énergie cinétique E sont indépendantes, $N_A(q, E)$ peut alors s'écrire comme le produit de leurs distributions f_q et f_E (eq. 5.3). La figure 5.1 représente en 3 dimensions $N_A(q, E)$ en fonction de la charge ionique q et de l'énergie cinétique E pour la masse 136, si les distributions sont indépendantes.

$$N_A(q, E) = N_A f_q(q) f_E(E) \quad (5.3)$$

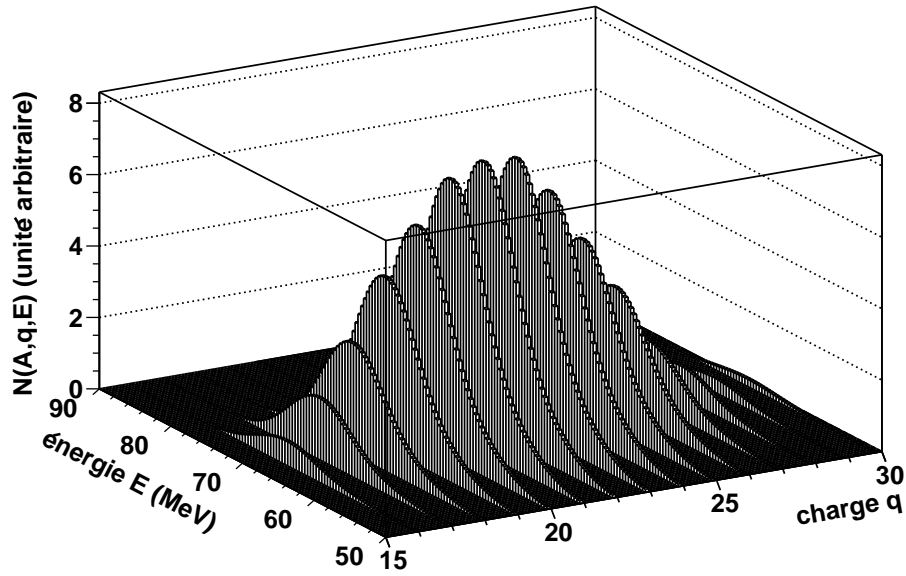


FIGURE 5.1. Représentation en 3 dimensions de la distribution $N_A(q, E)$ en charge ionique q et en énergie cinétique E de la masse 136. On peut observer l'aspect discontinu de la distribution suivant q et inversement l'aspect continu de la distribution suivant E . Les distributions en énergie et en charge sont supposées indépendantes. Par conséquent, toutes les distributions en énergie aux différentes charges sont identiques à un facteur près.

Cela permet de réduire considérablement le temps de mesure, car pour connaître $N_A(q, E)$ quelles que soient q et E , il suffit de mesurer la distribution en énergie pour une charge ionique donnée q_E (distribution E : $N_{A, q_E}(E)$) et la distribution en charge ionique pour une énergie cinétique donnée E_q (distribution q : $N_{A, E_q}(q)$). Après plusieurs lignes de calculs dont le détail est présenté dans l'annexe D.1, l'équation 5.2 peut s'écrire sous la forme de l'équation 5.4.

$$N_A = \frac{\sum_q N_{A, E_q}(q)}{N_{A, E_q}(q_E)} \int_E N_{A, q_E}(E) dE \quad (5.4)$$

L'équation 5.4 montre l'importance de connaître les distributions en énergie cinétique et en charge ionique (ch. 4) afin de déterminer N_A .

5.1.2 Calcul du taux de comptage de A avec une corrélation (E, q)

Dans le paragraphe 4.4, l'existence de corrélations entre énergie et charge a été montrée, c'est-à-dire qu'au premier ordre, l'énergie moyenne peut s'exprimer en fonction de la charge q :

$$\overline{E}(q) = a \times q + b \quad (5.5)$$

Ainsi, la différence entre deux énergies moyennes est proportionnelle à la différence entre les charges Δq auxquelles les distributions correspondantes ont été mesurées :

$$\Delta \overline{E}(q) = \overline{E}(q) - \overline{E}(q_E) = a \times (q - q_E) = a \times \Delta q \quad (5.6)$$

La correction apportée au taux de comptage N_A se fait sur la base de l'hypothèse suivante : la corrélation entre l'énergie cinétique et la charge ionique induit une translation de $\Delta \overline{E}(q)$ de toute la distribution en énergie cinétique $N_{A,q}(E)$ mesurée à la charge ionique q :

$$N_{A,q}(E) = N_{A,q_E}(E - \Delta \overline{E}(q)) \quad (5.7)$$

La figure 5.2 illustre la manière dont la distribution en énergie à la charge q évolue avec l'existence d'une corrélation (E, q) . Attention, la valeur de la corrélation (E, q) qui a été utilisée pour réaliser cette figure est très supérieure à la réalité. Ce choix permet d'amplifier l'effet de la corrélation sur la déformation de la distribution à des fins pédagogiques. L'objectif est de déterminer la distribution en énergie $N_{A,q}(E)$ à la charge q qui n'a pas été mesurée. Pour cela nous disposons de la mesure de la distribution en énergie $N_{A,q_E}(E)$ à la charge q_E ainsi que des mesures provenant de la distribution en charge $N_{A,E_q}(q)$ et $N_{A,E_q}(q_E)$ effectuées à l'énergie E_q .

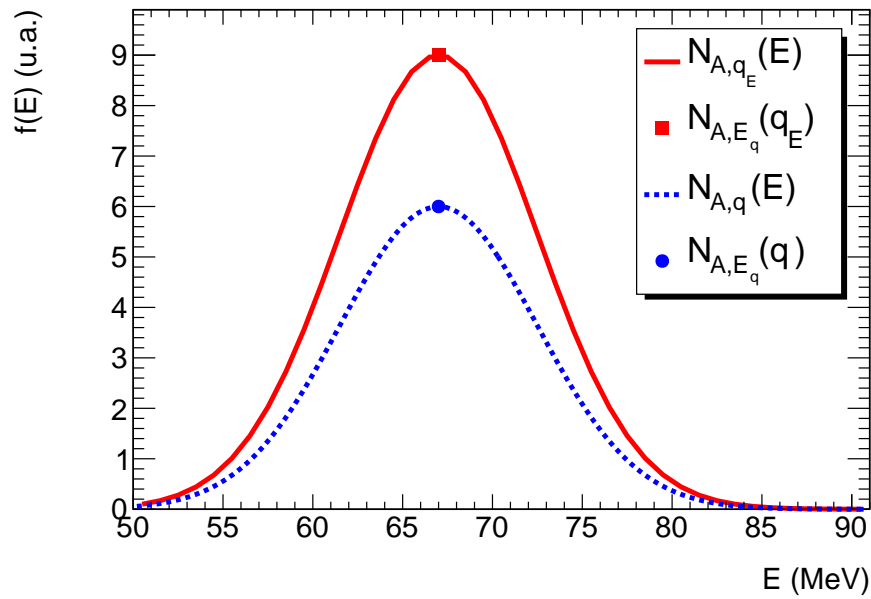
Le graphe du haut de la figure 5.2 représente le cas où la corrélation (E, q) est nulle. La distribution $N_{A,q}(E)$ est égale à $N_{A,q_E}(E)$ fois un facteur $\mathfrak{F} = N_{A,E_q}(q)/N_{A,E_q}(q_E)$. Il en résulte que l'aire :

$$\int_E N_{A,q}(E) dE = \int_E N_{A,q_E}(E) dE \times \mathfrak{F} \quad (5.8)$$

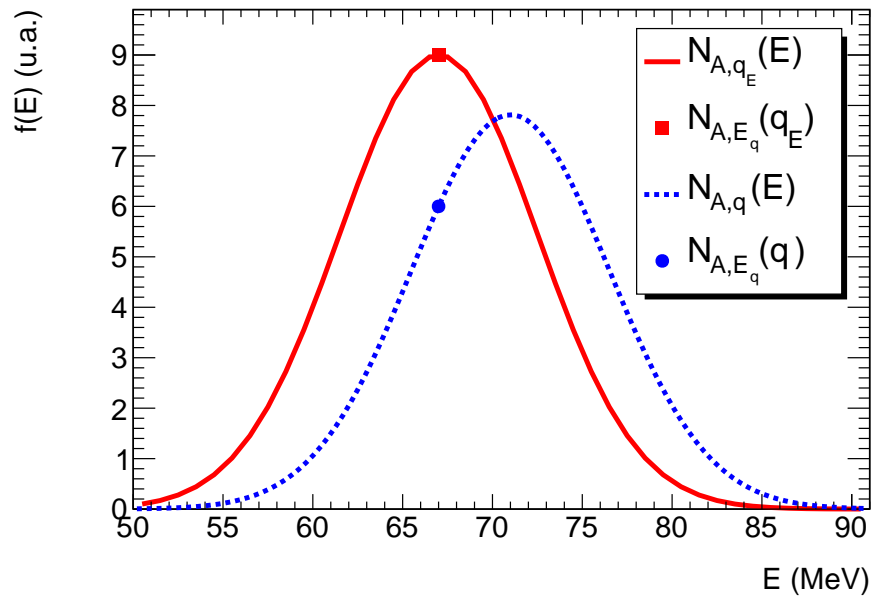
Le graphe du bas de la figure 5.2 représente le cas où la corrélation (E, q) est différente de zéro. La distribution $N_{A,q}(E)$ correspond à la distribution $N_{A,q_E}(E)$ translatée de $\Delta \overline{E}(q)$. De plus, grâce aux mesures en charge, on connaît la valeur de $N_{A,q}(E_q) = N_{A,E_q}(q)$. On peut ainsi déterminer $N_{A,q}(E)$ et son aire :

$$\int_E N_{A,q}(E) dE = \int_E N_{A,q_E}(E) dE \times \mathfrak{F} \times \frac{N_{A,q_E}(E_q)}{N_{A,q_E}(E_q - \Delta \overline{E}(q))} \quad (5.9)$$

$$\mathbf{Correlation}(q) = \frac{N_{A,q_E}(E_q)}{N_{A,q_E}(E_q - \Delta \overline{E}(q))} \quad (5.10)$$



(a) Distributions en énergie et en charge indépendantes



(b) Distributions en énergie et en charge corrélées

FIGURE 5.2. Illustration de l'influence de la corrélation (E, q) sur l'évaluation de la distribution en énergie $N_{A,q}(E)$ pour une charge q différente de q_E . La valeur de la corrélation (E, q) a été très largement exagérée pour mettre en évidence le phénomène. Le trait rouge continu correspond à la distribution en énergie à la charge q_E , qui a été mesurée. Le trait bleu discontinu correspond à la distribution en énergie à la charge q que l'on évalue. La distribution en charge a été mesurée à l'énergie E_q .

Le taux de comptage peut alors s'écrire :

$$N_A = \frac{\sum_q N_{A,E_q}(q) \times \text{Correlation}(q)}{N_{A,E_q}(qE)} \int_E N_{A,qE}(E) dE \quad (5.11)$$

avec $N_{A,E_q}(q)$ et $N_{A,qE}(E)$ respectivement les distributions en q et en E . Les détails des calculs pour obtenir l'équation 5.11 sont présentés en annexe D.2.

La figure 5.3 présente la correction apportée au taux de comptage pour les différentes mesures des différentes masses. Les valeurs des corrélations appliquées sont celles présentées sur la figure 4.28. Cette correction est généralement positive et comprise entre 0% et 5%. D'une part, elle dépend de la valeur de la corrélation liée à la masse. D'autre part, elle dépend de valeurs liées aux caractéristiques de la cible (épaisseur, homogénéité...), comme les largeurs des distributions, et aux choix de mesures, comme la charge à laquelle a été effectué le scan E et l'énergie à laquelle a été mesuré le scan q. Ces dépendances, qui ne sont pas liées exclusivement à la masse, expliquent les disparités des corrections au sein d'une même masse.

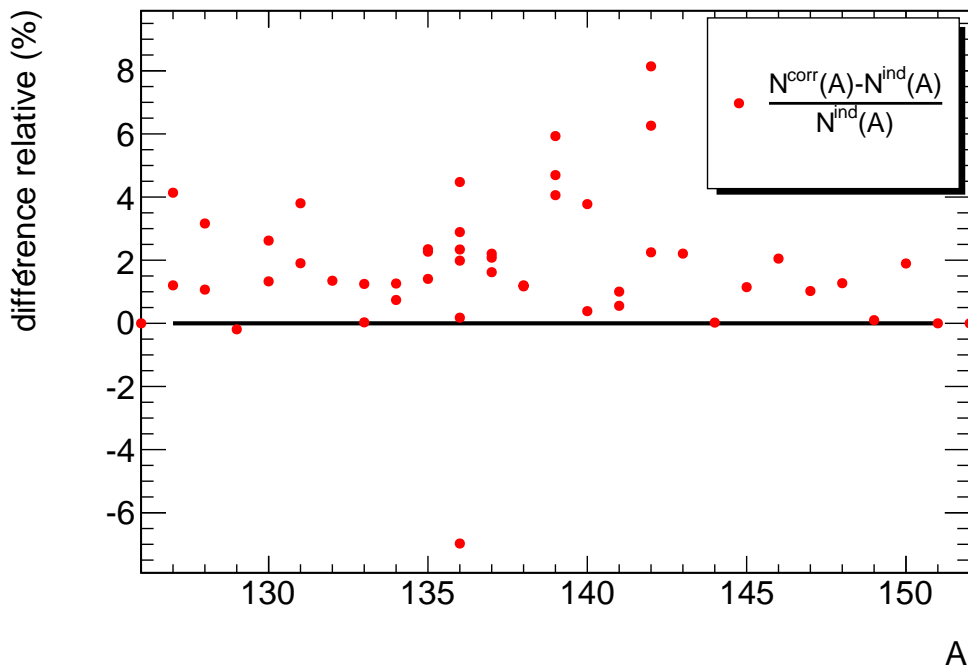


FIGURE 5.3. Différence relative entre les taux de comptages calculés en prenant en compte ou non la corrélation entre les distributions en charge ionique et en énergie cinétique. Le taux de comptage $N^{\text{ind}}(A)$ est obtenu en supposant les distributions en énergie et en charge indépendantes. Le taux de comptage $N^{\text{corr}}(A)$ est calculé en prenant en compte les corrélations entre ces distributions. La différence relative entre $N^{\text{ind}}(A)$ et $N^{\text{corr}}(A)$ est dans la plupart des cas comprise entre 0% et 5%.

5.2 Le suivi de la combustion de la cible

Les taux de comptage, évalués au paragraphe précédent, sont directement proportionnels au taux de fission ayant lieu dans la cible au moment de la mesure. Ce taux de fission correspond à la combustion de la cible, aussi appelé burn-up, qui est suivi grâce à des mesures répétées dans le temps de la distribution en énergie E à la masse 136 et à la charge 21 (au minimum deux fois par jour).

Les figures 5.5, 5.6 et 5.7 présentent l'évolution de la combustion des trois cibles employées pour la mesure des rendements en masse de ^{233}U et du ^{241}Pu . Tout d'abord, la durée d'utilisation des cibles varie : la première a été employée pendant six jours contre dix pour la seconde et la troisième. Ensuite, les formes de ces courbes sont extrêmement différentes, ce qui conduit à adapter les stratégies d'analyse. La première cible présente trois comportements bien distincts avec des laps de temps sans aucune mesure, dus à des problèmes techniques comme le remplacement du connecteur de la haute tension (fig. 5.4). Ces changements de comportement ont conduit à un ajustement par zone de ce taux de combustion. Sur la seconde cible, on observe deux zones distinctes, la fonction pour l'ajustement qui a été choisie est la somme de deux exponentielles décroissantes. La combustion de la cible de ^{241}Pu a pu être ajustée avec une seule exponentielle décroissante.



FIGURE 5.4: *Connecteur cassé de la haute tension*

Après les corrections de la combustion de la cible, nous avons observé un effet systématique pour les mesures effectuées vers la fin de la première cible de ^{233}U . Ainsi, après avoir vérifié les distributions en énergie de la masse 136, nous nous sommes intéressés aux distributions en charge. La tableau 5.1 présente le rapport $\sum_q N(136, 21, E_q)/N(136, q = 21, E_q)$ de six distributions en charge q de la masse 136 mesurés sur les deux cibles à différents moments. Ce rapport est relativement constant, environ 8, excepté pour la dernière distribution de la

première cible, qui présente un rapport 40 % au dessus. Pour corriger l'effet systématique sur la première cible, le burn-up obtenu précédemment grâce aux distributions en énergie a été multiplié par le rapport obtenu avec la distribution en charge sur chacun des trois morceaux de l'ajustement.

TABLE 5.1. Evolution dans le temps du rapport $\sum_q N(136, 21, E_q)/N(136, q = 21, E_q)$ pour les deux cibles. Pour la première cible, les trois mesures correspondent aux trois morceaux sur lesquels a été ajusté le burn-up.

1 ^{re} cible	2 ^e cible
7.87	7.84
8.23	7.88
11.09	8.40

Pour s'affranchir de la combustion de la cible, chaque taux de comptage N_A , qui a été mesuré à l'instant t , est divisé par le burn-up évalué à ce même moment :

$$N'_A = \frac{N_A(t)}{\text{burn-up}(t)} \quad (5.12)$$

La combustion de la cible est une source significative d'incertitude, si ce n'est la plus importante, qui, de plus, corrèle les taux de comptage entre eux (cf. § 5.4.2).

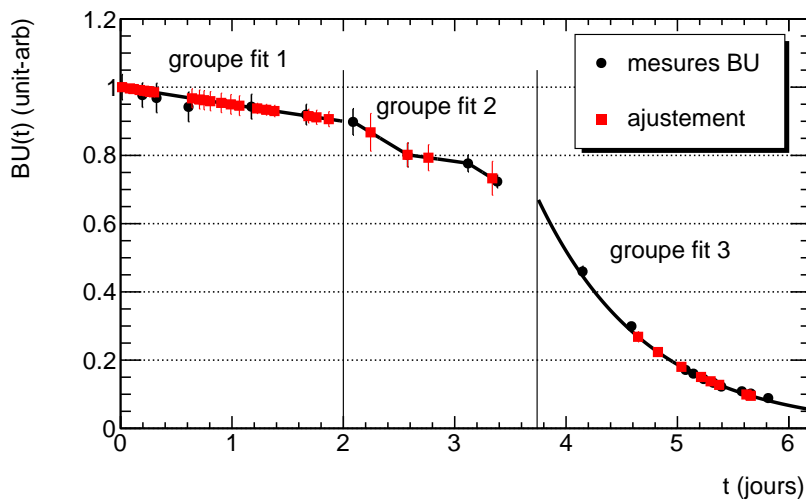


FIGURE 5.5. Mesures de l'évolution de la combustion de la première cible $d^{233}U$. L'ajustement a été fait sur trois zones distinctes.

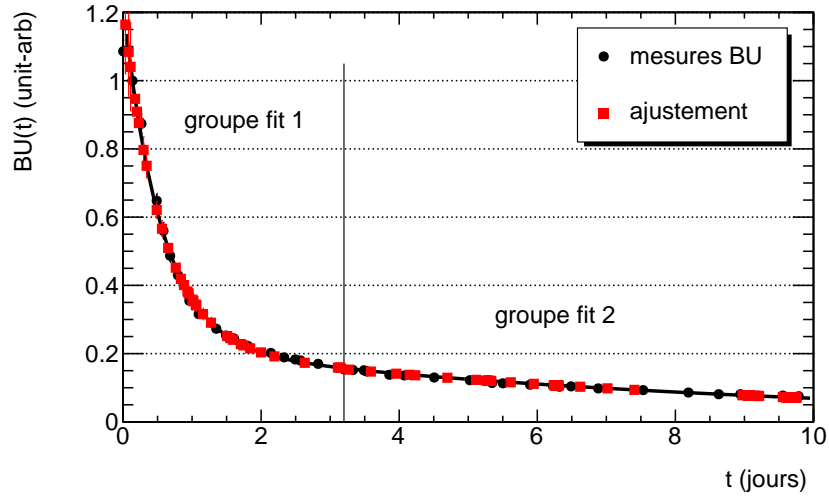


FIGURE 5.6. Mesures de l'évolution de la combustion de la seconde cible de ^{233}U . L'ajustement a été fait sur deux zones.

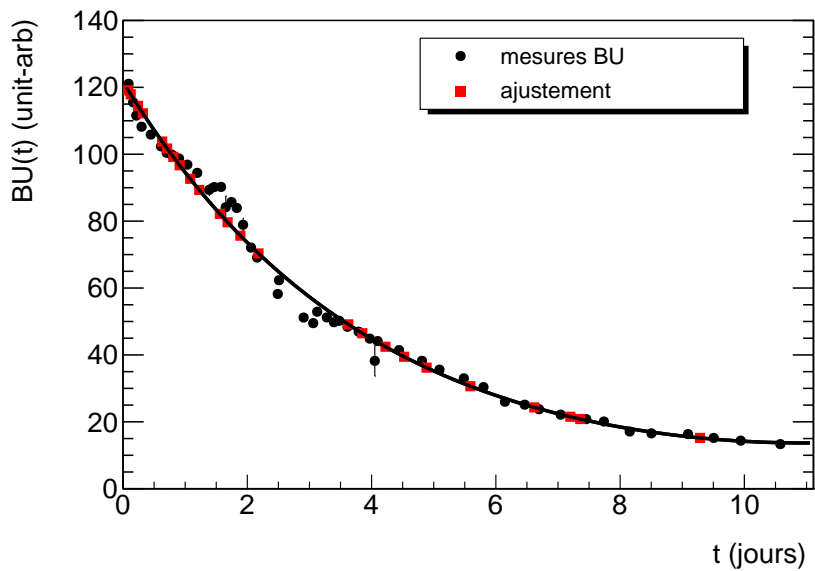


FIGURE 5.7. Mesures de l'évolution de la combustion de la cible de ^{241}Pu . L'ajustement a été fait sur une seule zone.

5.3 La normalisation des taux de comptages

Plusieurs étapes sont encore nécessaires pour passer des taux de comptage corrigés du burn-up, aux rendements en masse de fission $Y(A)$ comparables à ceux des évaluations contenues dans JEFF. Si plusieurs cibles ont été utilisées, comme cela fut le cas pour l'uranium ^{233}U , il faut normaliser tous les taux de comptage sur une même échelle. À ce niveau de l'analyse, les rendements sont encore relatifs, il reste à déterminer le facteur de normalisation pour obtenir les rendements absolus. Enfin, certaines masses ont été mesurées plusieurs fois, ce qui nécessite de calculer la moyenne des différents rendements pour n'obtenir plus qu'une seule valeur par masse.

5.3.1 Définition de la moyenne employée dans cette analyse

Pour diminuer l'incertitude associée à une grandeur, qui a été mesurée plusieurs fois, la moyenne pondérée \bar{X} définie dans l'équation 5.13 a été appliquée. Cette formule est obtenue en cherchant la moyenne qui possède la plus petite incertitude possible, si les mesures sont indépendantes. La démonstration se trouve en annexe A.

$$\bar{X} = \frac{\sum_i X_i / \text{var}(X_i)}{\sum_i 1 / \text{var}(X_i)} \quad (5.13)$$

5.3.2 Normalisation par cible

Les rendements en masse de l'uranium ^{233}U ont été mesurés avec deux cibles. Le choix, qui a été fait pour réunir l'ensemble des données, est d'appliquer un coefficient L aux données de la deuxième cible tel que :

$$L = \frac{\overline{N_{A=136}^{cible\ 1}}}{\overline{N_{A=136}^{cible\ 2}}} \quad (5.14)$$

où $\overline{N_{A=136}^{cible\ x}}$ correspond à la moyenne des mesures de masse 136 sur la cible x pondérée par l'inverse des variances (cf § 5.3.1). En réunissant les données des deux cibles de cette manière, cela a plusieurs conséquences :

- premièrement, à l'incertitude des mesures produites avec la seconde cible, il faut ajouter l'incertitude sur la moyenne des mesures de la masse 136 de la première et de la seconde cible.
- deuxièmement, les données des deux cibles sont maintenant corrélées.

Les rendements en masse du ^{241}Pu ont été mesurés avec une seule cible, ainsi cette étape n'existe pas. Cependant, si de nouvelles mesures sont effectuées, il faudra alors normaliser par cible.

5.3.3 Normaliser les données, pour obtenir des rendements absolus

Les rendements absolus $Y(A)$ sont normalisés à 2 sur les deux pics et à 1 pour chacun des deux pics. Cela est vrai si l'on ne prend pas en compte les rendements des noyaux produits uniquement par la fission ternaire ($A < 12$) :

$$\sum_{A > 60} Y(A) = \underbrace{\sum_{A \in \{\text{pic léger}\}} Y(A)}_1 + \underbrace{\sum_{A \in \{\text{pic lourd}\}} Y(A)}_1 = 2 \quad (5.15)$$

Durant les campagnes de mesures, les rendements de fission de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ ont été obtenus pour les masses allant de 120 à 154. Cela représente 99.67 % du pic lourd selon la bibliothèque JEFF-3.1.1 (tab. 5.2). Ainsi, selon cette bibliothèque, en se normalisant sur les masses 120 à 154, le biais induit est de l'ordre 0.3 %.

En résumé, nos mesures de rendements en masse de la fission de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ recouvrent suffisamment l'ensemble du pic lourd, pour qu'il soit possible de se normaliser sans faire appel à une normalisation extérieure et d'obtenir des données indépendantes de toute autre mesure qui a été ou qui pourrait être faite.

Pour le ^{241}Pu , les rendements en masse sont mesurés de $A=129$ à $A=151$, ce qui représente 94.93 % du pic lourd suivant JEFF-3.1.1 et 96.77 % suivant ENDF/B-VII. Ainsi les mesures nécessitent encore d'être complétées pour pouvoir s'auto-normaliser. Pour pouvoir cependant se comparer aux données existantes, les rendements en masse du ^{241}Pu ont été normalisés sur la somme des rendements des masses allant de $A=129$ à $A=151$ de JEFF-3.1.1. en considérant une incertitude de 2 %.

TABLE 5.2. Répartition des rendements en masses de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ selon la bibliothèque JEFF-3.1.1. Les masses mesurées à l'ILL vont de 126 à 154.

A	$\sum_A Y(A)$
116-169	100.00 %
116-125	0.29 %
126-154	99.67 %
155-169	0.04 %

Le rendement absolu est alors calculé de la manière suivante :

$$Y_l = \frac{N_l}{\sum_{A \in \{\text{pic lourd}\}} \bar{N}_A} \quad (5.16)$$

Les différentes étapes qui ont permis de passer des taux de comptage $N_A^{\text{cible}}(q, E)$ aux rendements sont résumés sur la figure 5.8.

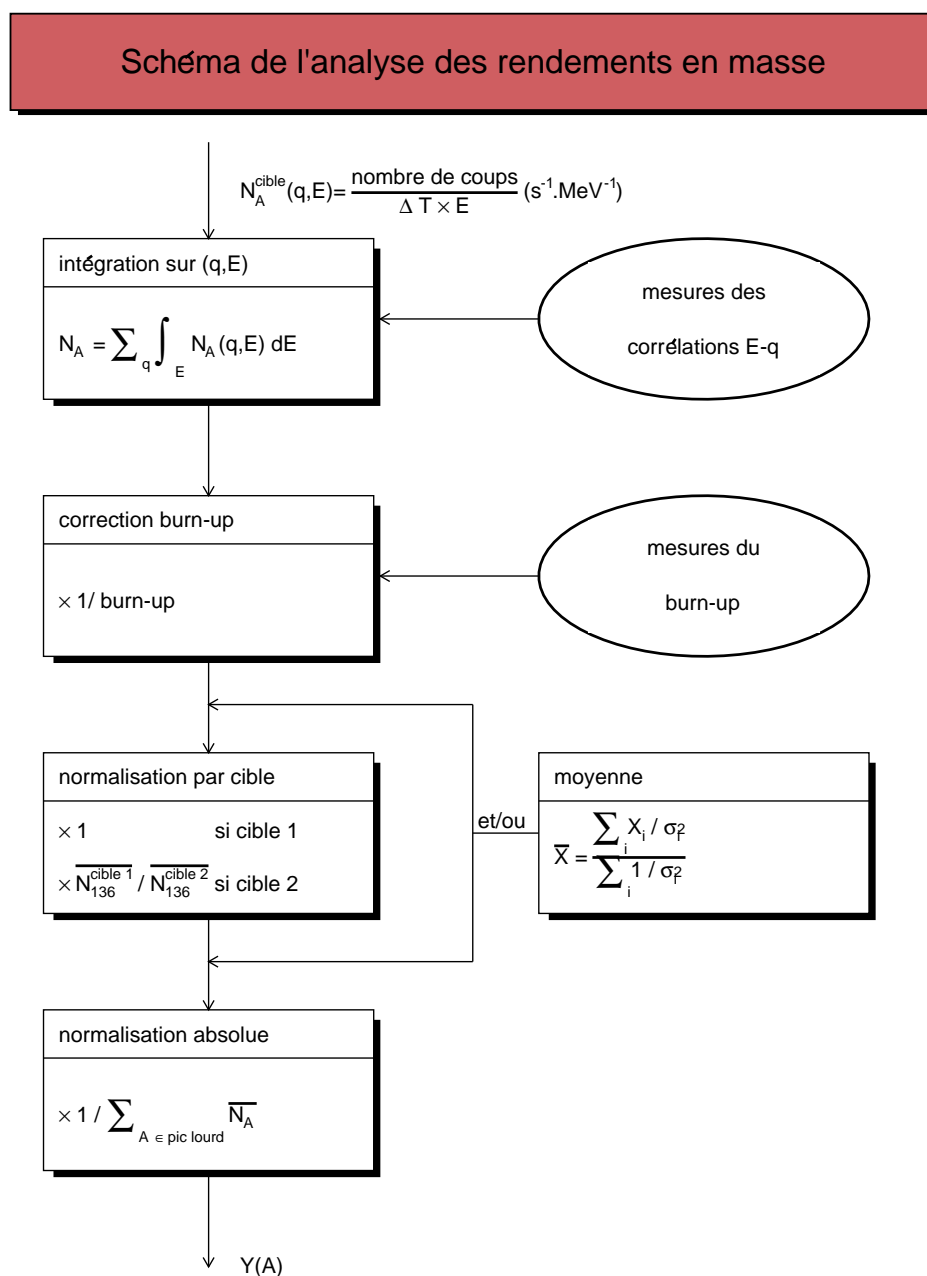


FIGURE 5.8. Les différentes étapes de l'analyse des rendements en masse. L'étape "moyenne" peut être faite à deux moments différents : soit avant "l'union des cibles", soit entre "l'union des cibles" et "la normalisation". Si elle est faite avant "l'union des cibles", sur chaque cible il n'y aura qu'une mesure par masse, cependant une masse pourra être présente sur les deux cibles. L'étape "moyenne" peut aussi être éludée pour voir le rendement correspondant à chaque mesure de masse.

5.4 La construction de la matrice de variance-covariance

La matrice de variance-covariance se construit au fur et à mesure des étapes de l'analyse (cf fig. 5.8). Les taux de comptage $N_A^{\text{cible}}(q, E)$, qui sont les données initiales, sont supposés indépendants, mais en appliquant les différentes corrections et en définissant une normalisation, des corrélations apparaissent entre les rendements.

La propagation des incertitudes d'une étape à l'autre s'appuie sur la notion de sensibilité, dont la définition et les principales propriétés sont présentées dans l'annexe C.

5.4.1 Taux de comptage N_A

La mesure $N_A(q, E)$, qui est égale au nombre de coups divisé par le temps et l'énergie E (eq. 5.1), a une incertitude associée uniquement statistique :

$$\sigma [N_A(q, E)] = \frac{\sqrt{\text{nombre de coups}}}{\Delta T \times E} \quad (5.17)$$

Ces mesures sont les données de base des distributions en charge et en énergie qui permettront de calculer les taux de comptage N_A . La distribution en charge est par nature discrète et l'incertitude qui lui est associée est directement issue du calcul :

$$\sigma \left[\frac{\sum_q N_A^q(q, E_q)}{N_A^q(q_E, E_q)} \right] = \sigma \left[\frac{\sum_{q \neq q_E} N_A^q(q, E_q)}{N_A^q(q_E, E_q)} + 1 \right] \quad (5.18)$$

$$= \left[\frac{\sum_{q \neq q_E} N_A^q(q, E_q)}{N_A^q(q_E, E_q)} \right] \left[\frac{\sum_{q \neq q_E} \sigma^2 [N_A^q(q, E_q)]}{\left[\sum_{q \neq q_E} N_A^q(q, E_q) \right]^2} + \frac{\sigma^2 [N_A^q(q_E, E_q)]}{[N_A^q(q_E, E_q)]^2} \right]^{1/2} \quad (5.19)$$

La distribution en énergie est quant à elle continue, ce qui nécessite d'ajuster les mesures $N_A(q_E, E)$ et d'évaluer l'incertitude associée. L'ajustement est fait avec la somme de deux gaussiennes (eq. 4.3). Pour la plupart des scans, le χ^2 réduit est très supérieur à 1. Cet effet est particulièrement important pour les masses de hauts rendements dont chaque mesure est connue avec une faible incertitude statistique. Typiquement pour l'énergie moyenne, le nombre de coup est compris entre 2000 et 10000, soit une incertitude statistique inférieure à 2 %.

Les valeurs élevées du χ^2 réduit reflètent le fait que nous ne connaissons pas le modèle théorique de la distribution en énergie de chaque masse après la traversée de la cible. Cela est dû à deux facteurs : d'une part nous ne connaissons pas la distribution en énergie juste après la fission. D'autre part, nous ne savons pas évaluer précisément les pertes en énergie dans la cible, car l'épaisseur de matière fissile n'est pas répartie de manière homogène sur toute la surface et elle évolue également au cours du temps. La conséquence de l'absence d'un modèle théorique est d'avoir une incertitude associée à l'aire de la distribution d'autant plus faible que le χ^2 réduit est grand. Pour obtenir une incertitude plus raisonnable, l'incertitude de chaque mesure est multipliée par la racine carrée du χ^2 réduit avant l'ajustement, ce qui revient à imposer un χ^2 réduit égale à l'unité (cf. chapitre 4).

5.4.2 Correction de la combustion de la cible

La correction de la combustion de la cible induit les premières corrélations entre les taux de comptage N_A . Cette corrélation dépend de la cible et de la date des mesures. Les mesures obtenues à partir de deux cibles différentes, restent indépendantes. Au sein d'une même cible, les mesures seront d'autant plus corrélées, qu'elles sont proches dans le temps.

Pour la première cible d' ^{233}U utilisée, les mesures de BU ont révélés trois comportements différents qui sont numérotés de 1 à 3, et sont nommés "groupes de fit". Ensuite ces "groupes de fit" sont subdivisés en "groupes de données", qui représentent toutes les mesures qui ont été faites entre deux points de BU. Tous les rendements obtenus à l'intérieur d'un même groupe seront corrélés entre eux.

Le "groupe fit" permet de définir une incertitude liée à l'ajustement. Par exemple, si le BU est ajusté avec une exponentielle décroissante $\text{BU}(t) = \mathcal{A} \exp(-\lambda t)$, l'ensemble des BU associés aux rendements seront corrélés par l'incertitude sur le paramètre λ . La sensibilité de $\text{BU}(t_i)$ à λ (eq. 5.20) permet de définir la covariance entre $\text{BU}(t_i)$ et $\text{BU}(t_j)$ en fonction de la variance de λ (eq. 5.21).

$$\begin{aligned}
 S_{\text{BU}(t_i),\lambda} &= \frac{\partial \text{BU}(t_i)}{\partial \lambda} \frac{\lambda}{\text{BU}(t_i)} \\
 &= \frac{\mathcal{A} \exp(-\lambda t_i)}{\partial \lambda} \frac{\lambda}{\mathcal{A} \exp(-\lambda t_i)} \\
 &= -t_i \mathcal{A} \exp(-\lambda t_i) \frac{\lambda}{\mathcal{A} \exp(-\lambda t_i)} \\
 &= -\lambda t_i
 \end{aligned} \tag{5.20}$$

$$\begin{aligned}
 \text{cov}(\text{BU}(t_i), \text{BU}(t_j)) &= S_{\text{BU}(t_i),\lambda} S_{\text{BU}(t_j),\lambda} \frac{\text{var}(\lambda)}{\lambda^2} \\
 &= (-\lambda t_i)(-\lambda t_j) \frac{\text{var}(\lambda)}{\lambda^2} \\
 &= t_i t_j \text{var}(\lambda)
 \end{aligned} \tag{5.21}$$

Le "groupe données" permet de prendre en compte l'incertitude induite par le comportement local de la cible par rapport au comportement global par exemple en exponentielle décroissante. Cette incertitude est définie comme la différence relative entre la mesure de BU et l'ajustement.

L'évolution dans le temps du rapport $\sum_q N(136, 21, E_q)/N(136, q = 21, E_q)$ pour chaque cible est présentée dans la table 5.1. Alors que ce rapport reste relativement constant pour la 2^e cible, il progresse de 40% pour la 1^{re} cible. Cette dérive a été corrigée de façon uniforme à l'intérieur de chaque "groupe de fit".

D'un point de vue pratique, la matrice de variance-covariance est construite à partir du numéro de cible, du "groupe fit" et du "groupe donnée".

- Si deux mesures n'appartiennent pas à la même cible, ou qu'elles ne partagent pas le même "groupe fit", elles sont considérées comme indépendantes (fig. 5.9(a)).
- Si deux mesures appartiennent à la même cible et au même "groupe fit", elles parta-

geront l'incertitude du "groupe fit" (fig. 5.9(b)).

- Si de plus, elles appartiennent au même "groupe données", elles partageront en plus l'incertitude du "groupe fit" et du "groupe données".

		cible 1			cible 2	
		fit 1	fit 2	fit 3	fit 1	fit 2
cible 1	fit 1	X	0	0	0	
	fit 2	0	X	0		
	fit 3	0	0	X		
cible 2	fit 1	0			X	0
	fit 2				0	X

(a) vue générale de la matrice de corrélation

		cible 1										
		fit1										
		donnée 1				donnée 2				donnée ...		
cible 1	fit 1	donnée 1	masse 136	1.00	1.00	1.00	1.00	0.28	0.29	0.29	0.30	X
			masse 98	1.00	1.00	1.00	1.00	0.29	0.29	0.29	0.30	
			masse 135	1.00	1.00	1.00	1.00	0.29	0.29	0.29	0.30	
			masse 134	1.00	1.00	1.00	1.00	0.29	0.29	0.30	0.30	
		donnée 2	masse 133	0.28	0.29	0.29	0.29	1.00	1.00	1.00	1.00	
			masse 132	0.29	0.29	0.29	0.29	1.00	1.00	1.00	1.00	
			masse 131	0.29	0.29	0.29	0.30	1.00	1.00	1.00	1.00	
			masse 130	0.30	0.30	0.30	0.30	1.00	1.00	1.00	1.00	
	donnée ...	masse ...	X	X	X	X	X	X	X	X	X	

(b) zoom sur la croix : cible 1, "groupe fit" 1

FIGURE 5.9. Matrice de corrélation de la correction de la combustion de la cible établie à partir du numéro de la cible, du "groupe de fit" et du "groupe donnée".

Cette méthode complexe a été mise en place sur les mesures de l' ^{233}U à cause du comportement par zone de la première cible.

Pour le ^{241}Pu , la combustion de la cible peut être ajustée sans difficulté par une exponentielle décroissante. Pour obtenir la matrice de variance-covariance sur la correction de la combustion de la cible, l'incertitude sur les paramètres de l'ajustement (ainsi que les covariances) sont propagés. La figure 5.10 présente la corrélation associée à cette correction pour la cible de ^{241}Pu .

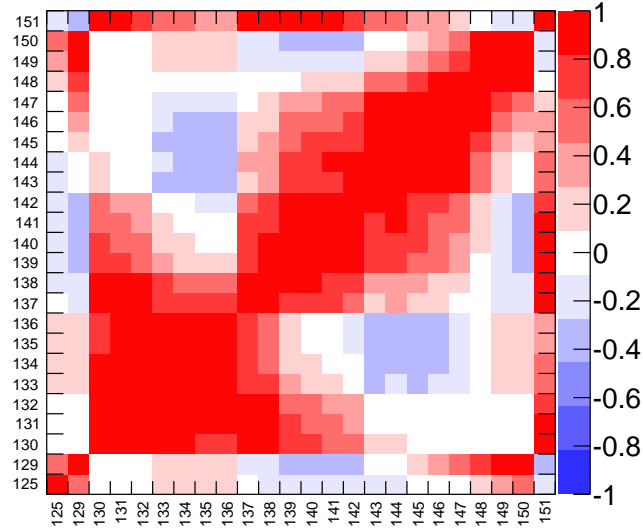


FIGURE 5.10: Matrice de corrélation de la correction de la combustion de la cible de ^{241}Pu .

5.4.3 Normalisation par cible

Pour réunir les mesures des deux cibles sur même échelle, les données de la seconde cible d' ^{233}U sont normalisées sur celles de la première grâce au coefficient L (eq. 5.22 et 5.23).

$$N'_i = \begin{cases} N_i & \text{si } i \in (\text{cible 1}) \\ N_i \times L & \text{si } i \in (\text{cible 2}) \end{cases} \quad (5.22)$$

$$L = \frac{\overline{N_{A=136}^{\text{cible 1}}}}{\overline{N_{A=136}^{\text{cible 2}}}} \quad (5.23)$$

où $\overline{N_{A=136}^{\text{cible } m}}$ correspond à la moyenne des mesures de la masse cible sur la cible m .

Les données des deux cibles sont maintenant réunies sur une même échelle de valeurs. Ainsi, deux taux de comptage N'_i peuvent être corrélés, même s'ils n'appartiennent pas à la même cible.

Le calcul des sensibilités des mesures regroupées N'_i aux mesures non-regroupées N_i , permet de construire la matrice de variance-covariance des N'_i .

si ($l \in \{\text{cible 1}\}$) :

$$S_{N'_l, N_i} = S_{N_l, N_i}$$

si ($l \in \{\text{cible 2}\}$) :

$$\begin{aligned} S_{N'_l, N_i} &= S_{N_l, N_i} + S_{L, N_i} \\ &= S_{N_l, N_i} + S_{N_{A=136}^{\text{cible 1}}, N_i} - S_{N_{A=136}^{\text{cible 2}}, N_i} \end{aligned}$$

$$S_{N_l, N_i} = \delta_{li}$$

$$S_{N_{A=136}^{\text{cible 1}}, N_i} = \begin{cases} \frac{N_i/\text{var}(N_i)}{\sum_{A_j=136} 1/\text{var}(N_j) \times N_{A=136}^{\text{cible 1}}} & \text{si } A_i = 136 \text{ avec } i \in \{\text{cible 1}\} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

$$S_{N_{A=136}^{\text{cible 2}}, N_i} = \begin{cases} \frac{N_i/\text{var}(N_i)}{\sum_{A_j=136} 1/\text{var}(N_j) \times N_{A=136}^{\text{cible 2}}} & \text{si } A_i = 136 \text{ avec } i \in \{\text{cible 2}\} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

5.4.4 Moyenne

Si une masse a été mesurée plusieurs fois, la moyenne des différents taux de comptage conduit à réduire l'incertitude mais aussi le nombre de données (il ne reste plus qu'un unique taux de comptage par masse). Si les cibles ont déjà été unifiées, il n'y aura plus qu'une donnée par masse. Si elles sont encore séparées, il y aura par cible, une donnée par masse.

$$\overline{N_A} = \frac{\sum_i N_{A,i}/\text{var}(N_{A,i})}{\sum_i 1/\text{var}(N_{A,i})}$$

$$S_{\overline{N_A}, N_{A,i}} = S_{\sum_j N_{A,j}/\text{var}(N_{A,j}), N_{A,i}} - S_{\sum_j 1/\text{var}(N_{A,j}), N_{A,i}} \quad (5.24)$$

$$= 1/\text{var}(N_{A,i}) \frac{N_{A,i}}{\sum_j N_{A,j}/\text{var}(N_{A,j})} - 0 \quad (5.25)$$

$$= \frac{N_{A,i}/\text{var}(N_{A,i})}{\sum_j N_{A,j}/\text{var}(N_{A,j})} \quad (5.26)$$

$$S_{\overline{N_A}, N_{B,i}} = 0 \quad (5.27)$$

5.4.5 Normalisation

Les rendements sont, à ce stade, connus à un facteur près de normalisation :

$$Y_l = N_l \frac{\text{norm}_u}{\text{norm}} \begin{cases} \text{avec} & \text{norm} = \sum_{A \in \{A_{norm}\}} \overline{M}_A \\ \text{et} & \text{norm}_u \text{ la normalisation fixée par l'utilisateur} \end{cases} \quad (5.28)$$

Dans le cas, où l'ensemble des rendements du pic lourd a pu être mesuré, $\{A_{norm}\}$ correspond aux masses du pic lourd et norm_u est égal à 1. Attention, N_l correspond au taux de comptage de la masse A_l une fois les deux cibles rassemblées, c'est-à-dire au paragraphe 5.4.3 cela correspondait à N_l' .

$$S_{Y_l, N_i} = S_{N_l, N_i} + S_{\text{norm}_u, N_i} - S_{\text{norm}, N_i}$$

$$S_{N_l, N_i} = \delta_{li}$$

$$si (A_i \in \{A_{norm}\})$$

$$S_{\text{norm}, N_i} = \frac{1/\sigma_i^2}{\sum_{j \in \{A_i\}} 1/\sigma_j^2} \frac{N_i}{\text{norm}}$$

$$si (A_i \notin \{A_{norm}\})$$

$$S_{\text{norm}, N_i} = 0$$

5.5 Conclusion sur l'analyse des rendements en masse

La méthode d'analyse présentée dans ce chapitre se fait en plusieurs étapes qui conditionnent les rendements de fission et la construction de la matrice de variance-covariance expérimentale associée.

Tout d'abord les taux de comptage $N_A(q, E)$ d'une masse A à la charge ionique q et à l'énergie cinétique E ont été intégrés sur E et q pour obtenir le taux de comptage N_A de la masse A . Cette étape a permis de mettre en avant les corrélations qui existent entre énergie cinétique et charges ioniques et les conséquences que cela induit sur le taux de comptage N_A . Cette corrélation $E - q$ avaient déjà été observée dans les travaux précédents, mais c'est la première fois qu'elle est prise en compte dans le calcul de N_A .

Ensuite, les taux de comptage ont été corrigés de la combustion de la cible (correction burn-up). Puis les données de la deuxième cible ont été normalisées sur les données de la première cible pour les mesures sur l' ^{233}U . Par ailleurs, quand une masse avait été mesurée plusieurs fois, la moyenne de ces données a été réalisée de manière à obtenir plus qu'une seule valeur par masse avec une incertitude réduite.

Enfin, il a fallu trouver une normalisation dans le but d'obtenir des rendements absolus. Le choix qui a été fait est de se normaliser sur l'ensemble du pic lourd. Cette normalisation a l'avantage de fournir des données indépendantes de toute autre mesure ou évaluation. Cette méthode a pu être appliquée sur l' ^{233}U . Cependant, pour ce travail, les rendements du ^{241}Pu ne représentent pas la totalité du pic lourd. Ces données devront être complétées pour pouvoir réaliser cette normalisation.

La matrice de variance-covariance expérimentale associée aux rendements finaux a été construite en propageant les incertitudes à chacune des étapes décrites précédemment. La contribution majeure à l'incertitude provient de la normalisation. Cette matrice de variance-covariance sera pour la première fois mise à disposition des évaluateurs.

Les résultats obtenus avec cette méthode d'analyse sont présentés dans le chapitre 7.

Dans le chapitre suivant, nous nous attacherons à décrire la méthode d'analyse des rendements isotopiques $Y(A, Z)$.

L'analyse des rendements isotopiques

Sommaire

6.1	La mesure des rendements isotopiques par spectrométrie gamma	134
6.1.1	Principe de la mesure	134
6.1.2	Méthode d'analyse	139
6.2	La caractérisation du dispositif expérimental	147
6.2.1	L'efficacité des détecteurs Ge en tenant compte de la cascade de désexcitation	147
6.2.2	La combustion de la cible	152
6.3	La construction des rendements isotopiques	155
6.3.1	Distributions en énergie	155
6.3.2	Distributions en charge ionique	159
6.3.3	Normalisation des rendements isotopiques	159
6.4	Construction de la matrice de variance-covariance	162
6.5	Conclusion	169

Les rendements en masse $Y(A)$, dont l'analyse est présentée dans le chapitre précédent, sont mesurés avec le spectromètre Lohengrin combiné avec une chambre d'ionisation à deux anodes. Ce dispositif expérimental permet aussi de déterminer les rendements isotopiques du pic léger. L'identification des différents isotopes au sein de chaque masse repose sur la perte d'énergie cinétique dans la première partie de la chambre d'ionisation qui augmente avec la charge nucléaire Z . Le pouvoir de séparation diminue avec Z , jusqu'à être insuffisant pour Z supérieur à 38. Rappelons que la fission symétrique de l'uranium correspond à des produits de fission de charge nucléaire autour de $Z = 46$.

Ainsi, l'identification des isotopes du pic lourd est réalisée par une autre méthode : la spectrométrie γ . La combinaison d'un spectromètre de masse et d'une spectrométrie γ a déjà permis de déterminer les rendements isotopiques de plusieurs noyaux. Cette méthode a d'une part été mise en place auprès de l'instrument OSIRIS (On-line Separation of Isotopes at a Reactor In Studsvik) par G. Rudstam et par J. Galy [61] et d'autre part auprès du spectromètre Lohengrin par A. Bail [62, 63].

L'analyse des rendements isotopiques, qui est présentée dans ce chapitre, a été appliquée sur les données mesurées avec les quatre cibles d' ^{233}U . Ce chapitre est composé de quatre sections. Le principe de la mesure ainsi que les choix d'analyse sont développés dans la

section 6.1. La caractérisation du dispositif expérimental (l'efficacité des détecteurs Ge et la combustion de la cible) est présentée dans la section 6.2. Ensuite, les résultats intermédiaires de l'analyse des rendements isotopiques sont détaillés dans la section 6.3. Enfin, la construction de la matrice de covariance est étudiée dans la section 6.4.

6.1 La mesure des rendements isotopiques par spectrométrie γ auprès du spectromètre Lohengrin

6.1.1 Principe de la mesure

Le spectromètre Lohengrin permet de sélectionner les produits de fission possédant une masse A , une énergie cinétique E et une charge ionique q correspondant aux rapports A/q et E/q choisis par l'utilisateur. Lors des mesures de rendements en masse, les produits de fission sont identifiés au moment de leur sortie du spectromètre par la chambre d'ionisation, qui détermine leur énergie. Pour les rendements isotopiques, la mesure a lieu en deux temps. Dans un premier temps, les produits de fission sont arrêtés, à la sortie du spectromètre, par une bande. Dans un deuxième temps, comme il s'agit de noyaux riches en neutrons, ils décroissent par désintégrations β^- , par (β^-,n) et par transitions isomériques pour rejoindre la vallée de la stabilité. Ces désintégrations sont accompagnées de l'émission de raies γ qui sont mesurés par les détecteurs Germanium pendant un temps Δt . La figure 6.1 présente très schématiquement le dispositif expérimental employé, avec les clovers 1 et 2 qui sont constitués chacun de quatre cristaux de Germanium. Entre chaque mesure, la bande est déroulée afin d'éloigner les produits de fission radioactifs des détecteurs Ge.

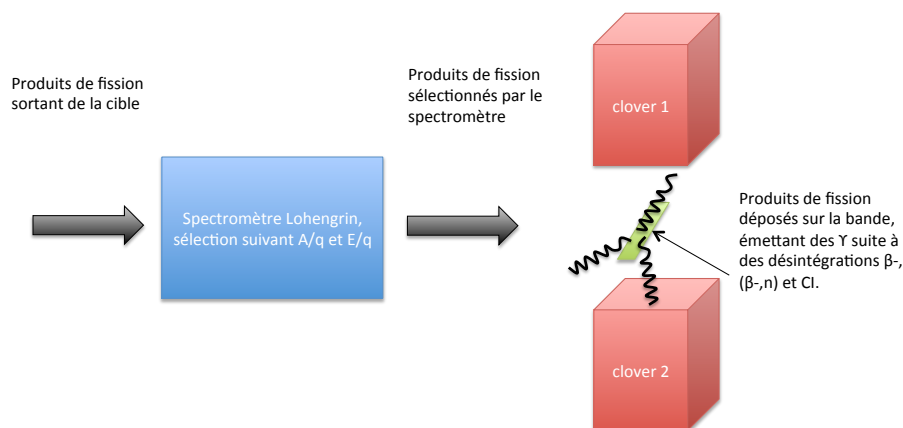


FIGURE 6.1. Schéma de principe du dispositif expérimental mis en place pour la mesure des rendements isotopiques

La figure 6.2 présente une illustration de l'évolution de la population d'un isotope situé entre les deux clovers (détecteurs Ge). Après l'ouverture du faisceau, la population augmente. Après la fermeture du faisceau, la population décroît suivant une loi exponentielle.

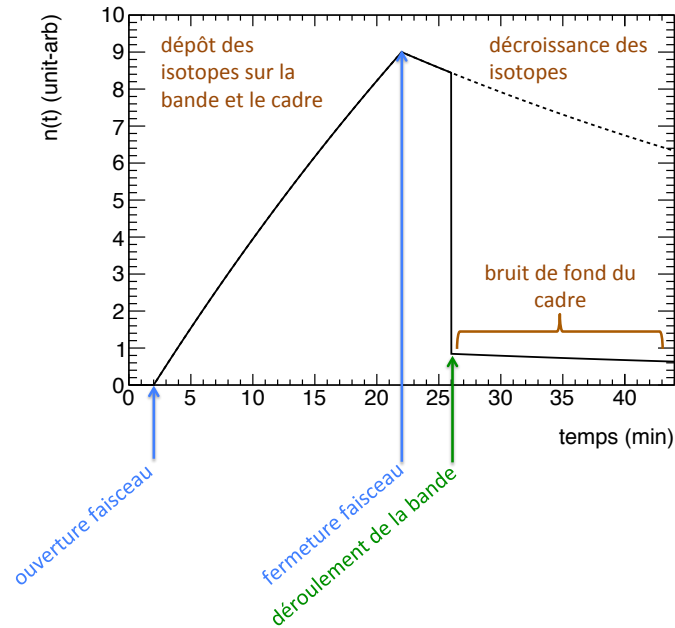


FIGURE 6.2. Illustration de l'évolution d'une population isotopique $n(t)$ en fonction du temps susceptible d'être mesurée par les détecteurs Ge

En déroulant la bande, la majorité de la population isotopique est emmenée loin des détecteurs, cependant une proportion non-négligeable de ces noyaux sont arrêtés par le cadre en métal (le faisceau de produits de fission n'est pas suffisamment focalisé pour permettre une implantation uniquement sur la bande). Cette partie résiduelle induira un biais sur les prochaines mesures. C'est la raison pour laquelle, avant chaque mesure avec faisceau, une mesure du bruit de fond induit par ce dépôt sur le cadre est effectuée.

L'objectif de chaque mesure est de déterminer le nombre de désintégrations de chaque isotope (A,Z) à une charge ionique q et sur une gamme en énergie ΔE centrée sur l'énergie E (plage en énergie comprise entre $E - \frac{\Delta E}{2}$ et $E + \frac{\Delta E}{2}$). Par exemple, on suppose que trois γ caractéristiques de la désintégration de cet isotope ont été sélectionnés : γ_1 , γ_2 et γ_3 . Le nombre de γ ayant une intensité suffisante varie d'un isotope à l'autre. Le spectre γ acquis par les détecteurs Ge fournit un comptage par γ : $\tilde{N}_{\gamma_1}(q, E)$, $\tilde{N}_{\gamma_2}(q, E)$ et $\tilde{N}_{\gamma_3}(q, E)$. Avant cette mesure avec faisceau, un spectre γ a été acquis uniquement pour corriger le bruit de fond induit par les isotopes restés sur le cadre après que la bande ait été déroulée. Cette mesure fournit aussi un comptage pour chaque γ : $\text{BDF}_{\gamma_1,q}$, $\text{BDF}_{\gamma_2,q}$ et $\text{BDF}_{\gamma_3,q}$.

Après correction de ce biais, il faut prendre en compte différents paramètres : l'efficacité ϵ_γ des détecteurs Ge, l'intensité I_γ de chaque γ , l'effet de somme f_γ ainsi que la combustion de la cible BU_q . L'effet de somme correspond à la détection simultanée de deux γ par un cristal de Ge (voir § 6.2.1.2).

Ainsi, le nombre de désintégrations de l'isotope (A,Z) à une charge ionique q et sur une

gamme en énergie ΔE estimé à partir du γ_1 est égale à :

$$N_{\gamma_1}(q, E) = \frac{\tilde{N}_{\gamma_1}(q, E) - \alpha_q \text{BDF}_{\gamma_1, q}}{\epsilon_{\gamma_1} I_{\gamma_1} f_{\gamma_1} BU_q} \quad (6.1)$$

avec α_q un coefficient provenant des équations de Bateman intégrées sans source extérieure.

De la même façon, les estimations du nombre de désintégrations à partir des γ_2 et γ_3 est égale à :

$$N_{\gamma_2}(q, E) = \frac{\tilde{N}_{\gamma_2}(q, E) - \alpha_q \text{BDF}_{\gamma_2, q}}{\epsilon_{\gamma_2} I_{\gamma_2} f_{\gamma_2} BU_q} \quad (6.2)$$

$$N_{\gamma_3}(q, E) = \frac{\tilde{N}_{\gamma_3}(q, E) - \alpha_q \text{BDF}_{\gamma_3, q}}{\epsilon_{\gamma_3} I_{\gamma_3} f_{\gamma_3} BU_q} \quad (6.3)$$

Cette mesure a été obtenue pour toutes les charges ioniques q sur une gamme en énergie ΔE . Ainsi, le nombre de désintégrations de l'isotope (A, Z) sur une gamme en énergie ΔE estimé à partir des γ_1 , γ_2 et γ_3 :

$$N_{\gamma_1}(E) = \sum_q N_{\gamma_1}(q, E) \quad (6.4)$$

$$N_{\gamma_2}(E) = \sum_q N_{\gamma_2}(q, E) \quad (6.5)$$

$$N_{\gamma_3}(E) = \sum_q N_{\gamma_3}(q, E) \quad (6.6)$$

Pour n'obtenir plus qu'une seule estimation du nombre de désintégrations de l'isotope (A, Z) sur une gamme en énergie ΔE , on prend la moyenne pondérée par les variances des trois estimations précédentes :

$$\bar{N}_{\gamma}(E) = \frac{\frac{N_{\gamma_1}(E)}{\text{var}[N_{\gamma_1}(E)]} + \frac{N_{\gamma_2}(E)}{\text{var}[N_{\gamma_2}(E)]} + \frac{N_{\gamma_3}(E)}{\text{var}[N_{\gamma_3}(E)]}}{\frac{1}{\text{var}[N_{\gamma_1}(E)]} + \frac{1}{\text{var}[N_{\gamma_2}(E)]} + \frac{1}{\text{var}[N_{\gamma_3}(E)]}} \quad (6.7)$$

Après avoir estimé la distribution en charge ionique, il faut déterminer la distribution en énergie cinétique. Cette dernière peut être mesurée par spectrométrie γ mais cela requiert environ une demi-journée. Par ailleurs, la mesure de cette distribution peut être effectuée en moins d'une demi-heure avec la chambre d'ionisation, mais cela suppose que tous les isotopes d'une même masse possède la même distribution en énergie. C'est cette deuxième solution qui a été retenue, dans le but d'avoir des temps de mesure raisonnables. La distribution en énergie permet d'accéder à la probabilité $p(\Delta E)$ de la gamme en énergie ΔE . Sur la figure 6.3, $p(\Delta E)$ correspond à la proportion d'aire hachurée par rapport à l'aire totale sous la courbe. Ainsi le nombre de désintégrations de l'isotope (A, Z) est égal à :

$$N(A, Z) = \frac{\bar{N}_{\gamma}(E)}{p(\Delta E)} \quad (6.8)$$

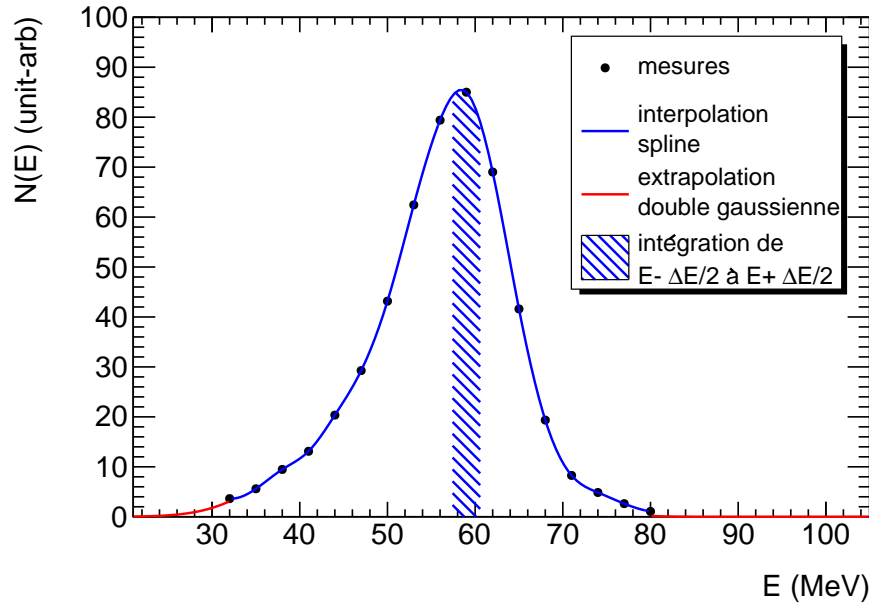


FIGURE 6.3. Distribution en énergie mesurée avec la chambre d'ionisation de la masse 133 à la charge ionique 21 de la cible "isotopique 4/4". L'aire hachurée représente l'intégrale de la distribution en énergie de $E - \Delta E/2$ à $E + \Delta E/2$.

Le nombre de désintégrations $N(A, Z)$ de chaque isotope (A, Z) permet de remonter au rendement indépendant $\tilde{Y}(A, Z)$ connu à un facteur de normalisation près, grâce aux équations de Bateman intégrées.

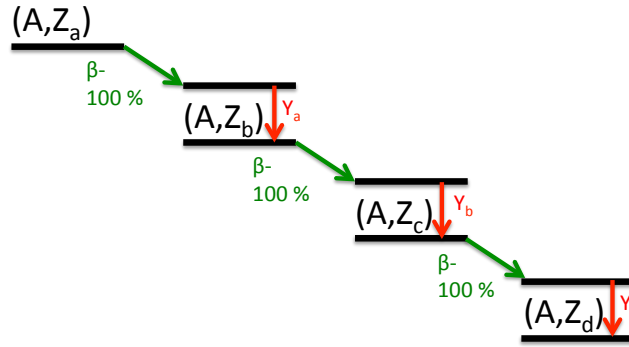
Pour comprendre le principe de cette correction, prenons un exemple simplifié. Soit une masse A constituée de quatre isotopes (A, Z_a) , (A, Z_b) , (A, Z_c) et (A, Z_d) , dont trois, (A, Z_a) , (A, Z_b) et (A, Z_c) , sont produits par la fission avec des rendements relatifs $\tilde{Y}(A, Z_a)$, $\tilde{Y}(A, Z_b)$ et $\tilde{Y}(A, Z_c)$ à déterminer. La figure 6.4 présente le schéma de désintégration de cette masse A .

Supposons que leurs temps de demi-vie T_a , T_b et T_c soient très petits devant le temps d'une mesure, en d'autres termes que les produits de fission décroissent rapidement après s'être arrêtés sur la bande.

Pour chaque charge ionique q , les détecteurs Germanium ont acquis un spectre γ pendant le même temps de mesure Δt . Les étapes précédentes ont permis de déterminer le nombre de désintégrations de chaque isotope : $N(A, Z_a)$, $N(A, Z_b)$ et $N(A, Z_c)$.

Ce nombre de désintégrations est égal au nombre de désintégrations de l'isotope (A, Z_i) avec $i \in \{a, b, c\}$, qui a été créé soit par fission, soit par désintégration β^- du père (eq. 6.9).

Remarquons que le rendement de l'isotope (A, Z_b) dépend du nombre de désintégrations des isotopes (A, Z_a) , (A, Z_b) , tout comme le rendement du noyau (A, Z_c) dépend du nombre de désintégrations des noyaux (A, Z_a) , (A, Z_b) et (A, Z_c) .

FIGURE 6.4: Schéma de désintégration simplifié d'une masse A

$$\begin{cases} N(A, Z_a) = \tilde{Y}(A, Z_a) \Delta t \\ N(A, Z_b) = [\tilde{Y}(A, Z_a) + \tilde{Y}(A, Z_b)] \Delta t \\ N(A, Z_c) = [\tilde{Y}(A, Z_a) + \tilde{Y}(A, Z_b) + \tilde{Y}(A, Z_c)] \Delta t \end{cases} \quad (6.9)$$

$$\Leftrightarrow \begin{cases} \tilde{Y}(A, Z_a) = N(A, Z_a) / \Delta t \\ \tilde{Y}(A, Z_b) = [N(A, Z_b) - N(A, Z_a)] / \Delta t \\ \tilde{Y}(A, Z_c) = [N(A, Z_c) - N(A, Z_b)] / \Delta t \end{cases} \quad (6.10)$$

Dans cet exemple, les temps de demi-vie sont supposés négligeables devant le temps de la mesure Δt ce qui simplifie considérablement la correction appliquée. Cependant, cela n'est jamais le cas pour tous les isotopes d'une masse. Prenons le cas de la masse 139, l' ^{139}I , le ^{139}Xe , le ^{139}Cs et le ^{139}Ba ont respectivement des temps de demi-vie de 2 s, 40 s, 9 min et 83 min alors qu'une mesure dure en général de 20 à 30 min. Ainsi, même à la fin de la mesure, le régime asymptotique est loin d'être atteint et il est donc nécessaire de résoudre les équations de Bateman intégrées sans simplification pour obtenir $\tilde{Y}(A, Z)$.

La dernière étape consiste à normaliser les rendements relatifs $\tilde{Y}(A, Z)$ pour obtenir des rendements absolus $Y(A, Z) = k \times \tilde{Y}(A, Z)$, où k est le coefficient de normalisation. Pour cela, plusieurs méthodes sont envisageables. Nous en citerons trois :

- Tout d'abord, en se basant sur le rendement indépendant d'un isotope particulier (A_p, Z_p) provenant d'une bibliothèque d'évaluation ($k = k_1$ dans eq. 6.11).
- Une autre méthode est de se normaliser sur la somme de plusieurs isotopes ($k = k_2$ dans eq. 6.12).
- La troisième méthode est de trouver une masse A , dont les rendements de tous les isotopes ont pu être déterminés. C'est le cas de la masse 139, dont l'isotope de plus haute charge nucléaire Z produit par la fission, ^{139}Ba , a un temps de demi-vie de l'ordre de grandeur du temps de mesure (83 min comparé à 30 min). Ainsi, il est possible de se normaliser sur le rendement $Y(139)$ de la masse 139 qui a notamment été déterminé lors des mesures de rendements en masse ($k = k_3$ dans eq. 6.13).

$$k_1 = Y_{biblio}(A_p, Z_p) / \tilde{Y}(A_p, Z_p) \quad (6.11)$$

$$k_2 = \sum_{A,Z} Y_{biblio}(A, Z) / \sum_{A,Z} \tilde{Y}(A, Z) \quad (6.12)$$

$$k_3 = Y(139) / \sum_Z \tilde{Y}(139, Z) \quad (6.13)$$

6.1.2 Méthode d'analyse

6.1.2.1 Analyse des spectres γ

Les spectres γ obtenus avec les détecteurs Ge sont analysés avec le logiciel TV [106]. Il faut tout d'abord définir une zone d'intérêt ainsi que des zones de bruit de fond. Les zones de bruit de fond sont ajustées dans la majorité des cas avec un polynôme d'ordre 1 (quelques fois avec un polynôme d'ordre 2). L'évaluation du nombre de coups dans une raie γ est ensuite réalisée suivant deux méthodes : par l'ajustement du spectre et par l'intégrale sur les canaux de la zone d'intérêt moins le bruit de fond. L'ajustement est réalisé après avoir fourni une position de pic a priori. L'intégrale sur les canaux ne nécessite pas de définir de paramètre supplémentaire.

Les informations recueillies sont ensuite rassemblées dans des tableaux, comme celui de la figure 6.5. Les colonnes correspondent aux différents spectres acquis. Ces spectres correspondent aux mesures réalisées pour les différents réglages du spectromètre ainsi que les mesures de l'activité résiduelle des isotopes présents sur les éléments fixes. Toutes les lignes du tableau correspondent à un unique γ caractéristique de la désintégration de l'isotope étudié. Les informations des quatre premières lignes (fond bleu) sont relatives à la méthode de l'ajustement. Sur les cinq lignes suivantes figurent les informations extraites de la deuxième méthode par intégration sur les canaux (fond rouge). Les lignes suivantes correspondent à des éléments de comparaison des deux méthodes ainsi que des informations complémentaires.

Quand plusieurs pics se superposent, les deux méthodes évoluent. Dans le cas de l'ajustement, la position a priori, non plus du pic mais de chaque pic, est définie dans la zone d'intérêt. De plus, la largeur de chaque pic est imposée constante. Dans le cas de la méthode par intégration, l'aire totale est pondérée par le résultat des ajustements obtenu avec l'autre méthode. Par exemple, supposons qu'il y ait trois pics dans la zone d'intérêt. L'ajustement fournit les aires A_1 , A_2 et A_3 . L'intégrale sur les canaux privée du bruit de fond est égale à I . Alors, le nombre de coups I_2 du pic 2 évalué par la méthode de l'intégration est égale à :

$$I_2 = I \frac{A_2}{A_1 + A_2 + A_3} \quad (6.14)$$

		type de mesure	Mesure du bruit de fond du cadre (faisceau fermé)	Mesure faisceau ouvert
Isotope	Ey	charge q pour le faisceau ouvert	Informations sur le spectre γ	
		temps de la mesure		
		numéro de fichier		
		position du γ fournie par l'ajustement	Informations fournies par TV relatives à l'ajustement du pic γ	
		écart-type fourni par l'ajustement		
		aire du pic fournie par l'ajustement		
		erreur sur l'aire		
		intégrale sur la zone d'intérêt = somme sur les canaux	Informations fournies par TV relatives à l'intégrale γ (sans ajustement)	
		aire du bruit de fond dans la zone d'intérêt		
		erreur sur l'aire du bruit de fond		
		intégrale γ = intégrale sur la zone d'intérêt - aire du bruit de fond	Calculs effectuées à partir des informations fournies par TV relatives à l'intégrale γ (sans ajustement)	
		erreur sur l'intégrale γ		
		différence relative entre l'aire de l'ajustement et l'intégrale γ	Comparaison de l'aire du pic γ avec et sans ajustement	
		degré du polynôme de l'ajustement du bruit de fond	Informations complémentaires	
nombre de pics dans la zone d'intérêt				
erreur conservée = maximum(erreur sur l'aire de l'ajustement, erreur sur l'intégrale γ , différence entre l'aire de l'ajustement et l'intégrale γ)	Calcul à partir des différentes informations ci-dessus.			

FIGURE 6.5. Informations rassemblées pour chaque γ analysé. Avec les différentes cibles, 22 masses ont été mesurées dont certaines plusieurs fois. Pour chaque masse, la distribution en charge ionique a en moyenne nécessité 18 points. Entre la mesure du bruit de fond du cadre et la mesure avec faisceau ouvert, environ 15 γ sont analysés. Ainsi ce tableau, a dû être rempli environ $22 \times 18 \times 15 \simeq 5000$ fois.

6.1.2.2 Données de structure nucléaire

Alors que la mesure des rendements en masse ne nécessite aucune donnée de structure nucléaire provenant de bibliothèque, les rendements isotopiques sont analysés en s'appuyant sur la connaissance des temps de demi-vie $T_{1/2}$, des intensités I_γ et des schémas de niveaux. L'intensité I_γ correspond à la probabilité d'émettre ce γ par désintégration du noyau père. De plus, cette donnée prend en compte la probabilité de conversion interne ainsi que les désintégrations $(\beta-, n)$. Ces informations proviennent des évaluations ENSDF de novembre 2012. L'erreur associée à l'intensité est comprise entre 1 % et 20 % avec une moyenne à 8 %. Les schémas de niveaux proviennent des évaluations de ENSDF de décembre 2012 et ont été employés comme fichier d'entrée pour le logiciel TRUECOINC dans le cadre de la correction de l'effet de somme. La propagation des incertitudes des temps de demi-vie sur les corrections de Bateman sont négligeables par rapport aux incertitudes provenant des intensités I_γ .

6.1.2.3 Correction de la contamination du cadre

Lors d'une mesure, les produits de fission qui sortent du spectromètre Lohengrin sont arrêtés soit par la bande, ce qui est le cas de la majorité d'entre eux, soit malheureusement par le cadre métallique de la sortie.

À la fin de la mesure, le faisceau est fermé et le réglage du spectromètre est changé, ce qui peut prendre une à deux minutes. Ensuite la bande est déroulée et les produits de fission qui se trouve sur celle-ci sont emmenés loin des détecteurs Germanium, qui ne peuvent plus enregistrer leurs désintégrations. En revanche, les noyaux déposés sur les parties métalliques, demeurent près des détecteurs (fig. 6.6).

Les produits de fission radioactifs, ayant un temps de demi-vie inférieur à la demi-heure, décroissent d'une mesure à l'autre et n'induisent pas de biais sur les rendements. À l'inverse, les noyaux ayant des temps de demi-vie plus long, continuent de décroître lors de la mesure suivante. Ce sont eux qui constituent la contamination du cadre. Ce biais est évalué en effectuant une mesure de bruit de fond en conservant le faisceau fermé juste avant la mesure de rendement. La figure 6.7 présente la chronologie des différents étapes de la mesure.

Au moment de la mesure cadre, le faisceau est fermé, ce qui implique qu'il n'y a pas de renouvellement de la population isotopique. Si l'on considère la présence d'un seul isotope, dont la constante de désintégration est notée λ , sa population n est régie par l'équation de Bateman suivante :

$$\frac{dn}{dt} = -\lambda n \quad (6.15)$$

Ainsi en résolvant l'équation précédente, et en notant n_0 le nombre de noyaux au temps initial, on obtient :

$$n(t) = n_0 \exp(-\lambda t) \quad (6.16)$$

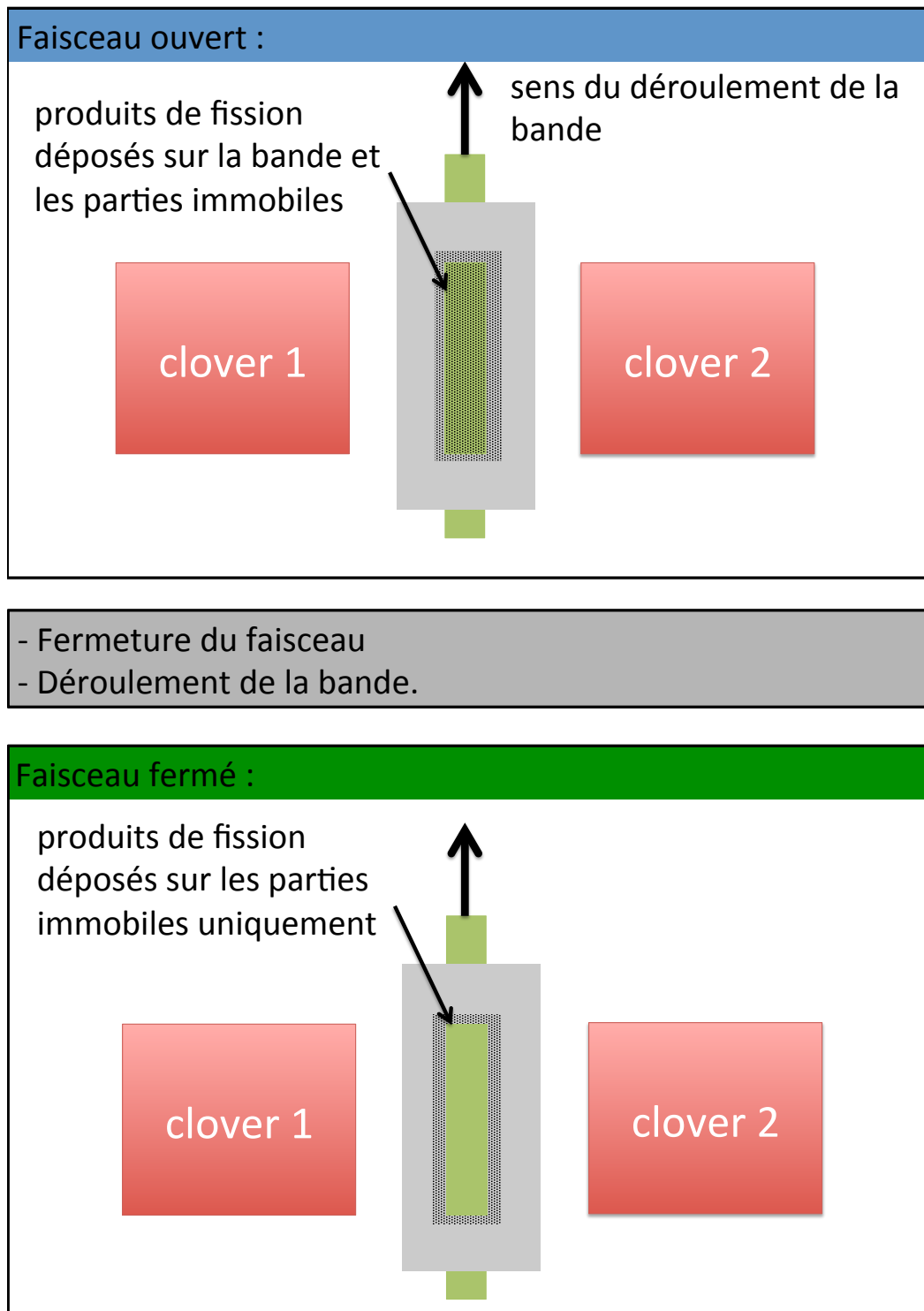


FIGURE 6.6. Schéma du dépôt de produits de fission sur la bande ainsi que les parties immobiles du dispositif expérimental.

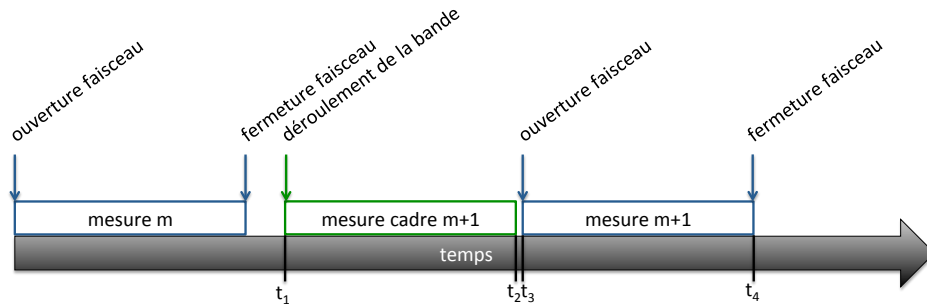


FIGURE 6.7: Chronologie d'une mesure de rendement isotopique.

Pour pouvoir corriger du biais induit par la présence résiduel de noyaux sur le cadre, il faut trouver une relation entre le nombre de coups de la “mesure cadre” et le biais lors de la “mesure”.

Tout d’abord, définissons les différents temps d’intérêt :

- t_1 : début de la mesure cadre
- t_2 : fin de la mesure cadre
- t_3 : début de la mesure avec faisceau
- t_4 : fin de la mesure avec faisceau

Il faut noter que t_2 et t_3 sont seulement espacés de quelques secondes (4s). La mesure du bruit de fond du cadre correspond au nombre de désintégrations qui ont lieu entre t_1 et t_2 sachant que le taux de désintégration est égal à $\lambda n(t)$

$$BDF = \int_{t_1}^{t_2} \lambda n(t) dt = n_0 [\exp(-\lambda t_1) - \exp(-\lambda t_2)] \quad (6.17)$$

Le biais M induit sur la mesure (m+1) est égal aux nombre de désintégrations entre les temps t_3 et t_4 du résidus de noyaux restés sur le cadre provenant de la mesure m et uniquement ceux-là.

$$M = \int_{t_3}^{t_4} \lambda n(t) dt = n_0 [\exp(-\lambda t_3) - \exp(-\lambda t_4)] \quad (6.18)$$

Si le temps de mesure cadre et le temps de mesure sont égaux avec $t_4 - t_3 = t_2 - t_1 = \Delta t$, une relation simple apparaît entre BDF et M :

$$M = BDF \times \exp[-\lambda(t_3 - t_1)] \quad (6.19)$$

Lorsque les temps sont inégaux, ou que les isotopes sont plus nombreux, les calculs deviennent plus compliqués, c’est la raison pour laquelle ils ont été réalisés de façon numérique. Le développement de ces calculs est présenté en annexe E.

La figure 6.8 présentent les distributions en charge ionique q du ^{139}Ba pour trois cibles avant et après correction du cadre.

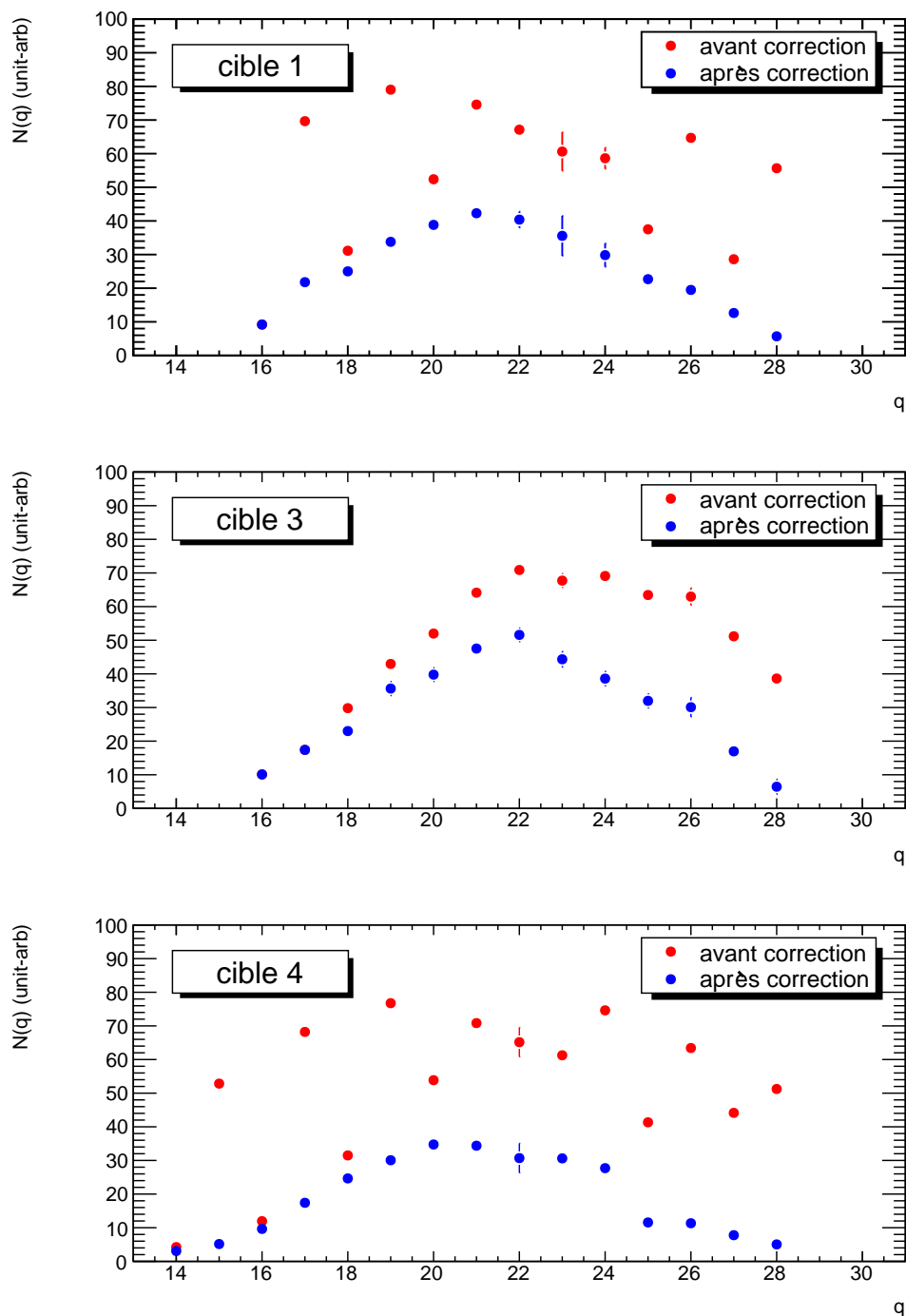


FIGURE 6.8. La distribution en charge ionique de la masse 139 de la raie de 166keV du barium ^{139}Ba avant et après correction du cadre pour les cibles 1, 3 et 4.

6.1.2.4 Intégration des équations de Bateman

Pour déduire les rendements à partir du nombre de désintégrations, il faut résoudre les équations de Bateman intégrées sur le temps. Commençons par le cas de deux isotopes dont la résolution des équations et l'intégration sur le temps est relativement aisées de façon analytique.

Equation de Bateman :

$$\begin{cases} \frac{dn_1}{dt} = -\lambda_1 n_1 + \tilde{Y}_1 \\ \frac{dn_2}{dt} = -\lambda_1 n_2 + \lambda_1 n_1 + \tilde{Y}_2 \end{cases} \quad (6.20)$$

Résolution des équations de Bateman :

$$\begin{cases} n_1(t) = \frac{\tilde{Y}_1}{\lambda_1} [1 - \exp(-\lambda_1 t)] \\ n_2(t) = \frac{\tilde{Y}_1}{\lambda_1 - \lambda_2} [\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)] + \frac{\tilde{Y}_1 + \tilde{Y}_2}{\lambda_2} [1 - \exp(-\lambda_2 t)] \end{cases} \quad (6.21)$$

Intégration du nombre de désintégration sur le temps de la mesure :

$$\begin{cases} N_1(t) = \int_0^t \lambda_1 n_1(t) dt \\ \quad = \tilde{Y}_1 \left[t - \frac{1 - \exp(-\lambda_1 t)}{\lambda_1} \right] \\ N_2(t) = \int_0^t \lambda_2 n_2(t) dt \\ \quad = \tilde{Y}_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} \left[\frac{1 - \exp(-\lambda_1 t)}{\lambda_1} - \frac{1 - \exp(-\lambda_2 t)}{\lambda_2} \right] \\ \quad \quad + (\tilde{Y}_1 + \tilde{Y}_2) \left[t - \frac{1 - \exp(-\lambda_2 t)}{\lambda_2} \right] \end{cases} \quad (6.22)$$

Rendement isotopique relatif, c'est-à-dire la part produit par la fission et non par les désintégrations successives en fonction de la mesure du nombre de désintégrations :

$$\begin{cases} \tilde{Y}_1 = N_1(t) / \left[t - \frac{1 - \exp(-\lambda_1 t)}{\lambda_1} \right] \\ \tilde{Y}_2 = N_2(t) / \left[t - \frac{1 - \exp(-\lambda_2 t)}{\lambda_2} \right] \\ \quad - \tilde{Y}_1 \left\{ 1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} \left[\frac{1 - \exp(-\lambda_1 t)}{\lambda_1} - \frac{1 - \exp(-\lambda_2 t)}{\lambda_2} \right] / \left[t - \frac{1 - \exp(-\lambda_2 t)}{\lambda_2} \right] \right\} \end{cases} \quad (6.23)$$

À partir de trois isotopes, ces calculs deviennent extrêmement complexes. C'est la raison pour laquelle la résolution des équations de Bateman ainsi que l'intégration sont faites de façon numérique via le module d'algèbre linéaire de ROOT. Les démonstrations se trouvent dans l'annexe E.

6.1.2.5 Intégration sur l'énergie cinétique

La distribution en charge ionique mesurée par spectrométrie γ fournit le nombre de désintégrations $N(A, Z, E)$ d'un isotope (A, Z) donné ayant une énergie cinétique comprise entre $E - \frac{\Delta E}{2}$ et $E + \frac{\Delta E}{2}$. Cette gamme en énergie ΔE correspond à la dispersion en énergie du spectromètre Lohengrin (cf. § 3.2). Par exemple, celle-ci s'étend sur 2.67 MeV pour une énergie moyenne de 50 MeV ($48.66 < E < 51.34$).

Pour obtenir le nombre de désintégrations $N(A, Z)$ intégré sur l'énergie cinétique, le nombre de désintégrations $N(A, Z, E)$ est divisé par la probabilité $p(\Delta E)$ que l'isotope (A, Z) est une énergie cinétique comprise dans la gamme en énergie ΔE :

$$N(A, Z) = N(A, Z, E)/p(\Delta E). \quad (6.24)$$

$$\text{avec } p(\Delta E) = \frac{\int_{E-\Delta E/2}^{E+\Delta E/2} f(E)dE}{\int_0^{\infty} f(E)dE}$$

où $f(E)$ est la distribution en énergie cinétique de l'isotope (A, Z) .

La distribution en énergie cinétique de chaque masse a été mesurée avec la chambre d'ionisation (méthode bien plus rapide que par spectrométrie γ) et on fait l'hypothèse que l'ensemble des isotopes de la masse A a la même distribution en énergie cinétique $f(E)$ à la sortie de la cible. Cette hypothèse se justifie par le fait que les cibles utilisées pour les mesures de rendements isotopiques sont épaisses et imposent en grande partie la forme des distributions en énergie cinétique.

6.2 La caractérisation du dispositif expérimental

6.2.1 L'efficacité des détecteurs Ge en tenant compte de la cascade de désexcitation

6.2.1.1 Efficacité du pic photoélectrique (ou pic d'énergie totale)

L'efficacité d'un détecteur est le rapport entre les événements détectés répondant à un certains critères et les événements réels.

L'efficacité du pic photoélectrique, appelé aussi pic d'énergie totale, à l'énergie E_γ est définie de la façon suivante :

$$\epsilon_{absolue}^{ph}(E_\gamma) = \frac{N_\gamma^{ph}}{N_\gamma^{source}} \quad (6.25)$$

avec :

- N_γ^{ph} le nombre de γ ayant déposé toute leur énergie E_γ dans le détecteur par effet photoélectrique ou par du multi-compton suivi d'un effet photoélectrique.
- N_γ^{source} le nombre de γ d'énergie E_γ émis par la source pendant le temps Δt de la mesure : $N_\gamma^{source} = \int_{\Delta t} A(t) I_\gamma dt$ avec $A(t)$ l'activité de la source et I_γ l'intensité de la raie γ .

De manière similaire, l'efficacité totale à l'énergie E_γ est définie ci-dessous :

$$\epsilon_{absolue}^{tot}(E_\gamma) = \frac{N_\gamma^{tot}}{N_\gamma^{source}} \quad (6.26)$$

avec N_γ^{tot} le nombre de γ ayant déposé une partie ou toute leur énergie E_γ dans le détecteur.

Exceptée pour la correction de l'effet de somme présentée au paragraphe suivant, l'analyse des rendements isotopiques ne requiert de connaître que l'efficacité du pic photoélectrique de façon relative :

$$\epsilon_{relative}^{ph}(E_\gamma) = k \times \epsilon_{absolue}^{ph}(E_\gamma) \quad \text{avec le facteur } k \text{ indéterminé} \quad (6.27)$$

Cette efficacité relative du pic photoélectrique est déterminée par simulation Monte-Carlo pour l'ensemble de la gamme en énergie des γ émis par les produits de fission (fig. 6.9). La géométrie fournie par les plans du constructeur est modélisée avec MCNP et la figure 6.10 présente deux coupes de ces détecteurs.

La courbe d'efficacité obtenue avec MCNP a été comparée à des mesures effectuées avec des sources ponctuelles ainsi qu'une source d' ^{96m}Y fournie par le spectromètre Lohengrin. La table 6.1 fournit les énergies ainsi que les intensités des raies γ émises lors de la désintégration par β^- de l'yttrium 96 isomérique ^{96m}Y .

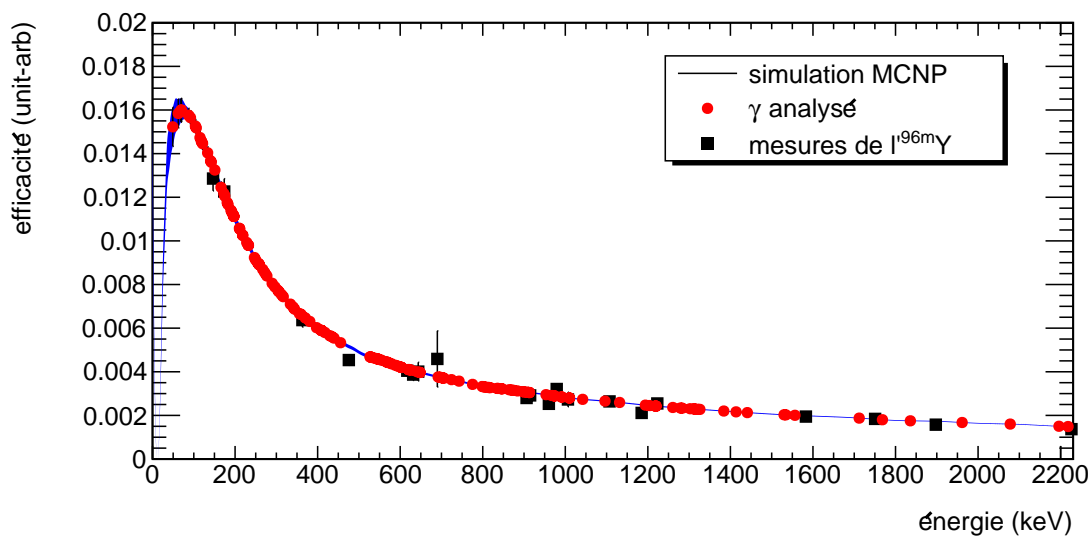


FIGURE 6.9. L'efficacité des Germanium déterminée grâce aux simulations MCNP. Les points rouge correspondent aux γ qui sont analysés lors de la mesure des rendements isotopiques. Les carrés noirs correspondent aux mesures de ^{96m}Y .

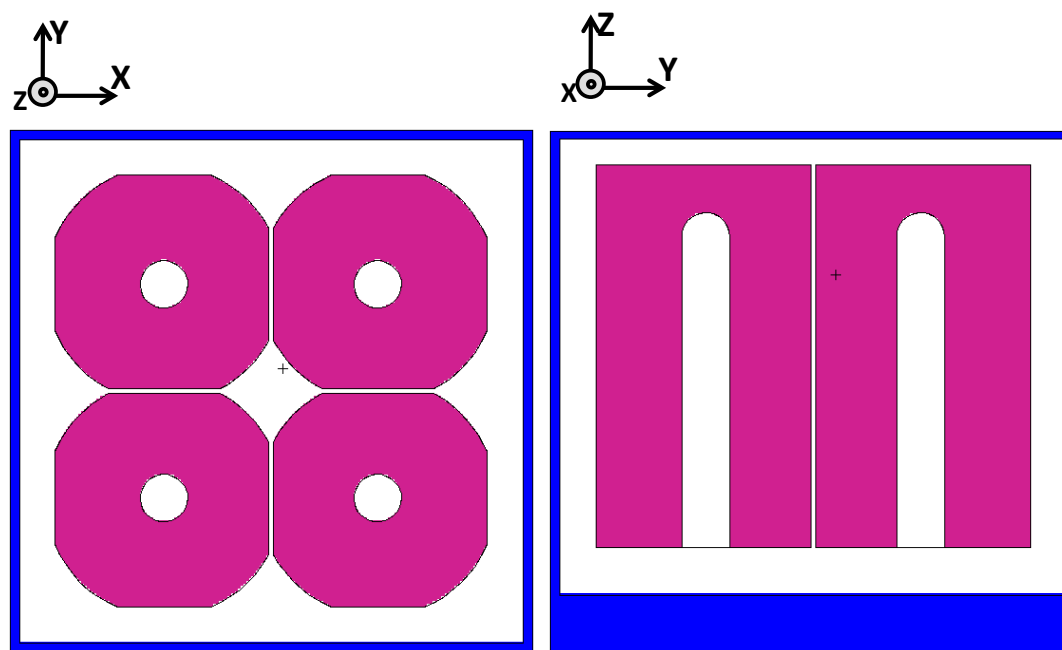


FIGURE 6.10. Détecteur modélisé avec MCNP suivant les plans donnés par le constructeur. Les schémas sont donnés à titre indicatif. Les quatre cristaux en germanium (en rose) sont positionnés au sein d'une boîte en aluminium (en bleu).

TABLE 6.1. *Energies et intensités des raies γ de ^{96m}Y utilisés pour l'efficacité des détecteurs Germanium*

E_γ (keV)	I_γ (%)	E_γ (keV)	I_γ (%)
146.653	34.056 %	960.2	3.96 %
173.7	2.112 %	979.2	3.608 %
363.1	22.528 %	1006.4	1.144 %
475.6	3.08 %	1107.2	48.136 %
617.2	55. %	1185.0	3.432 %
631.45	7.48 %	1222.9	26.752 %
643.7	1.496 %	1582.9	1.584 %
690.0	1.144 %	1750.6	88. %
906.2	20.24 %	1897.6	5.016 %
914.8	58.96 %	2226.2	5.544 %

6.2.1.2 Prise en compte de l'effet de somme

Pour comprendre l'effet de somme, prenons un cas simple d'un isotope radioactif X , qui émet deux γ à chaque désintégration β^- . La figure 6.11 présente le schéma de désintégration de cet isotope X . L'émission des deux γ , notés γ_1 et γ_2 , est supposée isotrope.

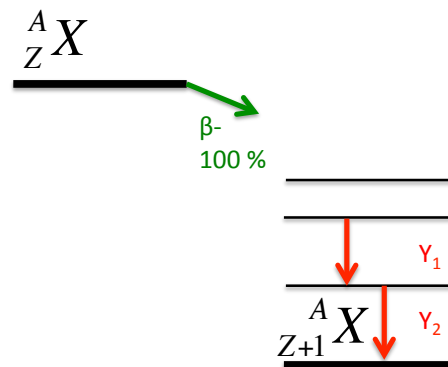


FIGURE 6.11. *Le schéma de désintégration de l'isotope X . À chaque désintégration β^- , γ_1 et γ_2 sont émis.*

Les γ sont mesurés avec un détecteur Germanium. Pour un cristal, les efficacités du pic d'énergie totale, appelé aussi pic photoélectrique, sont notées respectivement ϵ_1^{ph} et ϵ_2^{ph} et les efficacités totales sont notées respectivement ϵ_1^{tot} et ϵ_2^{tot} . Toutes ces efficacités sont absolues.

Le nombre de désintégrations pendant le temps de mesure Δt de la source d'isotopes X ayant une activité A , est égal à $A\Delta t$.

Dans le spectre γ , il a trois pics, qui comptabilisent les nombres de coups N_1 , N_2 et N_{12} , et qui se trouvent respectivement aux énergies E_1 , E_2 et $E_{12} = E_1 + E_2$. Ce dernier pic correspond au dépôt dans le cristal par les deux γ de l'ensemble de leur énergie.

Les nombres de coups peuvent être reliés à l'activité de la source via les équations suivantes :

$$N_1 = A\Delta t \epsilon_1^{ph} \underbrace{(1 - \epsilon_2^{tot})}_{(6.28)}$$

$$N_2 = A\Delta t \epsilon_2^{ph} \underbrace{(1 - \epsilon_1^{tot})}_{(6.29)}$$

$$N_{12} = A\Delta t \epsilon_2^{ph} \epsilon_1^{ph} \quad (6.30)$$

D'après les équations 6.28 et 6.29, les corrections des effets de somme pour les pics 1 et 2 sont égales à $1 - \epsilon_2^{tot}$ et $1 - \epsilon_1^{tot}$ respectivement. Cette correction à la main est possible tant que le schéma de désintégration est simple, ce qui n'est pas le cas pour la majorité des noyaux que l'on étudie, c'est pourquoi un logiciel dédié à ce calcul a été employé (TRUECOINC).

Le logiciel TRUECOINC calcule les corrections d'effet de somme, à partir de la courbe d'efficacité d'énergie totale, la courbe d'efficacité totale et le schéma de niveaux de la désintégration correspondante. Les courbes d'efficacité sont normalisées grâce à une mesure effectuée avec une source de ^{60}Co . L'activité de la source est déterminée en utilisant le pic somme et sans oublier de corriger de l'anisotropie particulièrement importante pour ce noyau. Les schémas de niveaux proviennent de la bibliothèque ENSDF de décembre 2012.

La figure 6.12 présente les corrections obtenues avec le logiciel TRUECOINC en fonction de l'énergie des γ . Les facteurs correctifs sont compris entre 0.85 et 1.05 et aucune tendance particulière ne semble se dégager.

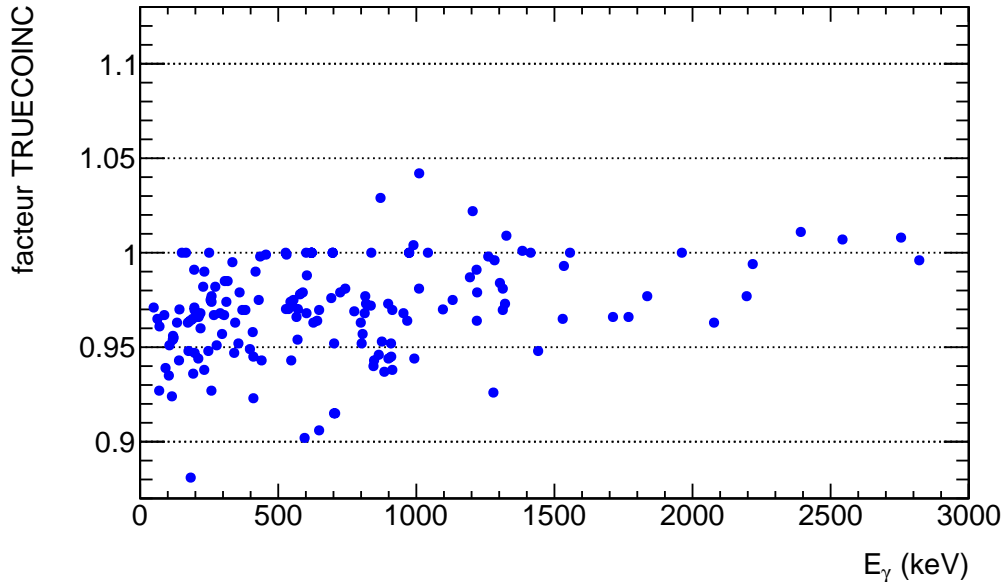


FIGURE 6.12. La correction de l'effet de somme fournie par TRUECOINC en fonction de l'énergie des gamma

Dans la majorité des cas, l'efficacité observée est inférieure à l'efficacité théorique (facteur <1). Cela correspond à la détection par le cristal, en plus du γ d'intérêt, d'un deuxième γ qui dépose une partie ou la totalité de son énergie.

Dans certains cas, le facteur correctif peut être supérieur à 1. C'est le cas, par exemple, du γ de 870 keV issu de la désintégration du ^{135}Te . La figure 6.13 présente l'ensemble du schéma de désintégration β^- du ^{135}Te , dont est extrait le schéma simplifié de la figure 6.14. Le dépôt dans un cristal d'une énergie de 870 keV peut correspondre soit au dépôt de la totalité de l'énergie du γ_{870} , soit au dépôt de la totalité de l'énergie des γ_{267} et γ_{603} .

Quand on éloigne les détecteurs, l'efficacité diminue. Cela diminue la correction de l'effet de somme, mais par la même occasion cela diminue aussi le taux de comptage.

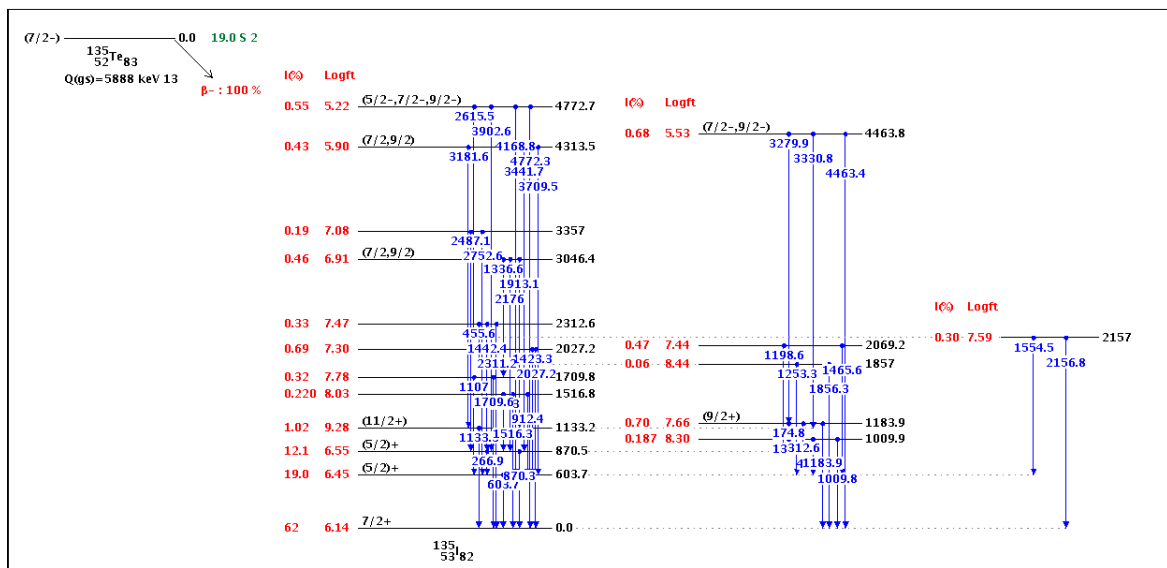


FIGURE 6.13: Le schéma de désintégration du ^{135}Te extrait de ENSDF (mai 2013)

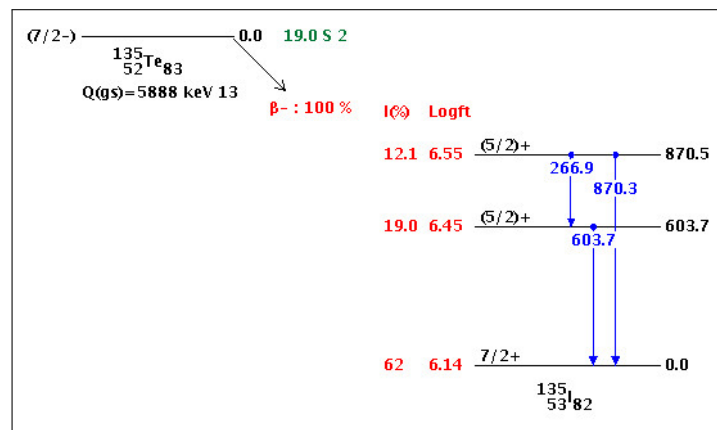


FIGURE 6.14. Le schéma de désintégration β^- simplifié du ^{135}Te extrait de ENSDF (mai 2013)

6.2.2 La combustion de la cible

Au bout d'une à deux semaines, le nombre de fissions par seconde dans la cible devient insuffisant pour pouvoir mesurer des rendements. D'une cible à l'autre, l'évolution de la combustion de la cible (aussi nommée "burn-up" ou BU) présente des comportements extrêmement différents, ce qui amène à la suivre par des mesures régulières. Comme pour les rendements en masse, notre choix a été d'effectuer des distributions en énergie de la masse 136 de façon répétée avec une chambre d'ionisation, qui est placée au niveau de la sortie droite du spectromètre. En effet, le spectromètre Lohengrin possède deux sorties de faisceaux, qui ont été utilisées dans cette expérience. La première sortie, où est placé le dispositif de spectrométrie γ , est située après un aimant focalisant appelé RED. Si cet aimant n'est pas alimenté en courant, les produits de fission ne sont pas déviés et empruntent la sortie droite; c'est là où est installé la chambre d'ionisation.

Comme les cibles utilisées pour mesurer les rendements isotopiques sont plus épaisses que pour les rendements en masse, les distributions en énergie sont beaucoup plus déformées en particulier pour la première cible d' ^{233}U dédiée aux rendements isotopiques.

Il n'est plus possible d'ajuster ces distributions avec la somme de deux distributions gaussiennes et il semble plus approprié d'employer l'interpolation spline, comme le montre la figure 6.15.

La correction du burn-up correspond à l'évolution relative de la combustion de la cible et la forme de la distribution en énergie de la masse 136 évolue peu au cours du temps. Ainsi, nous avons choisi de suivre cette évolution en se basant uniquement sur l'évolution de l'aire en dessous de l'interpolation spline.

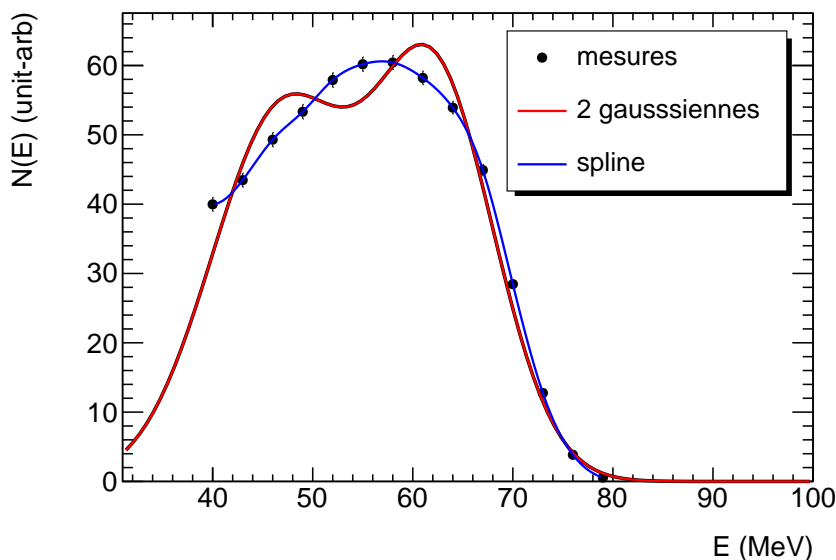


FIGURE 6.15. Distribution en énergie cinétique de la masse 136 mesurée avec la cible épaisse "isotopique 1/4" pour la mesure du burn-up .

L'acquisition d'une distribution que ce soit en énergie cinétique ou en charge ionique avec la chambre d'ionisation ne dépasse que rarement l'heure, alors que la mesure d'un seul point (une masse A , une charge ionique q et une énergie cinétique E) avec les détecteurs Germanium atteint régulièrement cette durée en comptant la mesure du cadre et la mesure avec le faisceau ouvert. Ainsi, la durée totale d'une distribution isotopique est beaucoup plus grande que celle d'une distribution en masse. Cela conduit à corriger de la combustion de la cible chaque point de mesure effectuée par spectrométrie γ .

Les figures 6.16, 6.17 et 6.18 présentent la combustion de la cible en fonction du temps obtenues pour différentes cibles épaisses avec les bandes à un, deux et trois sigmas. Les points noirs correspondent aux mesures de cette combustion. L'évolution de la combustion a été empiriquement ajusté par la somme de deux exponentielles (trait noir) :

$$\text{BU}(t) = A_1 \exp(-\lambda_1 t) + A_2 \exp(-\lambda_2 t) \quad (6.31)$$

Les points rouges correspondent aux corrections de burn-up calculées à partir de l'ajustement, qui sont appliquées aux mesures. Les bandes à 1, 2 et 3 sigmas sont calculées en propageant sur le burn-up la matrice de variance-covariance des paramètres de l'ajustement (A_1, λ_1, A_2 et λ_2).

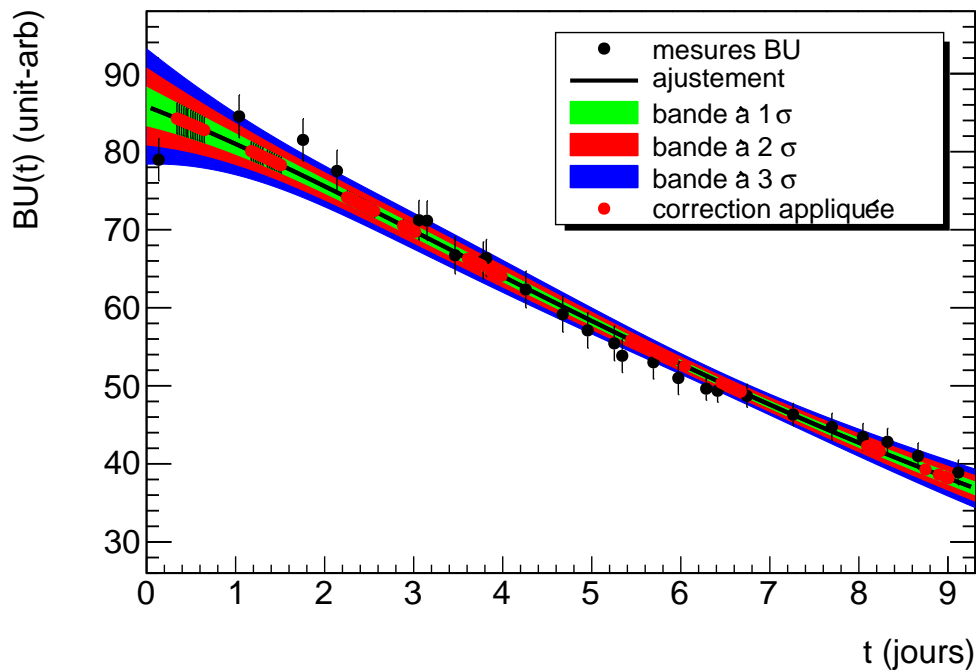
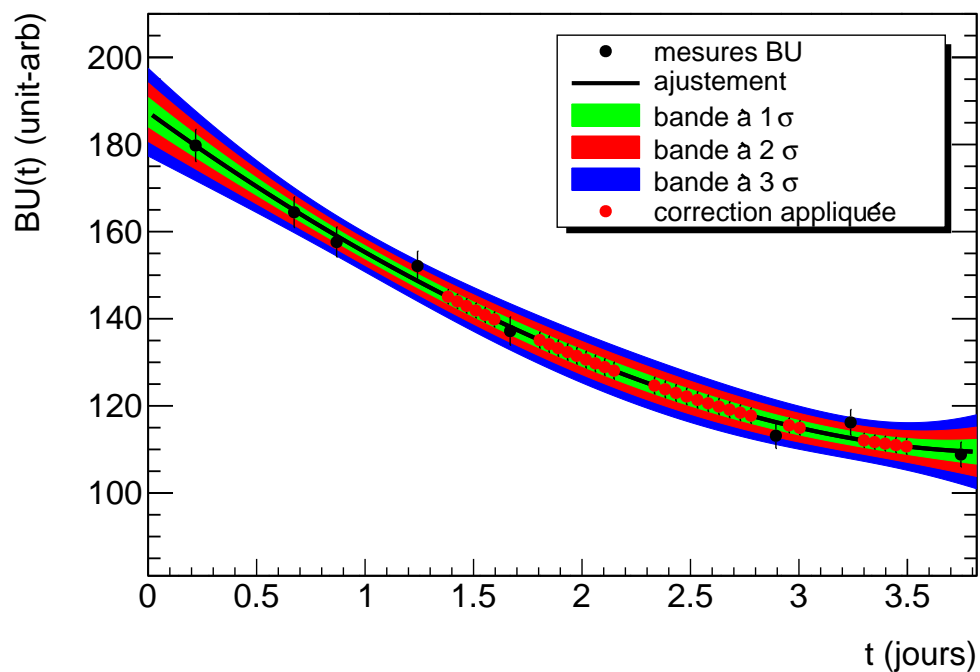
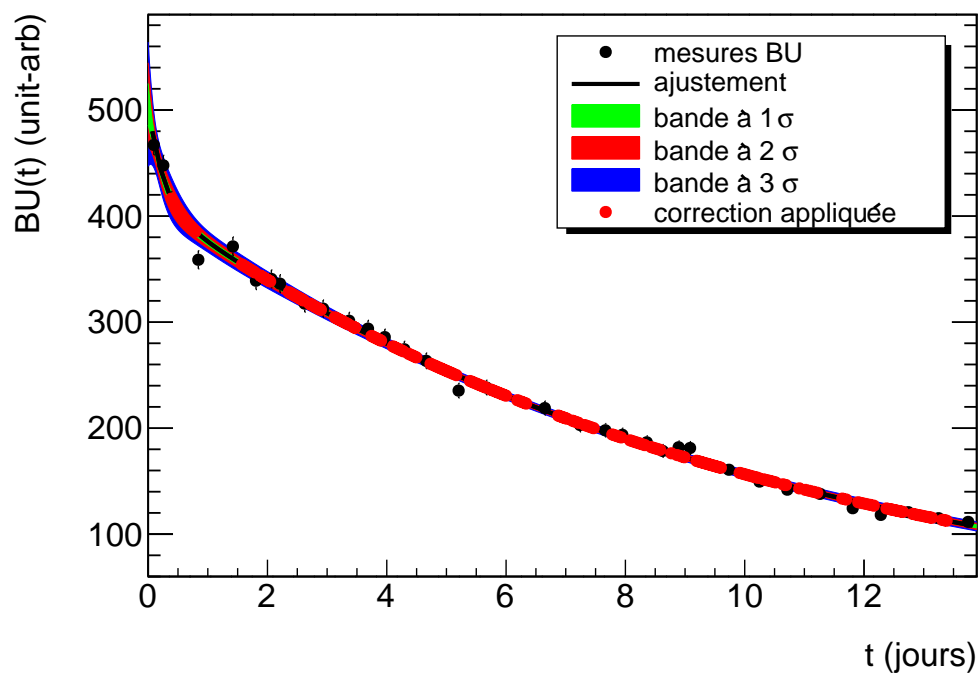


FIGURE 6.16: *Le Burn-up de la cible 1 en fonction du temps*

FIGURE 6.17: *Le Burn-up de la cible 3 en fonction du temps*FIGURE 6.18: *Le Burn-up de la cible 4 en fonction du temps*

6.3 La construction des rendements isotopiques

L'analyse des rendements isotopiques est composée de nombreuses étapes et fait appel à des données de structure nucléaire de différentes natures. La figure 6.19 présente l'enchaînement de ces étapes et le moment où interviennent les multiples données nucléaires (losanges bleus dans la colonne de gauche). La démonstration de la construction des rendements isotopiques se trouve dans l'annexe F.

6.3.1 Distributions en énergie

Les distributions en énergie ont des formes extrêmement différentes d'une cible à l'autre. Les distributions en énergie de la cible "isotopique 1/4" présentent une queue à basse énergie qui n'a pas été mesurée.

À l'opposé, les distributions en énergie de la cible "isotopique 4/4" ont été complètement mesurées et peuvent être représentées par la somme de deux distributions gaussiennes, comme pour les cibles minces.

Le choix qui a été fait est d'employer une interpolation spline, là où la distribution a été mesurée. Pour évaluer les ailes de la distribution, la méthode appliquée est différente selon la cible. La queue à basse énergie est déterminée avec une droite pour les cibles "isotopique 1/4, 2/4 et 3/4" et avec la somme de deux gaussiennes pour la cible "isotopique 4/4".

L'infime pourcentage de l'aire qui n'a pas été mesuré à haute énergie provient de l'ajustement de la somme de deux gaussiennes, mais la prise en compte ou non de cette aire n'influe pas significativement l'évaluation de $p(\Delta E)$.

La figure 6.20 présente les distributions en énergie des masses 135 et 137 mesurées avec la cible "isotopique 1/4". L'ajustement avec une droite de la queue à basse énergie, a un χ^2 réduit de 1.3 et de 0.8 respectivement, ce qui est rassurant malgré l'absence de modèle théorique. De plus, dans le calcul final des rendements isotopiques ce n'est $p(\Delta E)$ d'une masse donnée qui intervient, mais le rapport des $p(\Delta E)$ sur lesquels la même approximation linéaire a été faite pour les basses énergies.

La figure 6.21 présente les distributions en énergie des masses 135 et 139 mesurées avec la cible "isotopique 4/4". L'aire des ailes provenant de l'ajustement avec la somme de deux gaussiennes ne représente qu'une faible proportion de l'aire totale de la courbe.

L'erreur sur $p(\Delta E)$ induira une corrélation entre les isotopes d'une même masse.

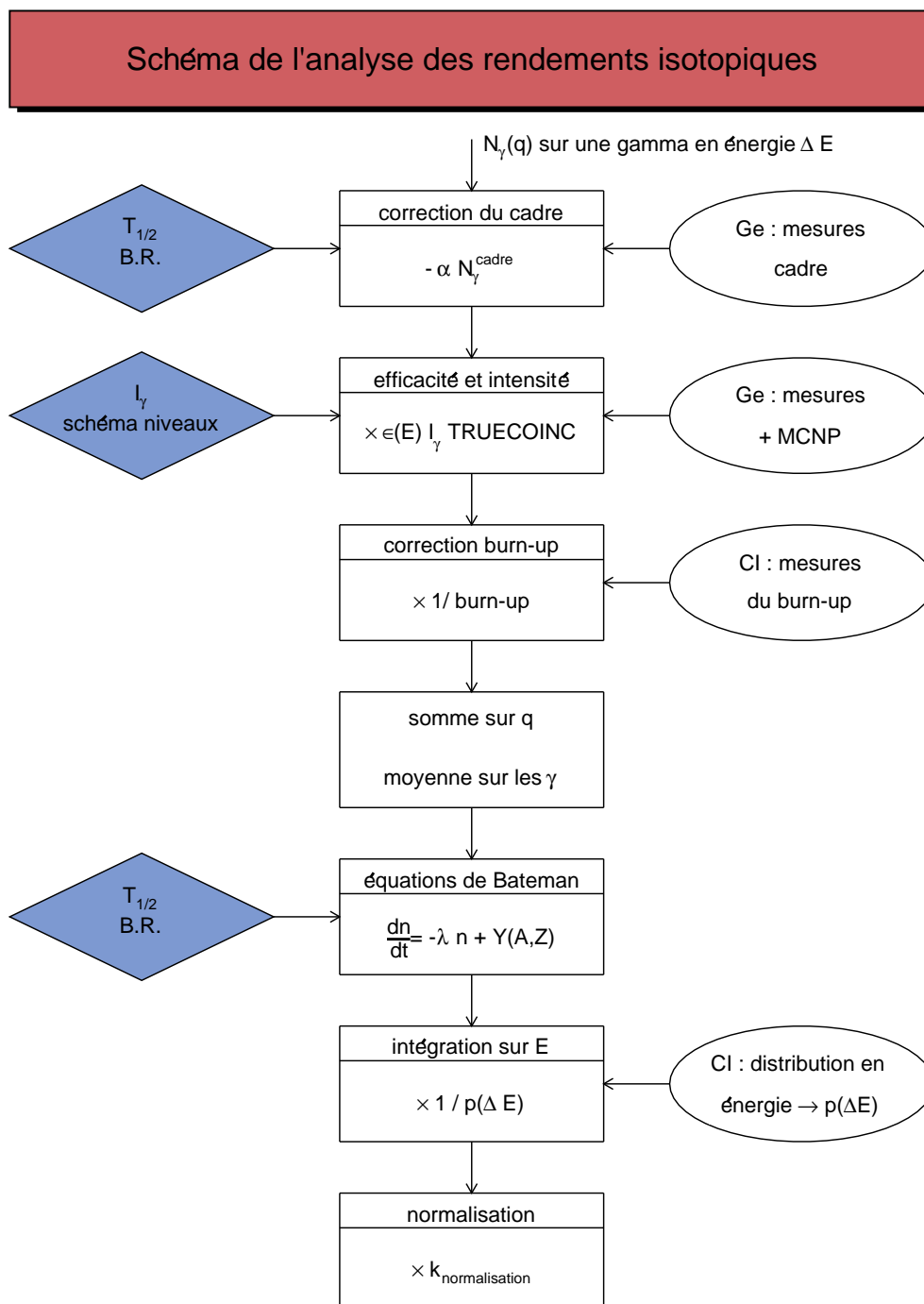


FIGURE 6.19. Les différentes étapes de l'analyse des rendements isotopiques. Notations utilisées pour les données nucléaires : temps de demi-vie $T_{1/2}$, intensité I_γ , rapport d'embranchement B.R. ("branching ratio"). Notations utilisées pour la colonne de droite : Ge pour détecteurs Ge, CI pour Chambre d'Ionisation, burn-up pour la combustion de la cible.

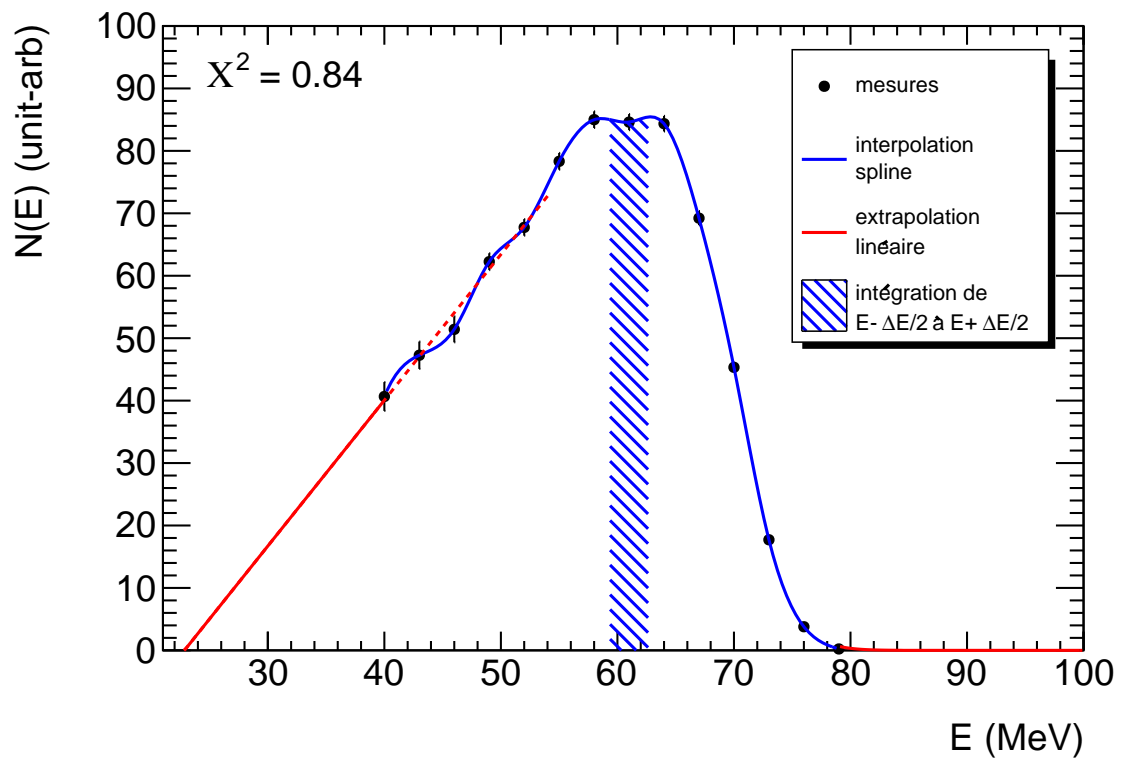
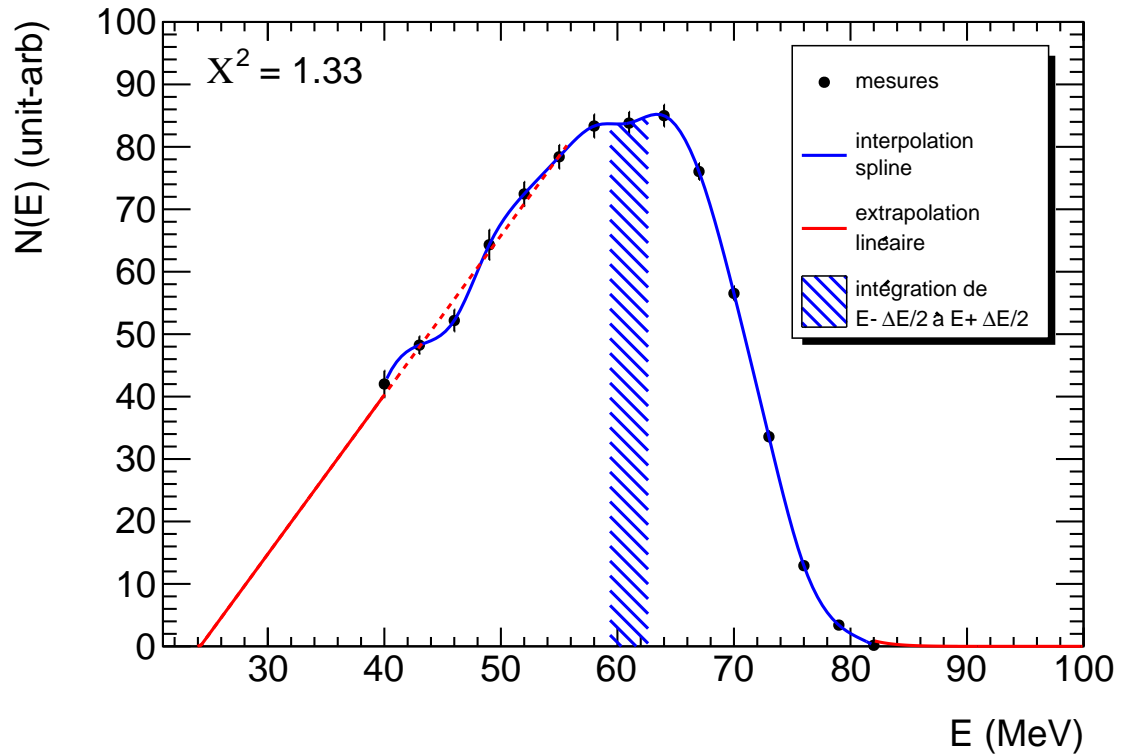


FIGURE 6.20. La distribution en énergie des masses 135 (figure du haut) et 137 (figure du bas) de la cible "isotopique 1/4".

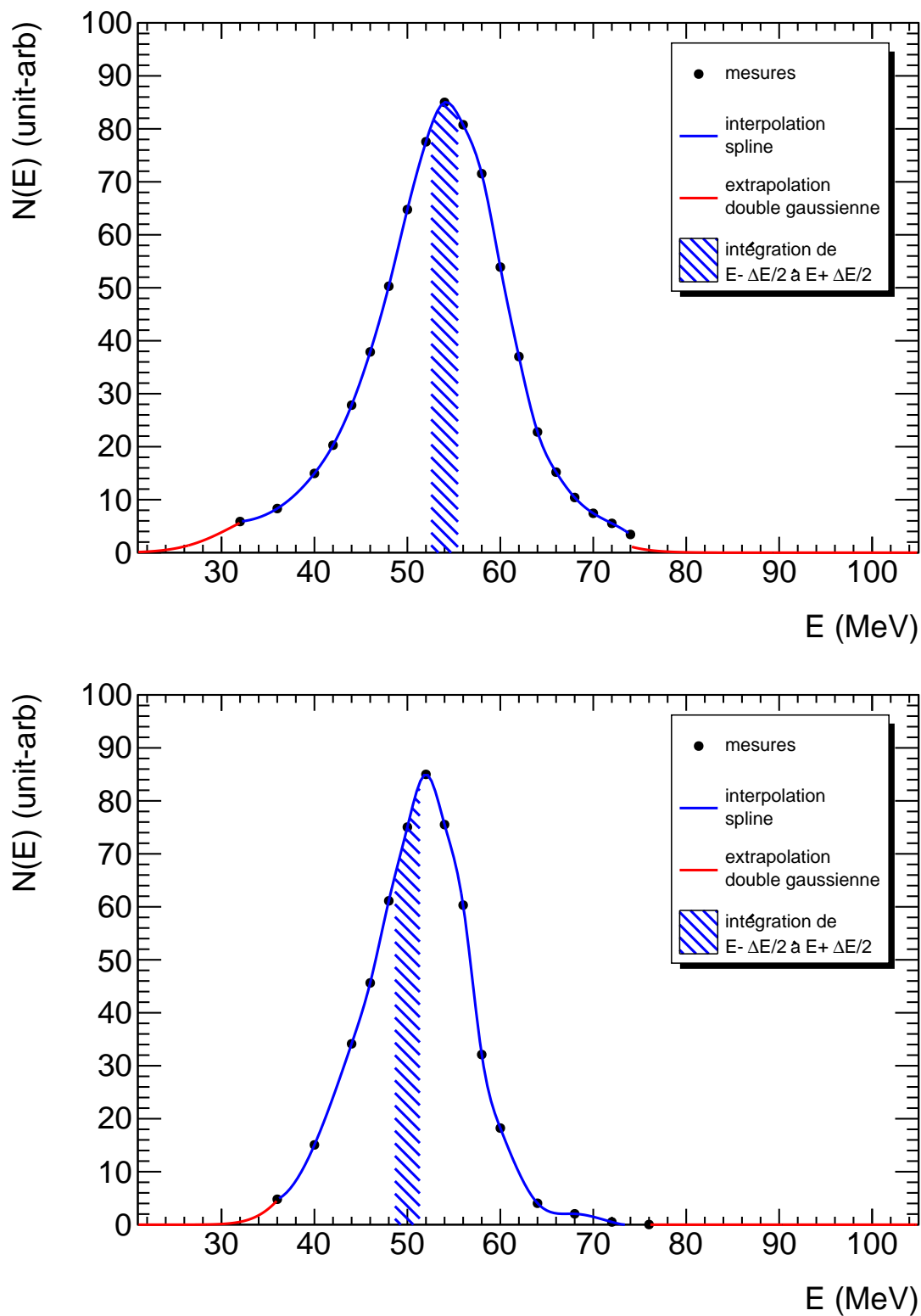


FIGURE 6.21. La distribution en énergie des masses 135 (figure du haut) et 139 (figure du bas) de la cible "isotopique 4/4".

6.3.2 Distributions en charge ionique

La figure 6.22 présente les distributions en charges ioniques avant (nombre de désintégrations) et après correction de Bateman (rendement relatif) des isotopes de la masse 139 mesurée avec la cible 4. La distribution en charge ionique avant correction de Bateman est calculée, en faisant la moyenne des différentes raies γ de chaque isotope pour chaque q (pas de somme sur q). Cette distribution en charge correspond à une gamme en énergie ΔE .

Pour chaque masse mesurée par spectrométrie γ , cette figure a été construite et placée en annexe G.

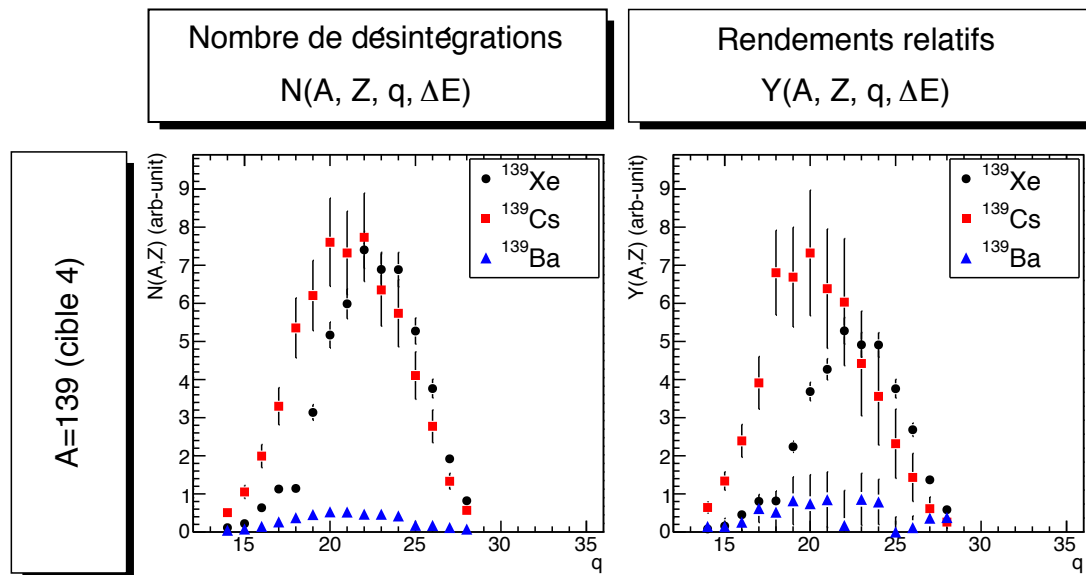


FIGURE 6.22. Les distributions en charge ionique des isotopes de la masses 139 de la cible 4 avant (graphe de gauche) et après (graphe de droite) correction de Bateman.

6.3.3 Normalisation des rendements isotopiques

Au sein d'une même cible, les rendements relatifs $Y(A, Z)$ partagent le même coefficient de normalisation. Parmi les trois possibilités présentées dans le paragraphe 6.1.1, nous avons choisi d'appliquer la troisième méthode, qui a pour avantage de rendre nos données sur le pic lourd indépendantes des évaluations.

Le point de départ de cette méthode pour déterminer le coefficient de normalisation est de trouver une masse sur la cible dont l'isotope de plus haute charge isotopique Z a pu être mesuré par spectrométrie γ .

La table 6.2 présente les temps de demi-vie $T_{1/2}$ et les rendements isotopiques issus de la bibliothèque JEFF-3.1.1. des chaînes isotopiques des masses 139 et 140.

Pour la masse 139, le dernier noyau, qui peut être mesuré par spectrométrie γ sur le spectromètre Lohengrin est le ^{139}Ba avec ses 83 minutes de temps de demi-vie.

Pour la masse 140, le dernier noyau, qui peut être mesuré est le ^{140}Cs .

TABLE 6.2. Les chaînes isotopiques des masses 139 et 140 avec Z , $T_{1/2}$ et $Y(A,Z)$ JEFF-3.1.1

(a) A=139			
isotope	Z	$T_{1/2}$	JEFF-3.1.1
^{139}I	53	2.280 s	$1.42\text{E-}03 \pm 5.03\text{E-}04$
^{139}Xe	54	39.68 s	$2.73\text{E-}02 \pm 4.99\text{E-}03$
^{139}Cs	55	9.27 min	$2.42\text{E-}02 \pm 4.90\text{E-}03$
^{139}Ba	56	83.06 min	$3.43\text{E-}03 \pm 1.16\text{E-}03$
^{139}La	57	STABLE	$1.69\text{E-}05 \pm 6.02\text{E-}06$

(b) A=140			
isotope	Z	$T_{1/2}$	JEFF-3.1.1
^{140}I	53	0.86 s	$2.60\text{E-}04 \pm 9.02\text{E-}05$
^{140}Xe	54	13.60 s	$1.73\text{E-}02 \pm 4.45\text{E-}03$
^{140}Cs	55	63.7 s	$3.18\text{E-}02 \pm 5.49\text{E-}03$
^{140}Ba	56	12.7527 jours	$1.50\text{E-}02 \pm 3.98\text{E-}03$
^{140}La	57	1.67855 jours	$1.78\text{E-}04 \pm 6.15\text{E-}05$
^{140}Ce	58	STABLE	$3.93\text{E-}07 \pm 1.36\text{E-}07$

La figure 6.23 présente les rendements isotopiques en fonction de Z , pour les deux masses considérées ci-dessus. La proportion au sein de chaque masse de noyaux produit par la fission ayant un temps de demi-vie inférieur à 2 h est de :

$$\frac{Y(^{139}\text{I}) + Y(^{139}\text{Xe}) + Y(^{139}\text{Cs}) + Y(^{139}\text{Ba})}{Y(A = 139)} = 99.97\% \text{ pour la masse 139,}$$

et de :

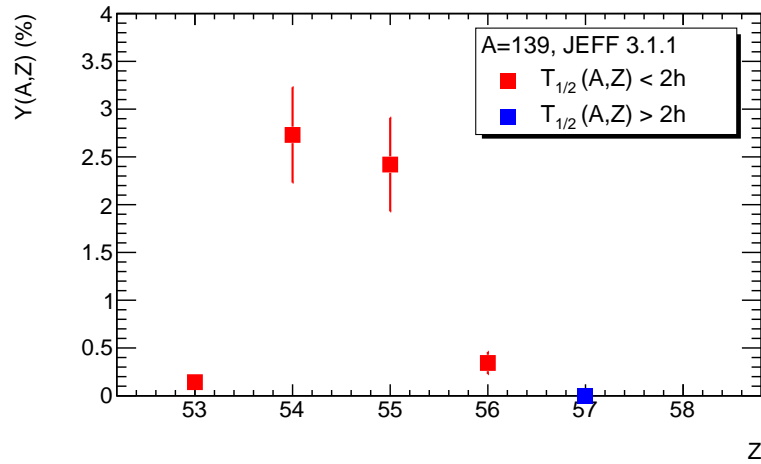
$$\frac{Y(^{140}\text{I}) + Y(^{140}\text{Xe}) + Y(^{140}\text{Cs})}{Y(A = 140)} = 76.48\% \text{ pour la masse 140.}$$

Ainsi en connaissant le rendement absolu de la masse 139, obtenu par exemple lors de la campagne de mesures des rendements en masse, il est possible de connaître le rendement isotopique absolu d'un noyau :

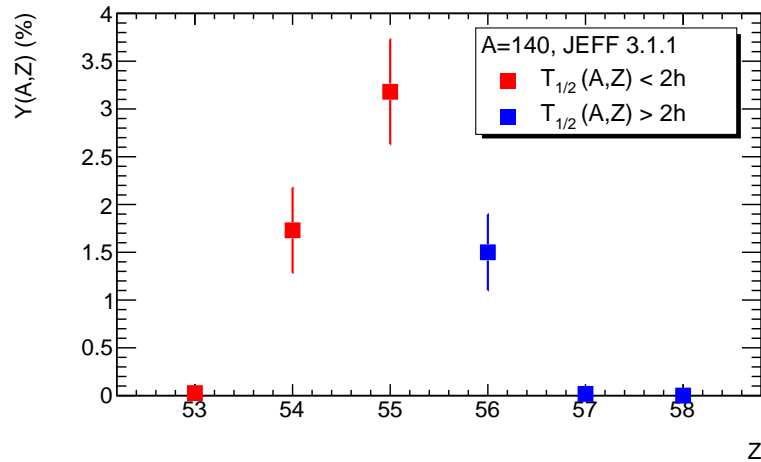
$$Y(^A Z) = \frac{N(^A Z)}{N(^{139}\text{I}) + N(^{139}\text{Xe}) + N(^{139}\text{Cs}) + N(^{139}\text{Ba})} Y(139)$$

Malheureusement, l' ^{139}I n'a pas pu être extrait du bruit de fond, mais cela n'a aucune conséquence sur la valeur de la normalisation. En effet, le rendement du ^{139}Xe est simplement sur-évalué du rendement de l' ^{139}I . Ce que l'on mesure, ce n'est pas le rendement du ^{139}Xe , mais son rendement cumulé : $Y_c(^{139}\text{Xe}) = Y(^{139}\text{I}) + Y(^{139}\text{Xe})$.

En résumé, la normalisation est basée sur la masse 139 pour le pic lourd (cibles 1, 3 et 4), et sur la masse 88 pour le pic léger (cible 2). La normalisation est caractéristique d'une cible, ce qui implique que l'erreur sur la normalisation induit des corrélations entre les données d'une même cible.



(a) A=139



(b) A=140

FIGURE 6.23. Les rendements isotopiques des masses 139 et 140 fournies par la bibliothèque JEFF 3.1.1. Les produits de fission ayant un temps de demi-vie supérieur à deux heures ne sont plus raisonnablement mesurable par spectrométrie γ avec le spectromètre Lohengrin.

6.4 Construction de la matrice de variance-covariance

La figure 6.24 présente la matrice de variance-covariance des paramètres du calcul des nombres de désintégrations $N_\gamma(q)$ et $N_\gamma(q')$ estimé avec la même raie γ à deux charges ioniques différentes q et q' .

$$N_\gamma(q, E) = \frac{\tilde{N}_\gamma(q, E) - \alpha_q \text{BDF}_{\gamma,q}}{\epsilon_\gamma I_\gamma f_\gamma BU_q} \quad (6.32)$$

$$N_\gamma(q', E) = \frac{\tilde{N}_\gamma(q', E) - \alpha_{q'} \text{BDF}_{\gamma,q'}}{\epsilon_\gamma I_\gamma f_\gamma BU_{q'}} \quad (6.33)$$

En partant d'en haut à gauche du tableau, $\tilde{N}_\gamma(q, E)$, $\tilde{N}_\gamma(q', E)$, $\text{BDF}_{\gamma,q}$ et $\text{BDF}_{\gamma,q'}$ correspondent à l'aire de la raie γ dans quatre spectres différents deux avec le faisceau ouvert et deux avec le faisceau fermé pour déterminer le bruit de fond du cadre. Toutes ces mesures sont indépendantes.

Ensuite, α_q et $\alpha_{q'}$ sont calculés à partir des équations de Bateman intégrées sans source extérieure. Dans la grande majorité des cas, $\alpha_q = \alpha_{q'}$ car les temps de la mesure sans faisceau et avec faisceau sont toujours les mêmes quelle que soit la charge ionique q . L'erreur sur ce coefficient α provient de l'erreur sur $T_{1/2}$. Par exemple pour le ^{139}Ba , $T_{1/2} = 83.06 \text{ min} \pm 0.28$, soit 0.34 % d'incertitude. Pour la cible 4 et la masse 139, les temps de mesure avec et sans faisceau sont de 1200 s avec un temps de latence de 4 s. L'incertitude sur le coefficient α est donc de 0.05 % ce qui est négligeable devant les autres erreurs.

L'intensité I_γ et l'efficacité des détecteurs Ge ϵ_γ sont totalement indépendants. L'effet de somme f_γ est calculé à partir des schémas de niveaux, de la courbe d'efficacité absolue du pic photoélectrique et de la courbe d'efficacité totale absolue. Ainsi f_γ est probablement faiblement corrélée avec l'efficacité relative ϵ_γ à l'énergie E_γ . On suppose que cette corrélation est nulle. De même, la corrélation entre f_γ et I_γ est supposée nulle.

Enfin, les corrections BU_q et $BU_{q'}$ correspondent à la correction de la combustion de la cible au moment de la mesure de la charge ionique q et de la charge ionique q' . Comme cela sera présenté dans le paragraphe sur "la matrice de corrélation de la combustion de la cible", on observe qu'au sein d'une masse, les corrections sont corrélées à 1. Ainsi la corrélation de BU_q et $BU_{q'}$ est égale à 1. De plus, on considèrera une unique valeur d'erreur pour la combustion de la cible au sein d'une masse.

	$\tilde{N}_\gamma(q,E)$	$\tilde{N}_\gamma(q',E)$	$BDF_{\gamma,q}$	$BDF_{\gamma,q'}$	α_q	$\alpha_{q'}$	I_γ	ε_γ	f_γ	BU_q	$BU_{q'}$
$\tilde{N}_\gamma(q,E)$	var	0									
$\tilde{N}_\gamma(q',E)$		var	0								
$BDF_{\gamma,q}$			var	0							
$BDF_{\gamma,q'}$				var							
α_q					var	cov					
$\alpha_{q'}$						var					
I_γ							var	0	cov		
ε_γ								var	cov		
f_γ									var		
BU_q										var	cov
$BU_{q'}$											var

FIGURE 6.24. Matrice de variance covariance des paramètres permettant de calculer le nombre de désintégrations $N_\gamma(q)$ et $N_\gamma(q')$ à deux charges ioniques q et q' évalué avec un même γ .

La figure 6.25 présente la matrice de variance covariance des paramètres qui permettent de calculer deux estimations N_{γ_1} et N_{γ_2} du nombre de désintégrations d'un isotope donné sur une gamme en énergie ΔE , grâce à deux γ caractéristiques γ_1 et γ_2 :

$$N_{\gamma_1}(E) = \sum_q N_{\gamma_1}(q, E) = \frac{1}{\epsilon_{\gamma_1} I_{\gamma_1} f_{\gamma_1}} \sum_q \frac{\tilde{N}_{\gamma_1}(q, E) - \alpha \text{BDF}_{\gamma_1, q}}{BU_q} \quad (6.34)$$

$$N_{\gamma_2}(E) = \sum_q N_{\gamma_2}(q, E) = \frac{1}{\epsilon_{\gamma_2} I_{\gamma_2} f_{\gamma_2}} \sum_q \frac{\tilde{N}_{\gamma_2}(q, E) - \alpha \text{BDF}_{\gamma_2, q}}{BU_q} \quad (6.35)$$

La lecture de la matrice se fait de gauche à droite et de haut en bas. L'ensemble des mesures obtenues par spectrométrie γ $\{\tilde{N}_{\gamma_1}(q, E)\}$, $\{\tilde{N}_{\gamma_2}(q, E)\}$, $\{\text{BDF}_{\gamma_1, q}\}$ et $\{\text{BDF}_{\gamma_2, q}\}$ sont considérées indépendantes entre elles et des autres paramètres.

Les intensités γ sont a priori corrélées, mais les matrices de covariance ne sont pas fournies avec les évaluations dans ENSDF. Les intensités possèdent un facteur de normalisation commun, mais nous n'avons pas considéré la corrélation induite par ce facteur. Ainsi, nous avons supposé les intensités indépendantes les unes des autres.

Les efficacités des détecteurs Ge, ϵ_{γ_1} et ϵ_{γ_2} , pour les énergies des deux γ_1 et γ_2 sont calculées avec des simulations MCNP, qui ne permettent pas d'extraire de corrélations entre ces deux paramètres. C'est la raison pour laquelle nous supposons que ϵ_{γ_1} et ϵ_{γ_2} sont indépendants.

La corrélation entre la correction de l'effet de somme du γ_1 et γ_2 dépend du schéma de niveau. Cependant le logiciel TRUECOINC ne fournit ni la covariance, ni même la variance avec la valeur de la correction de l'effet de somme. Ainsi nous avons attribué une erreur nulle à cette correction.

L'erreur associée au coefficient α est supposée nulle car elle est négligeable comparée aux autres sources d'erreur.

Les corrections de la combustion de la cible aux différents temps de mesures sont corrélés à 1. Ainsi l'erreur est commune à l'ensemble de la masse et n'est introduite qu'une seule fois en même temps que l'intégration de la distribution en énergie cinétique des produits de fission.

	$\{\tilde{N}_{\gamma_1}(q,E)\}$	$\{\tilde{N}_{\gamma_2}(q,E)\}$	$\{BDF_{\gamma_1,q}\}$	$\{BDF_{\gamma_2,q}\}$	I_{γ_1}	I_{γ_2}	ϵ_{γ_1}	ϵ_{γ_2}	f_{γ_1}	f_{γ_2}	α	$\{BU_q\}$
$\{\tilde{N}_{\gamma_1}(q,E)\}$	var	0	0	0								
$\{\tilde{N}_{\gamma_2}(q,E)\}$		var	0	0								
$\{BDF_{\gamma_1,q}\}$			var	0	0	0	0	0	0	0	0	0
$\{BDF_{\gamma_2,q}\}$				var								
I_{γ_1}					var	cov		0	0	0	0	0
I_{γ_2}						var						
ϵ_{γ_1}							var	cov		0	0	0
ϵ_{γ_2}								var				
f_{γ_1}									var	cov		0
f_{γ_2}										var		0
α											var	0
$\{BU_q\}$												var

FIGURE 6.25. Matrice de variance covariance entre les paramètres permettant de calculer le nombre de désintégrations N_{γ_1} et N_{γ_2} qui sont deux évaluations avec deux γ du nombre de désintégrations du même isotope.

La figure 6.26 présente les sources de corrélations entre les rendements indépendants $Y(A, Z)$ de quatre isotopes de deux masses différentes A et A' . Au sein d'une masse, les rendements sont corrélés par la combustion de la cible (Burn-up), l'intégration de la distribution en énergie cinétique, les coefficients de Bateman et la normalisation.

Les rendements isotopiques de deux masses différentes sont corrélés par la combustion de la cible et la normalisation.

	$Y(A, Z_a)$	$Y(A, Z_b)$	$Y(A', Z_a')$	$Y(A', Z_b')$
$Y(A, Z_a)$	Var	Burn-up $p(\Delta E)$ coefficients de Bateman NORMALISATION	Burn-up NORMALISATION	
$Y(A, Z_b)$		Var		
$Y(A', Z_b')$			Var	Burn-up $p(\Delta E)$ coefficients de Bateman NORMALISATION
$Y(A', Z_a')$				Var

FIGURE 6.26. Matrice de variance covariance des rendements isotopiques de deux masses A et A' .

La matrice de corrélation de la combustion de la cible : La combustion de la cible en fonction du temps $BU(t)$ (BU pour “burn-up”) est modélisée par la somme de deux exponentielles décroissantes (eq. 6.36). Les paramètres de la fonction sont ajustés avec ROOT qui fournit les valeurs moyennes p_i ainsi qu’une matrice de variance-covariance $cov(p_i, p_j)$. En s’appuyant sur la notion de sensibilité développée dans l’annexe C, les erreurs des paramètres sont propagées sur les corrections de la combustion de la cible aux différents temps de mesure $BU(t_i)$.

$$BU(t) = A_1 \exp(-\lambda_1 t) + A_2 \exp(-\lambda_2 t) \quad (6.36)$$

Les figures 6.27, 6.28 et 6.29 présentent les matrices de corrélation des cibles 1, 3 et 4.

Les masses auxquelles correspondent les corrections sont indiquées en abscisses et en ordonnées des matrices.

D’une part, les corrections du “burn-up” des mesures γ d’une masse sont totalement corrélées (carré rouge). D’autre part, les mesures d’une masse étant assez proches, les erreurs sur la correction du “burn-up” peuvent être considérées constantes tout au long du scan q effectué par spectrométrie γ . Ainsi, pour chaque masse, une unique valeur d’erreur relative de la correction du “burn-up” est déterminée.

Enfin la corrélation induite par la combustion de la cible est négligeable par rapport à la corrélation induite par la normalisation. Ainsi elle a été négligée dans les calculs.

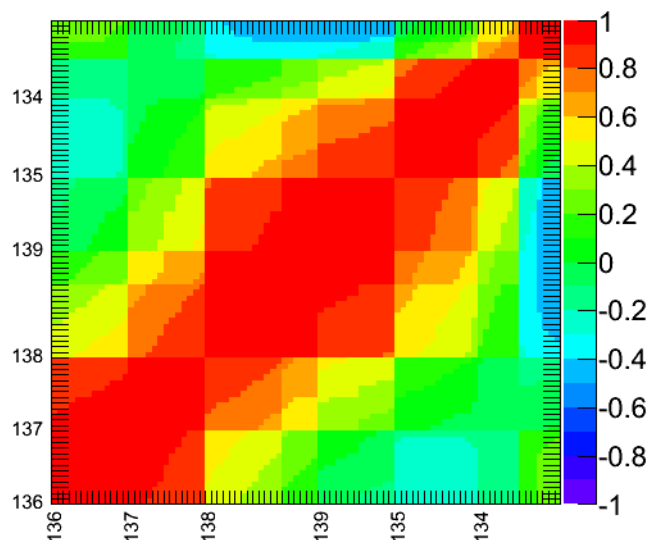


FIGURE 6.27. La matrice de corrélation entre les burn-up des mesures γ de la cible 1. La masse à laquelle correspond la correction est indiquée en abscisse et en ordonnée du graphique.

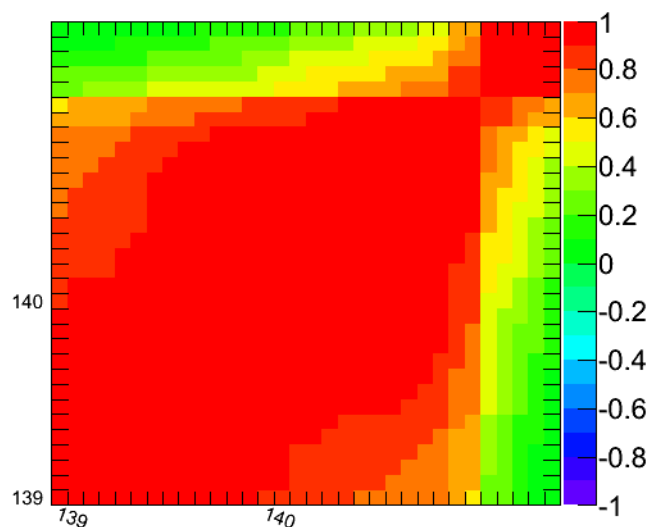


FIGURE 6.28. La matrice de corrélation entre les burn-up des mesures γ de la cible 3. La masse à laquelle correspond la correction est indiquée en abscisse et en ordonnée du graphique.

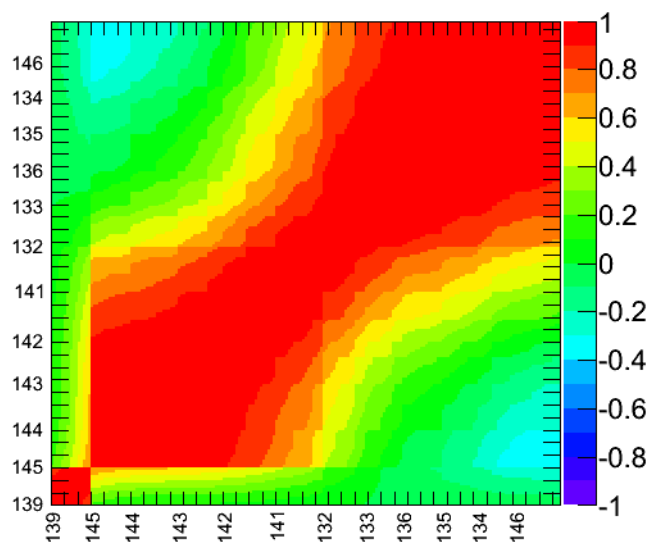


FIGURE 6.29. La matrice de corrélation entre les burn-up des mesures γ de la cible 4. La masse à laquelle correspond la correction est indiquée en abscisse et en ordonnée du graphique.

L'efficacité des détecteurs Ge : L'efficacité des détecteurs germanium a une erreur due à la connaissance imprécise du détecteur et du placement exact du dispositif expérimental. L'estimation de cette erreur est basée sur des simulations, avec lesquelles la courbe d'efficacité en fonction de l'énergie a été calculée à trois épaisseurs différentes d'aluminium traversée par les γ . Cela représente notamment le fait, que selon où est arrêté le produit de fission, le γ émis peut soit traverser la fine fenêtre, soit les parois de la chambre à vide. La variation d'épaisseur est de ± 0.5 mm autour de la valeur moyenne. Pour estimer l'erreur, c'est le cas le plus défavorable qui a été conservé.

La figure 6.30 présente l'incertitude relative qui a été retenue en fonction de l'énergie du γ . L'incertitude relative diminue de façon importante jusqu'à 80 keV. Cette énergie est située dans la zone du maximum d'efficacité. Au delà de cette énergie, l'incertitude relative diminue régulièrement jusqu'à 1000 keV, où elle se stabilise à 1 %.

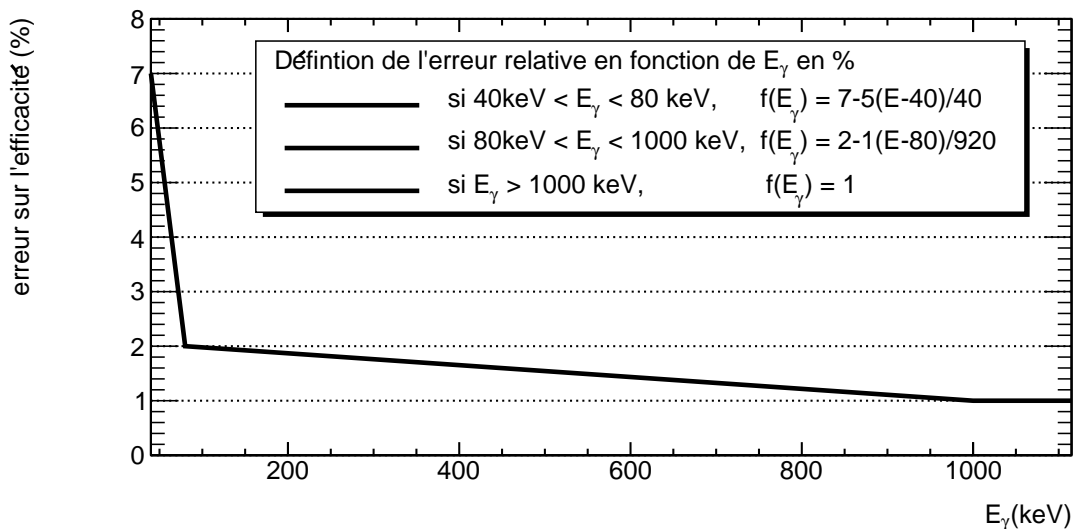


FIGURE 6.30. La courbe d'incertitude relative de l'efficacité des détecteurs Ge en % en fonction de l'énergie des γ

6.5 Conclusion

Ce chapitre présente chaque étape de l'analyse des mesures effectuées auprès du spectromètre Lohengrin, qui permettent de passer des spectres γ obtenus pour différentes masses, charges ioniques et énergies cinétiques aux rendements isotopiques indépendants des produits de fission de l' ^{233}U .

Certaines étapes sont propres au spectromètre Lohengrin comme la correction de la combustion de la cible et la somme sur les différentes charges ioniques. D'autres étapes, sont en revanche, liées à la spectrométrie γ comme la prise en compte de l'efficacité des détecteurs germanium en fonction de l'énergie. Par rapport aux travaux de A. Bail, deux biais expérimentaux ont été corrigés : l'effet de somme et la contamination du cadre.

Contrairement à l'analyse des rendements en masse, celle des rendements isotopiques fait intervenir de nombreuses données de structure nucléaires provenant de bibliothèque comme l'intensité des raies γ et les temps de demi-vie. Ces intensités contribuent fortement à l'incertitude sur les rendements mesurés.

La propagation d'incertitude sur les rendements mesurés a suivi les mêmes étapes que pour le calcul de ces mêmes rendements, par le biais des coefficients de sensibilité (méthode déterministe de propagation d'incertitude).

Pour les futures mesures, les cibles utilisées ne devront pas être trop épaisses afin d'obtenir des distributions en énergie cinétique complètes (pas de queue à basse énergie). De plus, il serait judicieux de ne pas mesurer la masse de référence dès la première journée de la cible en réacteur, au moment où l'évolution de la combustion de la cible est la plus chahutée.

Les résultats obtenus avec cette méthode d'analyse seront présentés dans le chapitre 7.

Résultats et discussions

Sommaire

7.1	Les rendements en masse de l'U-233 et du Pu-241	171
7.1.1	Comparaison aux bibliothèques d'évaluations	172
7.1.2	Comparaison aux données expérimentales présentes dans EXFOR	178
7.1.3	Comparaison aux résultats des calculs du code GEF	179
7.1.4	Matrice de corrélation des rendements en masse	180
7.2	Les rendements isotopiques de l'uranium-233	182
7.3	Conclusion	190

Les méthodes d'analyse décrites dans les deux chapitres précédents (chapitres 5 et 6) ont été appliquées aux rendements en masse des produits de fission de l' ^{233}U et du ^{241}Pu ainsi qu'aux rendements isotopiques de l' ^{233}U . Les résultats obtenus sont rassemblés dans des tableaux placés dans l'annexe H. Dans ce chapitre, les résultats sont comparés aux bibliothèques internationales, aux mesures répertoriées dans EXFOR ainsi qu'aux calculs du code GEF.

7.1 Les rendements en masse de l' ^{233}U et du ^{241}Pu

Dans cette section, la discussion portera sur les mesures des rendements en masse des produits de fission de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ et du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$. Les données de l' ^{233}U sont normalisées à 1 pour les masses allant de 120 à 154. Les données du ^{241}Pu sont normalisées sur la somme des rendements de JEFF-3.1.1 ayant une masse comprise entre 129 et 151. Cette somme représente environ 95 % du pic lourd. Le tableau 7.1 recense les rendements en masses de l' ^{233}U et du ^{241}Pu qui ont été mesurés.

TABLE 7.1: *Bilan des masses dont le rendement de l' ^{233}U ou du ^{241}Pu a été mesuré.*

	pic léger	pic lourd
^{233}U	85, 87, 90, 95, 98, 103, 105 à 113	120 à 151
^{241}Pu	-	125, 129 à 151

7.1.1 Comparaison aux bibliothèques d'évaluations

Tout d'abord, nos mesures sont comparées aux bibliothèques d'évaluations JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. La bibliothèque JENDL n'est pas présentée ici car elle reprend la bibliothèque ENDF/B avec quelques changements mineurs. Les bibliothèques fournissent les rendements isotopiques $Y(A, Z)$ avec leur erreur associée $\sigma_{Y(A,Z)}$ sans fournir de matrice de corrélation.

Ainsi le rendement en masse $Y(A)$ est obtenu en sommant les rendements isotopiques. Son erreur associée $\sigma_{Y(A)}$ est calculée en faisant la somme quadratique des erreurs des rendements isotopiques (cf. § 2.4.1). Cela revient à faire l'hypothèse que les rendements isotopiques sont indépendants, ce qui n'est pas le cas. En effet, les rendements isotopiques d'une masse donnée sont en partie déterminés à partir du rendement cumulé de l'isotope de fin de chaîne.

Les figures 7.1 et 7.2 présentent les rendements en masse de l' $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Sur la figure 7.1, seuls les rendements en masse du pic lourd de l' ^{233}U sont représentés. La forme générale du pic lourd est comparable sur l'ensemble des données. Cependant, localement, des différences significatives sont visibles. Au niveau des masses 135 et 136, nos mesures présentent un meilleur accord avec les données de ENDF/B-VII.0. La masse 135 est extrêmement importante pour les applications, car le ^{135}Xe est un poison neutronique majeur. La figure 7.3 présente les réactions nucléaires et désintégrations radioactives qui conduisent à la production du ^{135}Xe .

Sur la figure 7.2, les rendements en masse des deux pics de l' ^{233}U sont représentés. Sur la figure du haut, en échelle linéaire, le rendement de la masse 90 semble surestimé par nos mesures. Sur la figure du milieu, l'échelle logarithmique permet de mieux appréhender les bas rendements, c'est-à-dire les masses produites par la fission symétrique. Nos mesures présentent un très bon accord pour les masses symétriques du pic léger. Cependant, elles semblent surestimées pour les masses du pic lourd. Cette observation a conduit à formuler l'hypothèse d'une contamination par les hauts rendements du pic lourd. Cette contamination serait due à un changement de charge ionique entre l'aimant (dipôle magnétique) et le condensateur, à cause d'un vide insuffisant.

L'élément que l'on mesure a une masse A , une énergie cinétique E et une charge ionique q . L'élément contaminant possède une masse A_c , une énergie cinétique E_c . Sa charge ionique est q_c dans la première partie du spectromètre Lohengrin et q'_c dans la seconde partie.

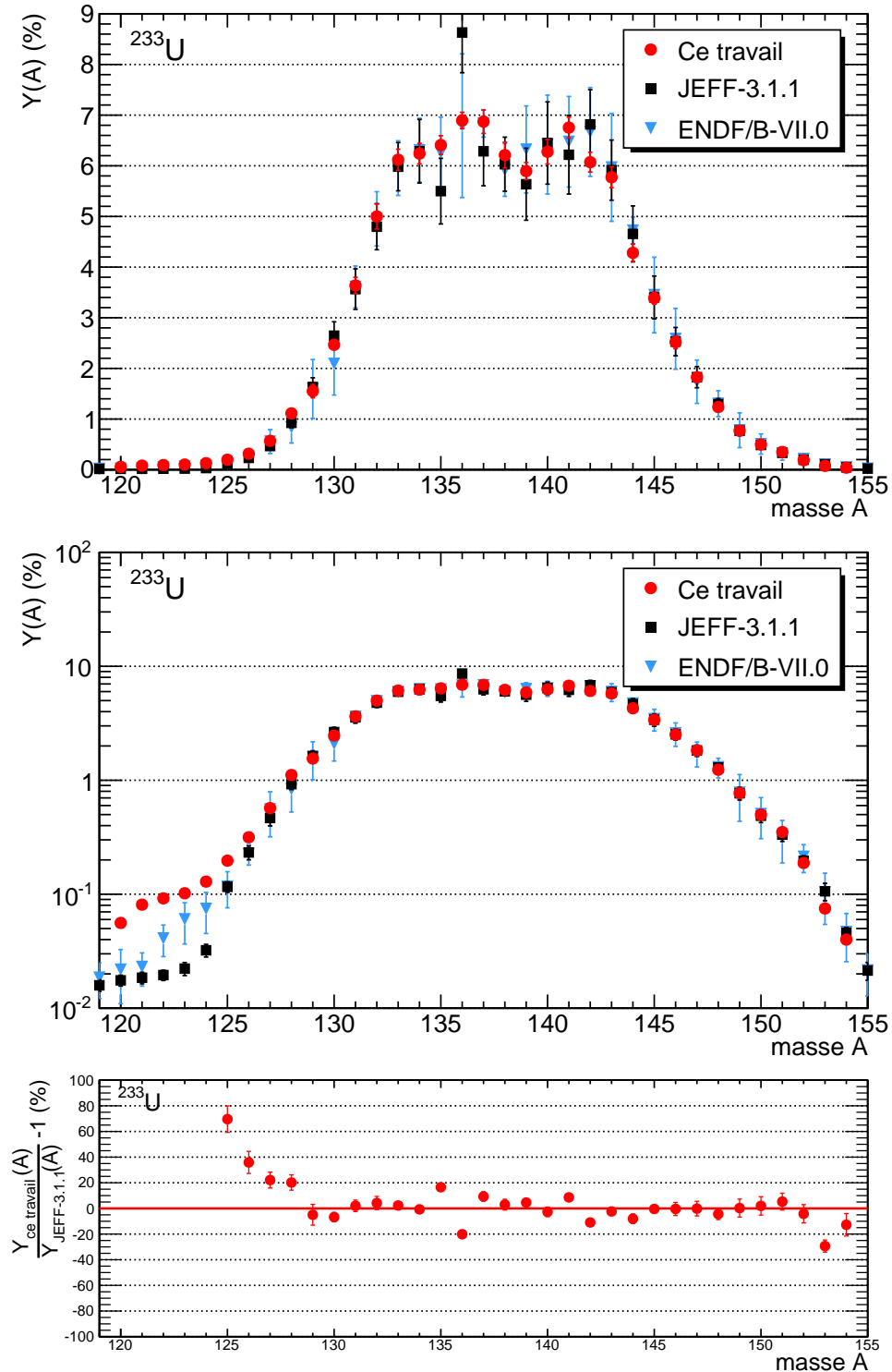


FIGURE 7.1. Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Sur la figure du bas, seul l'erreur associée à nos mesures est représentée.

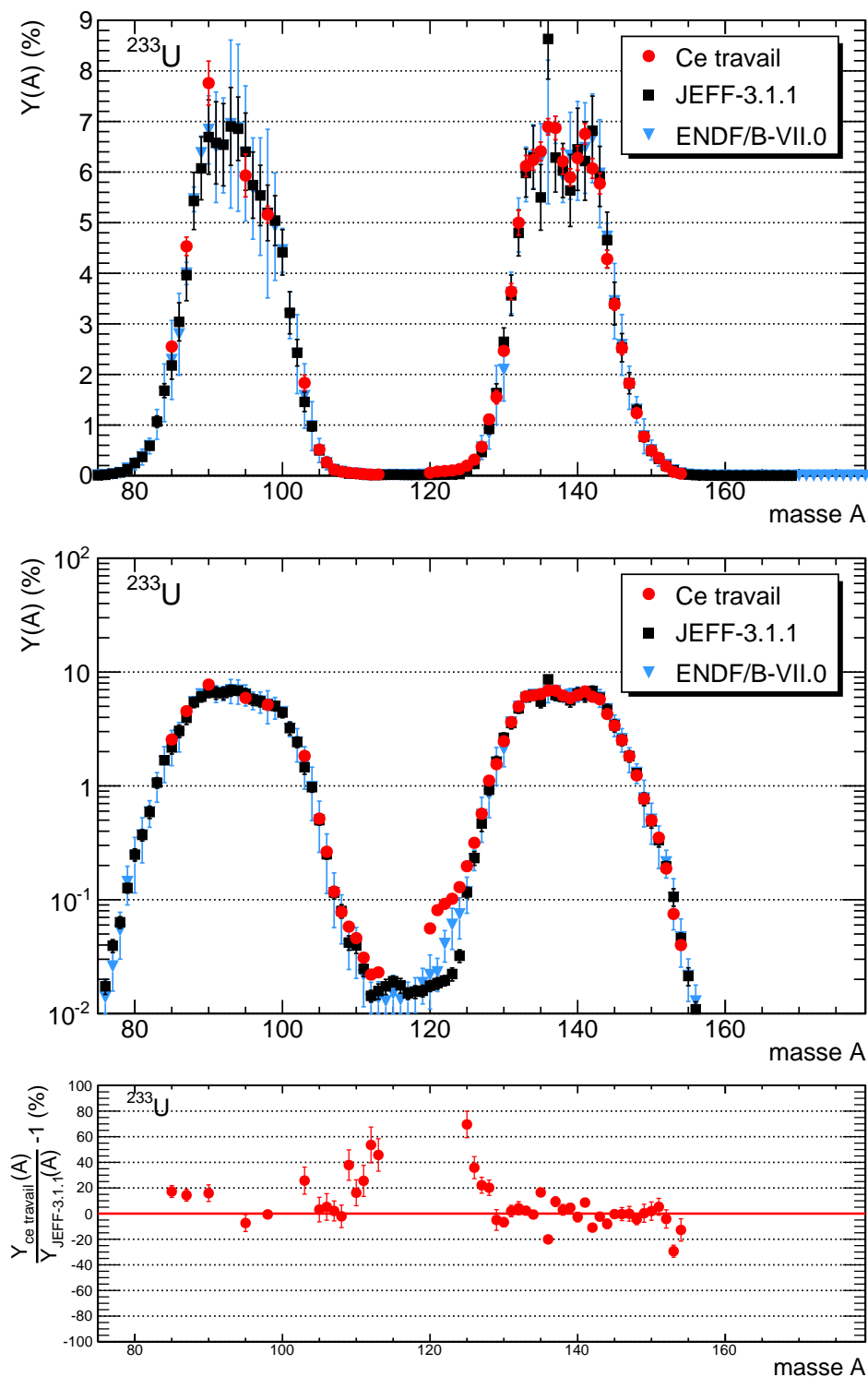


FIGURE 7.2. Les rendements en masse des produits de fission de $l^{233}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Sur la figure du bas, seul l'erreur associée à nos mesures est représentée.

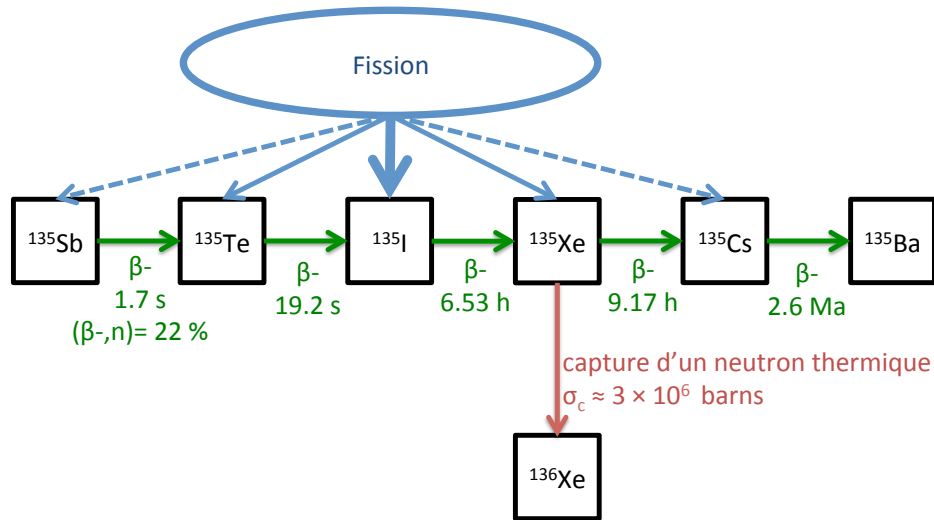


FIGURE 7.3. Mécanismes de production du ^{135}Xe , qui est le principal poison neutronique parmi les produits de fission. La fission de ^{233}U , de ^{235}U , de ^{239}Pu et de ^{241}Pu produit majoritairement pour la masse 135 les noyaux suivants : ^{135}Te , ^{135}I et le ^{135}Xe . Par désintégration β^- , le ^{135}Te décroît sur ^{135}I et ^{135}I décroît sur ^{135}Xe .

En partant de la sortie du spectromètre, pour avoir été sélectionné par le condensateur, cela suppose que l'élément mesuré et l'élément contaminant possèdent le même rapport énergie cinétique sur charge ionique :

$$\frac{E}{q} = \frac{E_c}{q'_c}$$

De plus pour que ces éléments soient confondus dans la chambre d'ionisation cela suppose qu'ils aient la même énergie cinétique, ainsi :

$$\begin{aligned} E &= E_c \\ q &= q'_c \end{aligned}$$

Pour que ces éléments aient pu être sélectionnés par l'aimant, cela suppose que :

$$\frac{A E}{q q} = \frac{A_c E_c}{q_c q_c}$$

En remplaçant E_c par E :

$$\frac{A}{q^2} = \frac{A_c}{q_c^2}$$

Si l'élément contaminant perd des électrons par collision ($q_c > q'_c = q$), cela implique que A_c soit supérieur à A et donc que la contamination provienne du pic lourd.

L'hypothèse de l'existence d'une contamination a été vérifiée en faisant varier le vide dans le spectromètre Lohengrin et en observant l'influence sur la contamination. Cette dernière

augmente avec la dégradation du vide. L'analyse et l'interprétation de ces mesures seront présentées dans la thèse de A. Chebboubi (2015).

La figure 7.4 présente les rendements en masse du pic lourd du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$. Malgré un résultat très proche de celui de JEFF-3.1.1, nous pensons que comme pour l' ^{233}U , le rendement de masse 125 du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ peut être surestimé à cause de la contamination. Cela suppose que la donnée que nous fournissons, doit être considérée comme une valeur limite haute.

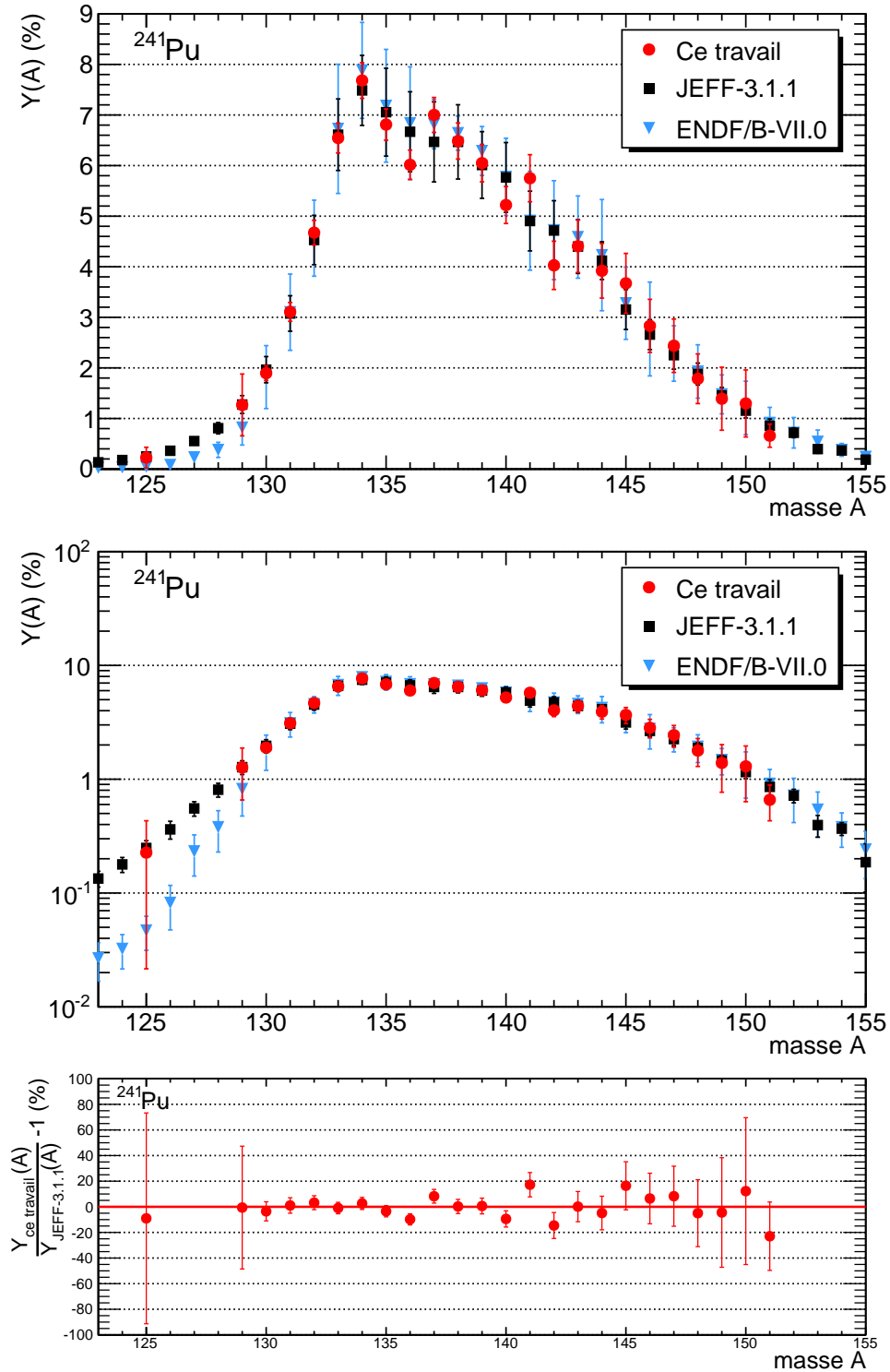


FIGURE 7.4. Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de $l^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. Sur la figure du bas, seule l'erreur associée à nos mesures est représentée.

7.1.2 Comparaison aux données expérimentales présentes dans EXFOR

Les résultats de nos mesures sont comparés avec les données expérimentales présentes dans la bibliothèque EXFOR. La figure 7.5 présente cette comparaison pour les produits de fission du pic lourd de l' ^{233}U et du ^{241}Pu sur une échelle linéaire. Pour l' ^{233}U , nos données présentent un bon accord avec les mesures de D. R. Bidinosti à l'exception de la masse 142. Nos données sont aussi compatibles avec les quelques rendements en masse mesurés par L.R. Bunney. Pour le ^{241}Pu , nos données sont généralement compatibles avec les mesures existantes ou au minimum avec l'une des mesures, à l'exception de la masse 136.

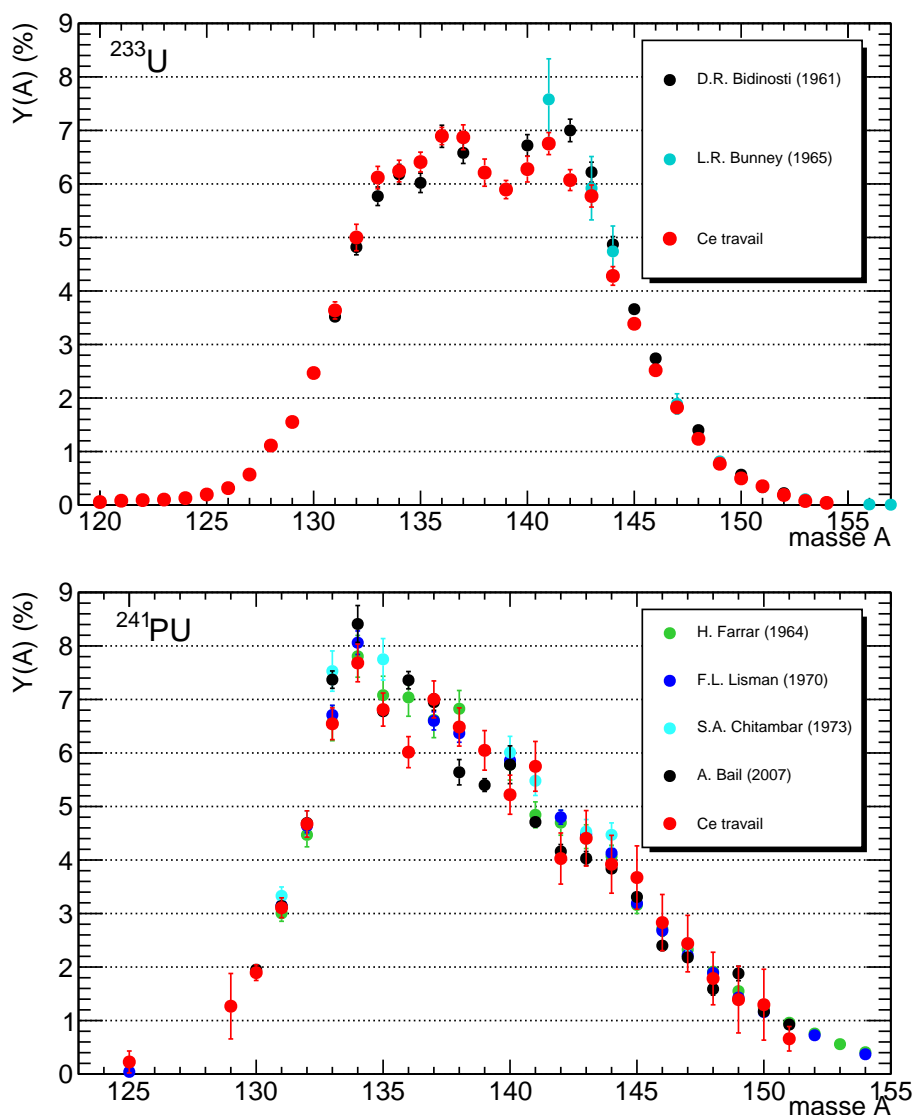


FIGURE 7.5. Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de l' $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ (figure du haut) et du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ (figure du bas) mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux données expérimentales présentes dans EXFOR

7.1.3 Comparaison aux résultats des calculs du code GEF

Les rendements en masse mesurés auprès du spectromètre Lohengrin sont comparés aux résultats des calculs du code GEF version 2013/1.7. La figure 7.6 présente cette comparaison pour les produits de fission du pic lourd de l' ^{233}U et du ^{241}Pu sur une échelle linéaire. Les résultats du code GEF n'ont pas d'incertitude associée. Pour l' ^{233}U , les données provenant du code GEF présentent une translation d'au moins une unité de masse par rapport à nos mesures. Pour le ^{241}Pu , cette translation systématique n'est pas présente. Cependant, sur l'aile gauche de la distribution, le code GEF fournit des résultats, dont la valeur est systématiquement supérieure à nos données.

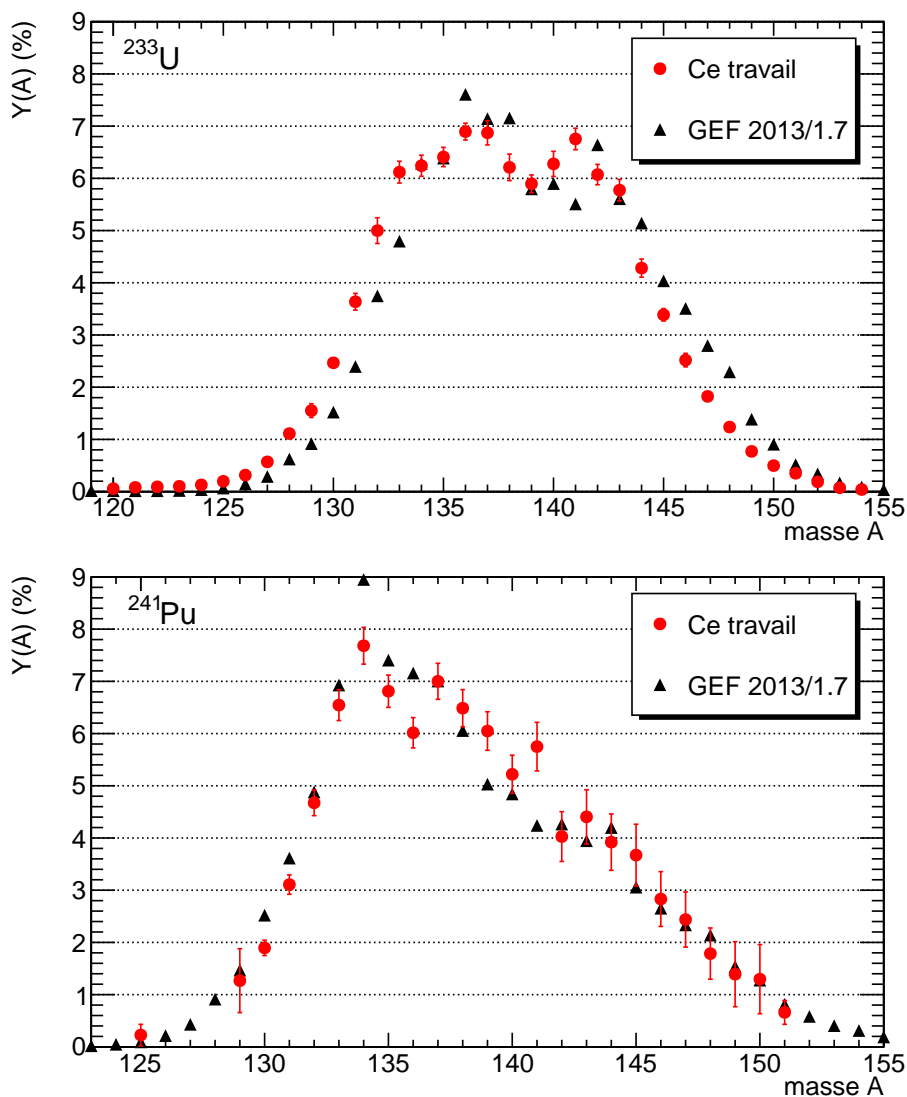


FIGURE 7.6. Les rendements en masse des produits de fission du pic lourd de $l^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ (figure du haut) et du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ (figure du bas) mesurés avec le spectromètre Lohengrin, comparés aux calculs du code GEF version 2013/1.7.

7.1.4 Matrice de corrélation des rendements en masse

Les figures 7.7 et 7.8 présentent respectivement la matrice de corrélation des rendements en masse de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ et du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$.

Sur la figure 7.7, le bloc de corrélations positives allant de la masse 85 à 126 provient de la normalisation des données de la seconde sur la première cible.

Sur la figure 7.8, les rendements qui présentent une forte variance avant la normalisation, sont peu corrélés après la normalisation. À l'inverse, les rendements des masses 132 à 137 possèdent un coefficient de normalisation supérieur à 10 %.

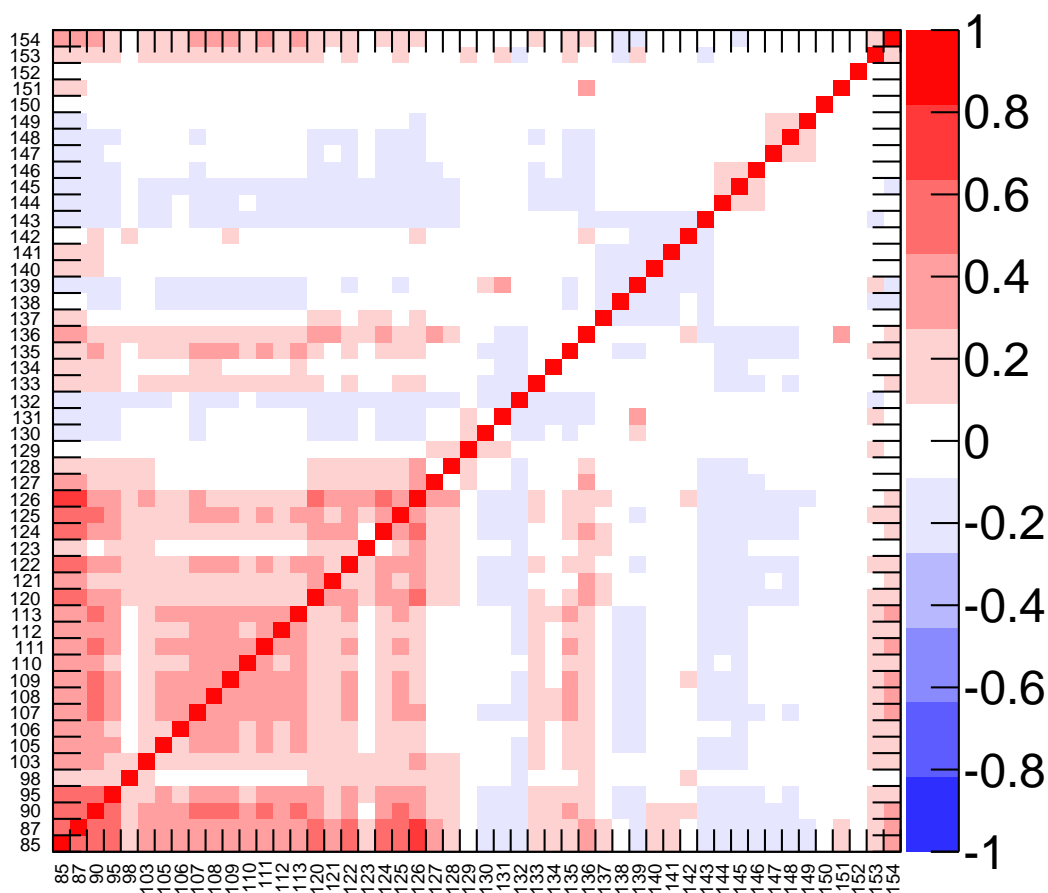


FIGURE 7.7: La matrice de corrélation des rendements en masse de $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$.

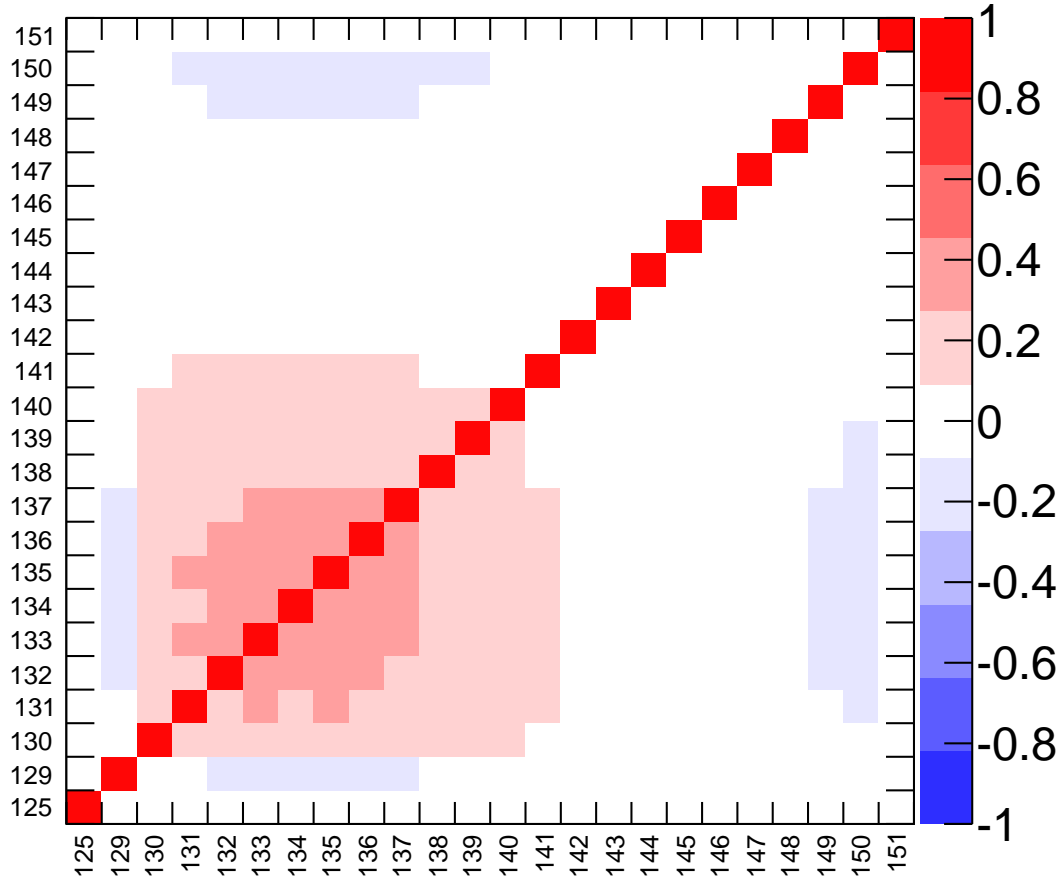


FIGURE 7.8: La matrice de corrélation des rendements en masse du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$.

7.2 Les rendements isotopiques de l'uranium ^{233}U

Les rendements isotopiques de l' ^{233}U ont été mesurés sur le spectromètre Lohengrin de la masse 132 à la masse 146 pour le pic lourd et pour les masses 88 et 92 pour le pic léger.

La figure 7.9 présentent les rendements isotopiques et les rendements en masse en fonction de la masse des produits de fission du pic lourd de l' ^{233}U .

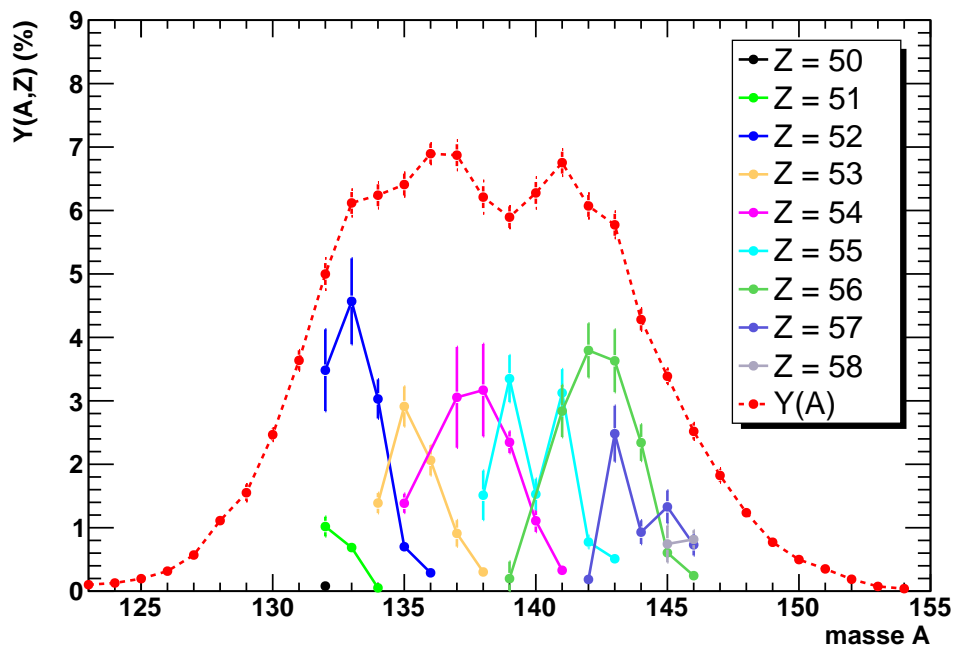


FIGURE 7.9. Les rendements isotopiques des produits de fission de l' ^{233}U du pic lourd en fonction de la masse.

Les figures 7.10, 7.11 et 7.12 montrent pour chaque masse étudiée, les rendements isotopiques mesurés en fonction de la charge nucléaire. Nos mesures sont comparées aux bibliothèques d'évaluations JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. À l'exception du ^{92}Rb , ^{132}Te , ^{135}Te et du ^{140}Cs , nos mesures sont compatibles à un sigma avec les évaluations.

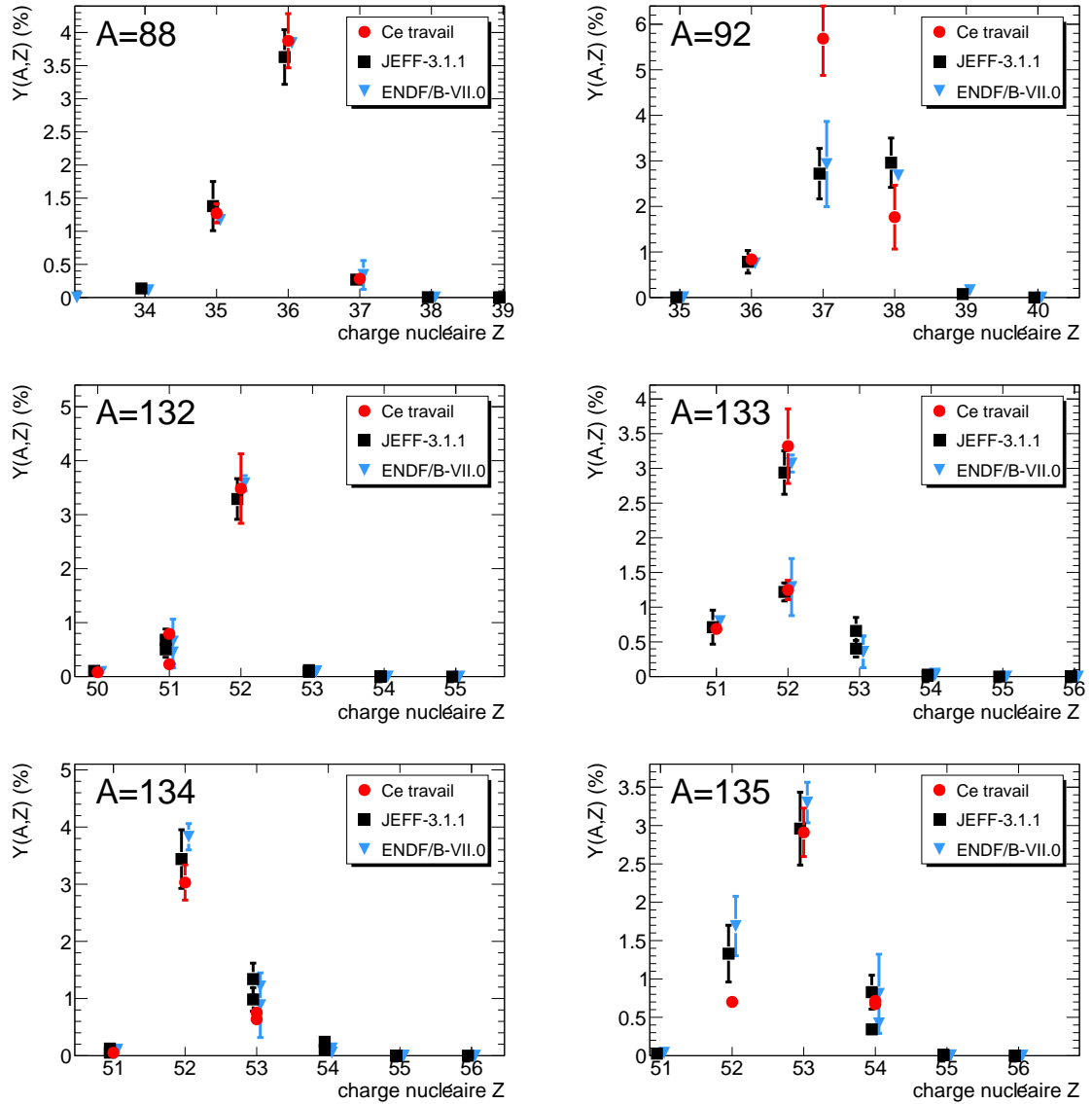


FIGURE 7.10. Les rendements isotopiques des produits de fission de $l^{233}\text{U}$ en fonction de la charge nucléaire Z pour les masses 88, 92, 132, 133, 134 et 135.

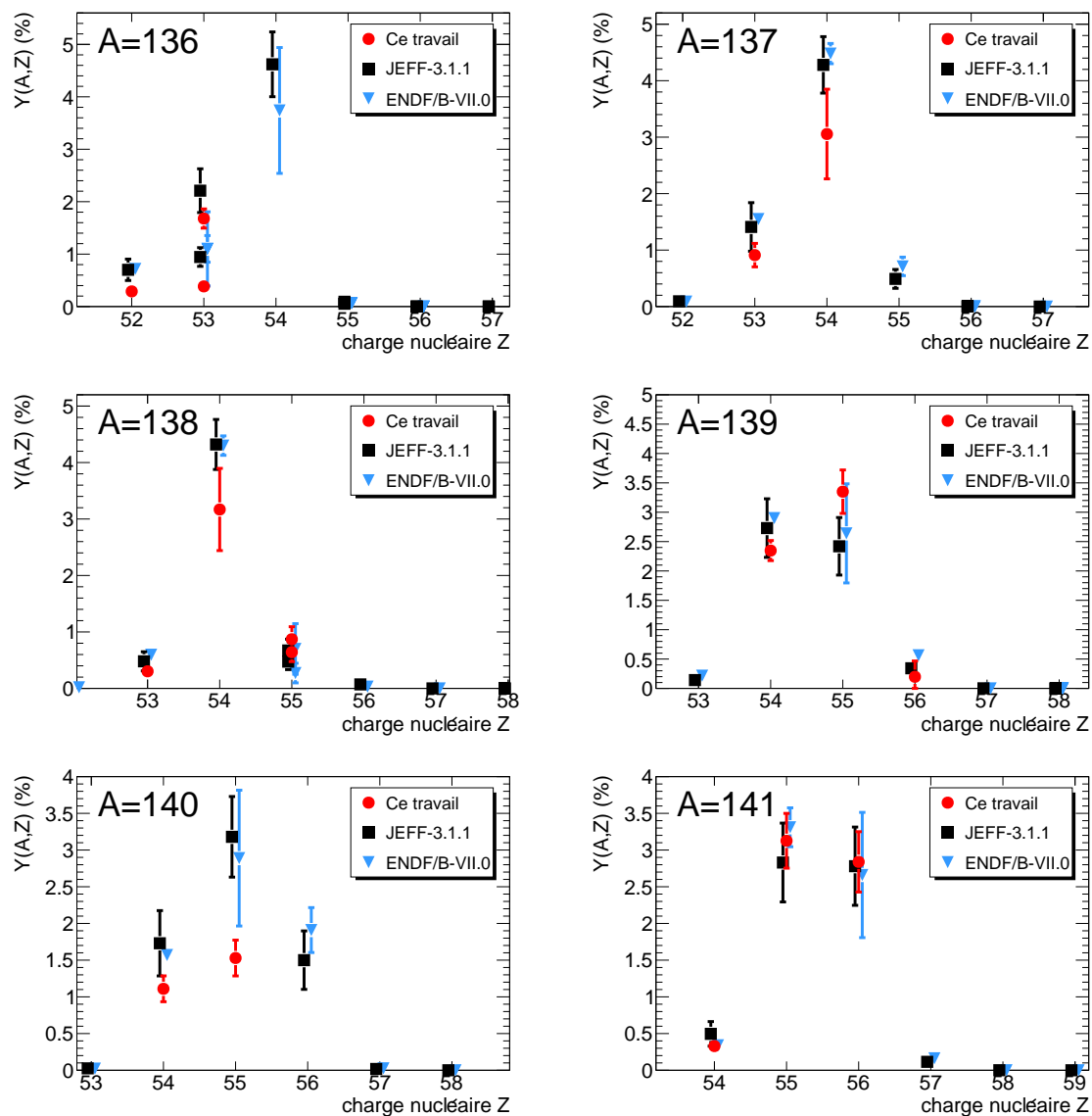


FIGURE 7.11. Les rendements isotopiques des produits de fission de $l^{233}\text{U}$ en fonction de la charge nucléaire Z pour les masses 136, 137, 138, 139, 140 et 141.

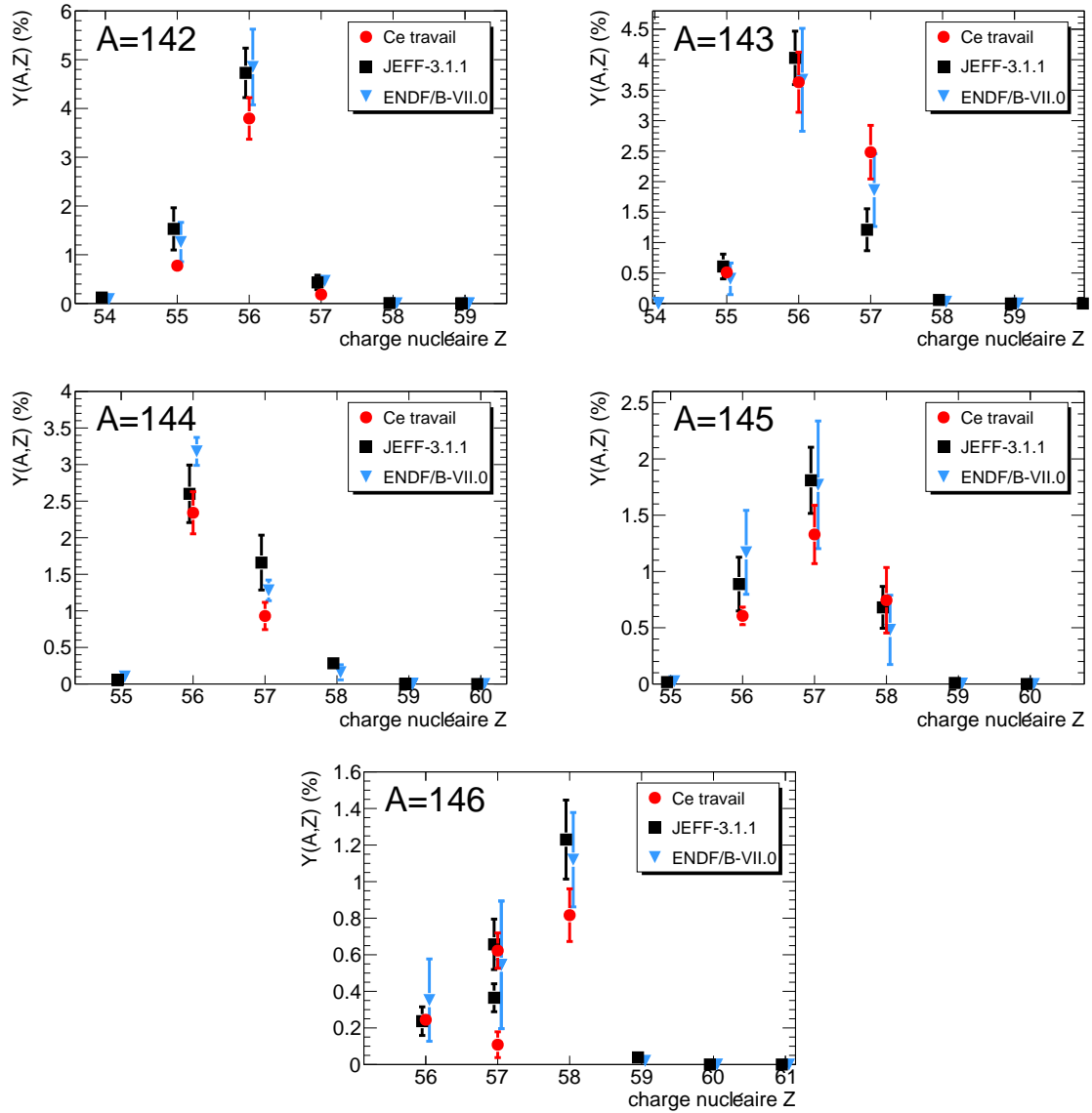


FIGURE 7.12. Les rendements isotopiques des produits de fission de $l^{233}\text{U}$ en fonction de la charge nucléaire Z pour les masses 142, 143, 144, 145 et 146.

Sur la figure 7.13, les rendements isotopiques des charges nucléaires 53 et 54 mesurées par R. Brissot et al. sont comparés à nos mesures. Nos mesures sont systématiquement inférieures.

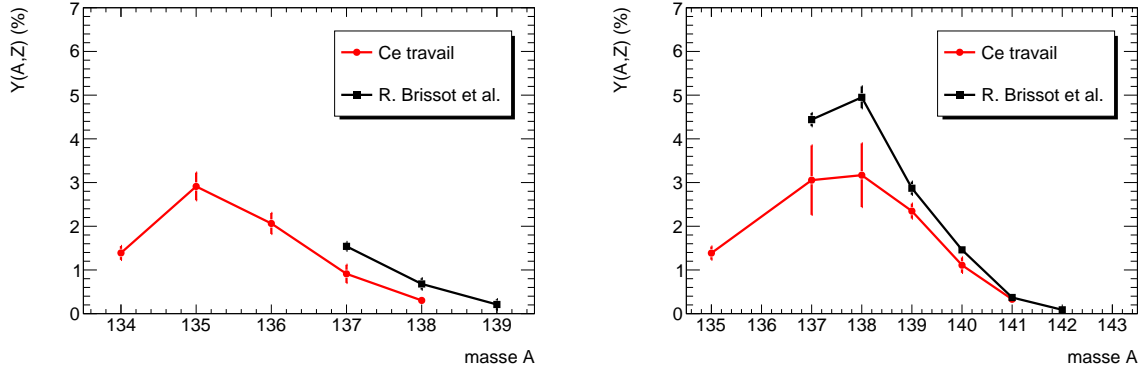


FIGURE 7.13. Rendements isotopiques en fonction de la masse des charges nucléaires $Z=53$ et $Z=54$. Les données issues de ce travail donnent des résultats systématiquement inférieurs aux mesures réalisées par R. Brissot et al. [120].

Sur les figures 7.14 et 7.15, on peut observer les rendements isotopiques ajustés avec une gaussienne, dans le but de déterminer la charge nucléaire moyenne \bar{Z} et l'écart type σ_Z en fonction de la masse. Ne sont retenues pour ce calcul que les masses, dont au moins trois rendements isotopiques ont pu être mesurés. La charge nucléaire moyenne \bar{Z} est comparée au Z_{UCD} ("Unchanged Charge Density") définie dans l'équation suivante :

$$Z_{UCD} = \frac{Z_{NC}}{A_{NC}} A^* = \frac{Z_{NC}}{A_{NC}} (A + \bar{\nu}(A^*))$$

avec Z_{NC} et A_{NC} respectivement la charge nucléaire et la masse du noyau composé, A^* la masse pre-neutron, A la masse post-neutron et $\bar{\nu}(A^*)$ la multiplicité des neutrons prompts en fonction de la masse pre-neutron A^* . Les valeurs de $\bar{\nu}(A^*)$ correspondent aux mesures effectuées par Nishio et al. [121]. Sur la figure 7.16, la polarisation de charge ($\bar{Z} - Z_{UCD}$) est d'environ +0.5 pour le pic léger et -0.5 pour le pic lourd. Ces résultats sont cohérents avec les conclusions d'A. Bail et al. pour le ^{239}Pu [63].

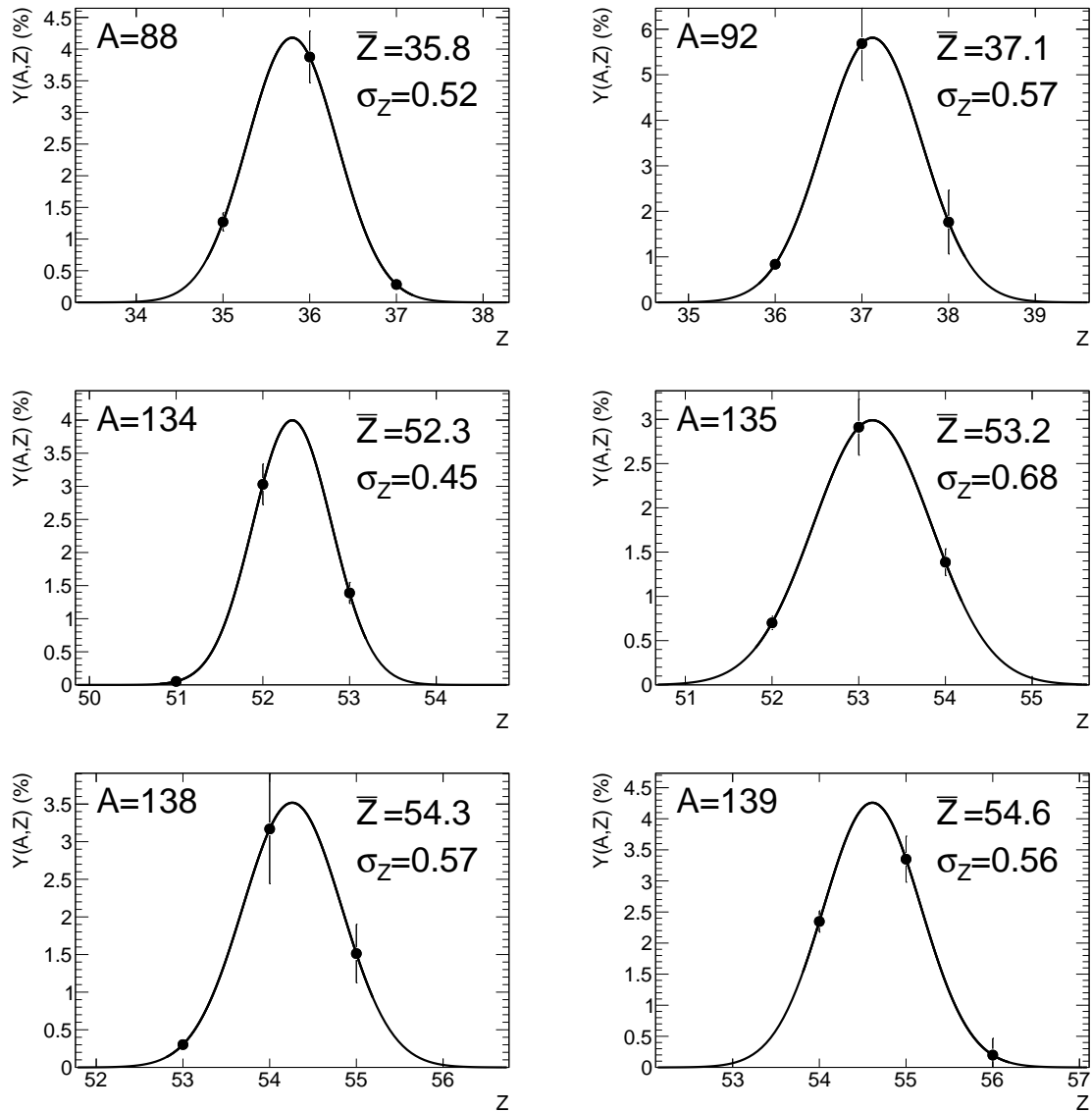


FIGURE 7.14. Détermination de la charge nucléaire moyenne \bar{Z} et de l'écart type σ_Z en fonction de la masse (88, 92, 134, 135, 138 et 139). Les masses qui ont été retenues pour ces calculs possèdent au moins trois isotopes répartis de part et d'autre du maximum.

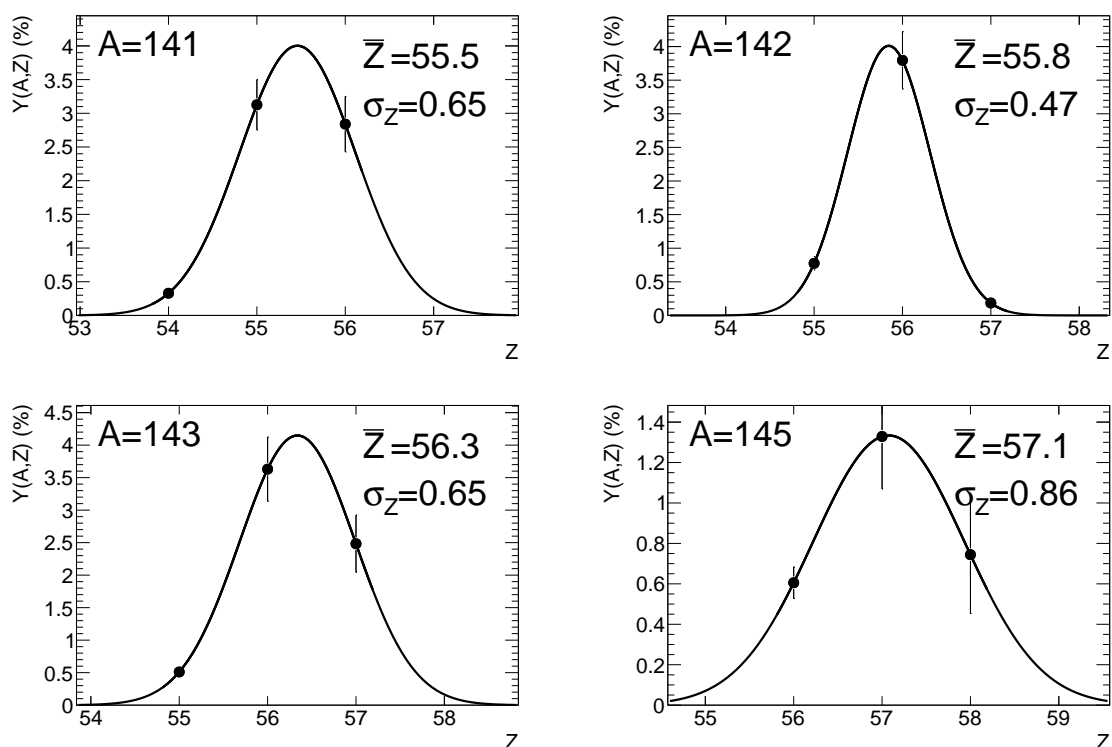


FIGURE 7.15. Détermination de la charge nucléaire moyenne \bar{Z} et de l'écart type σ_Z en fonction de la masse (141, 142, 143 et 145). Les masses qui ont été retenues pour ces calculs possèdent au moins trois isotopes répartis de part et d'autre du maximum.

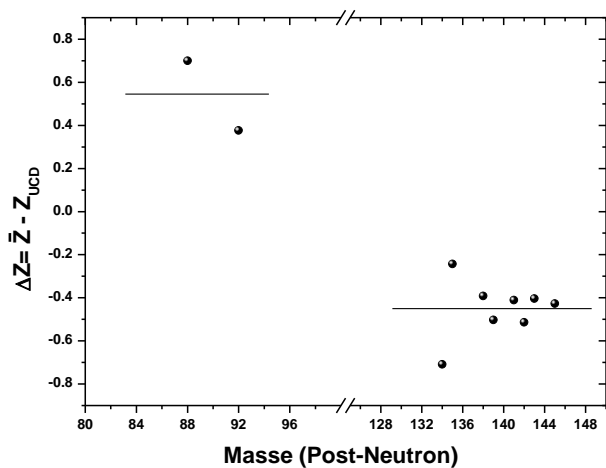


FIGURE 7.16: Comparaison entre la charge nucléaire moyenne \bar{Z} mesurée et le Z_{UCD} .

Les figures 7.17 et 7.18 présentent les matrices de corrélation des rendements isotopiques de $l^{233}\text{U}(n_{th},f)$. La figure 7.17 correspond aux rendements du pic lourd alors que la figure 7.18 correspond aux mesures des isotopes des masses 88 et 92. Ces deux matrices sont totalement décorréliées. En effet, les rendements isotopiques des masses du pic lourds sont normalisés sur le rendement de la masse 139 mesurée sur le Lohengrin, alors que les rendements du pic léger sont normalisés sur le rendement de la masse 88 de JEFF-3.1.1.

Sur la figure 7.17, certains rendements en masse sont presque décorréliés des autres. Il s'agit en particulier des rendements isotopiques de la masse 140 qui a été mesurée uniquement avec la cible 3 et les rendements isotopiques des masses 137 et 138 qui ont été mesurées exclusivement avec la cible 1.

Sur la figure 7.18, les rendements sont quasiment corrélés à un à l'exception du rendement du ^{92}Sr qui possédait une forte incertitude avant la normalisation.

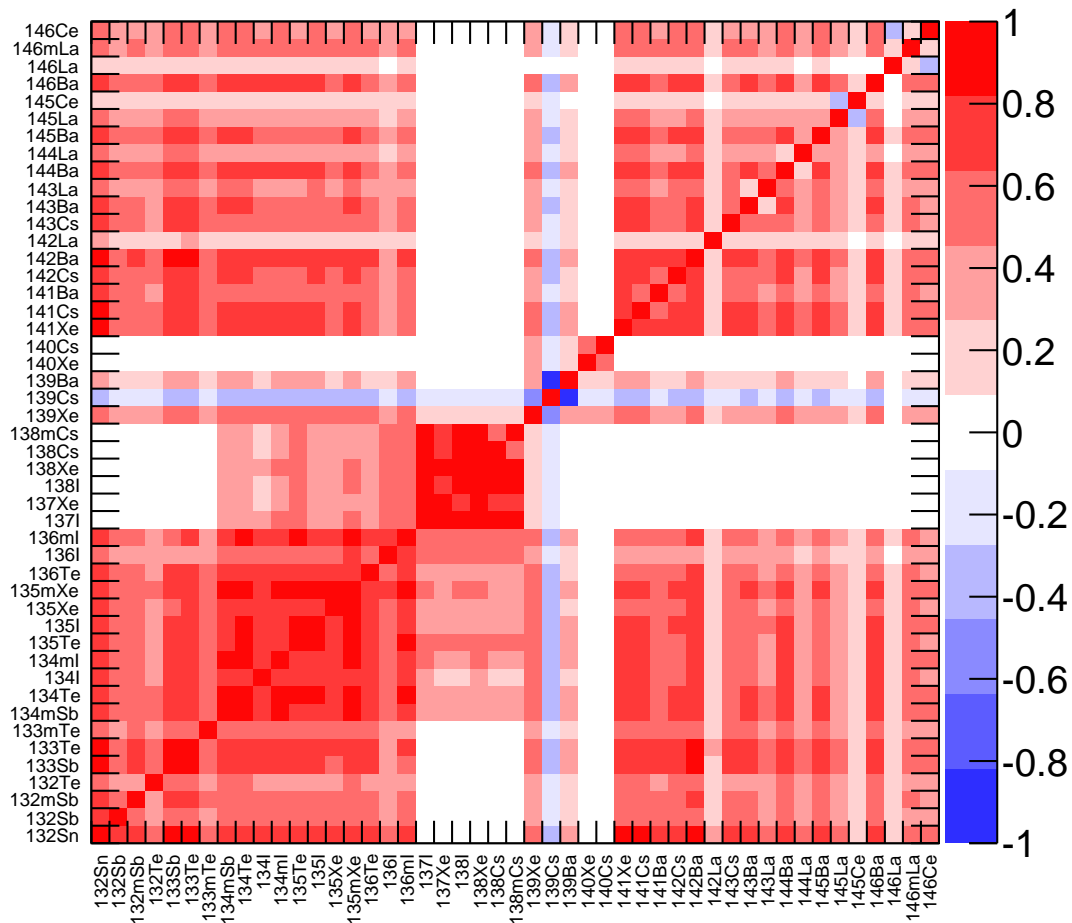


FIGURE 7.17. La matrice de corrélation des rendements isotopiques de $l^{233}\text{U}(n_{th},f)$ des masses du pic lourd allant de 132 à 146.

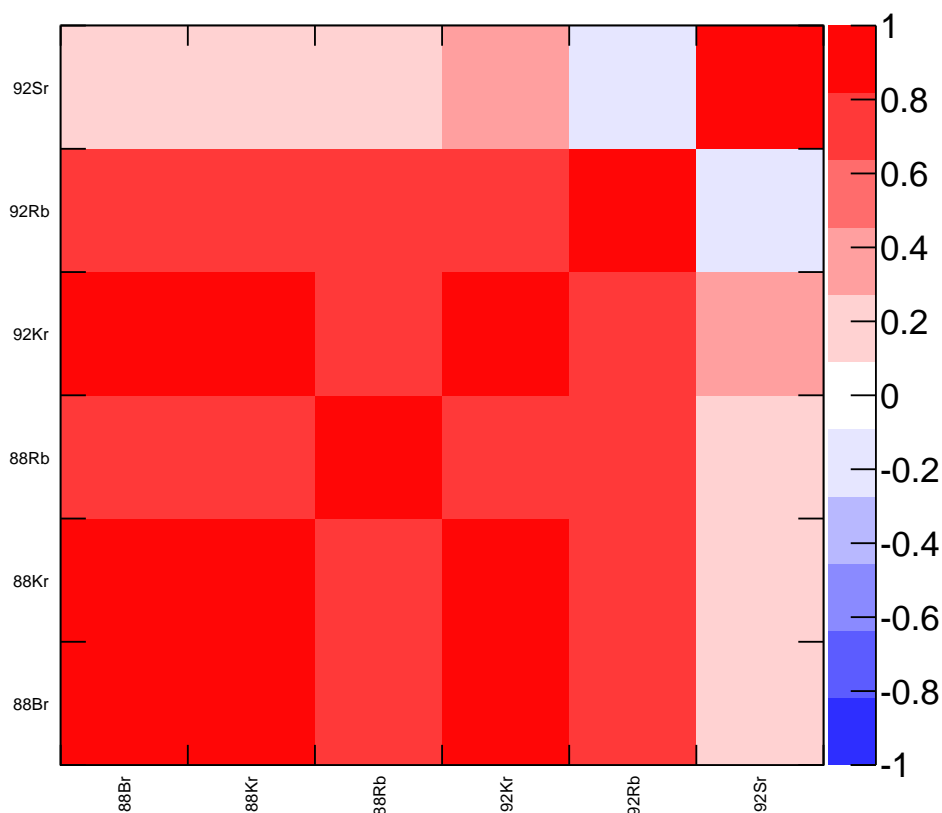


FIGURE 7.18. La matrice de corrélation des rendements isotopiques de $l^{233}\text{U}(n_{th},f)$ des masses 88 et 92 du pic léger. Ces rendements sont indépendants de ceux du pic lourd.

7.3 Conclusion

La première partie de ce chapitre présente les résultats de l'analyse des rendements en masse de $l^{233}\text{U}$ et du ^{241}Pu . Ces résultats sont comparés aux bibliothèques d'évaluations JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0 ainsi qu'à d'autres données disponibles telles que des rendements cumulés obtenus par radiochimie ou encore les résultats des calculs de GEF version 2013/1.7. Nos résultats montrent un bon accord avec les évaluations. Cependant des différences peuvent être observées localement. L'exemple le plus remarquable est celui du rendement de la masse 136 pour la fission de $l^{233}\text{U}$, où notre donnée expérimentale présente un bien meilleur accord avec l'évaluation d' ENDF/B-VII.0, qu'avec celle de JEFF-3.1.1.

Le processus de normalisation que nous avons choisi pour $l^{233}\text{U}$ permet d'obtenir des rendements indépendants d'une source extérieure à condition d'avoir mesuré l'ensemble des masses d'un des pics. Cette normalisation n'a pu être appliquée sur les rendements du ^{241}Pu , car le pic lourd a été couvert à environ 95 % (source JEFF-3.1.1). Ces données devront être

complétées lors de prochaines campagnes de mesures pour cet isotope.

Pour la première fois, la matrice de variance-covariance expérimentale associée aux rendements en masse mesurés pourra être fournie aux évaluateurs. Les contributions majoritaires aux incertitudes proviennent du processus de normalisation final ainsi que la normalisation d'une cible sur l'autre (cas de l' ^{233}U).

Dans la deuxième partie de ce chapitre, les rendements isotopiques mesurés de l' ^{233}U ont été comparés aux données provenant de JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.0. et à quelques données disponibles. Pour la quasi-totalité des rendements, nos mesures sont compatibles avec les évaluations. Les rendements isotopiques du pic lourd sont normalisés sur le rendement de la masse 139 qui a été mesuré pendant ces travaux. Comme pour les rendements en masse, les rendements isotopiques sont indépendants des évaluations.

Par ailleurs, les matrices de variance-covariance expérimentales associées aux mesures ont été produites. La contribution majoritaire aux incertitudes provient d'une part des données de structure nucléaire sur les intensités γ et d'autre part, du processus de normalisation, qui corréleront fortement les données entre elles.

Conclusion

Les rendements de fission interviennent dans les calculs des réacteurs et notamment dans les calculs de puissances résiduelles. Cependant, ces rendements de fission sont prédits avec une précision très insuffisante par les modèles théoriques. De plus, les évaluations présentent des différences entre elles et avec les données mesurées, en particulier dans le pic lourd pour l' $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ et du $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$. Ces données mesurées sont majoritairement des rendements cumulés. Ainsi, l'objectif principal de cette étude était d'améliorer les données expérimentales sur les rendements indépendants des produits de fission principalement du pic lourd de ces isotopes.

Les données acquises pendant la soixantaine de jours de mesures a permis de déterminer les rendements de 50 masses et de 54 isotopes pour l' ^{233}U et les rendements de 24 masses pour le ^{241}Pu . L'arrivée tardive des cibles ainsi que les nombreux problèmes techniques, ont conduit à effectuer l'ensemble des mesures sur le ^{241}Pu en mai et juin 2013, c'est la raison pour laquelle seuls les rendements en masse ont pu être analysés et présentés dans ce document.

La mesure des rendements que ce soit en masse ou isotopique a été effectuée auprès du spectromètre de masse Lohengrin de l'ILL. Celui-ci présente une résolution en masse exceptionnelle. En effet, pour $A < 150$ la résolution d'une unité de masse est obtenue à trois σ . Le spectromètre Lohengrin est combiné avec un dispositif expérimental, qui diffère suivant que l'on veuille mesurer des rendements en masse ou isotopiques. Les rendements en masse ont été obtenus avec une chambre d'ionisation, alors que les rendements isotopiques ont été déterminés à l'aide d'un dispositif de spectrométrie γ . Ce dernier nécessite un long travail d'analyse et l'intégration de données nucléaires de structure disponibles dans la base de données ENSDF.

La méthode d'analyse mise en place lors de cette étude a eu pour objectif d'évaluer précisément les incertitudes et de maîtriser les biais expérimentaux. Cette analyse détaillée est un prérequis nécessaire à la construction des matrices de variance-covariance expérimentales, qui ne sont généralement pas fournies avec les mesures de rendements. Par rapport aux travaux antérieurs, ce sont principalement trois biais qui ont été corrigés. Dans l'analyse des rendements en masse, la corrélation entre les distributions en charge ionique et en énergie cinétique a été mesurée et a été intégrée dans le calcul. Pour les rendements isotopiques, l'effet de somme ainsi que la contamination du cadre par des éléments à vie longue ont été pris en compte dans l'analyse.

Les résultats obtenus sont en accord avec les bibliothèques d'évaluations, avec de plus une incertitude inférieure sur les rendements en masse. Par ailleurs, les rendements en masse et isotopiques de l' ^{233}U sont indépendants des évaluations. Cela est rendu possible grâce à un processus d'auto-normalisation, qui a nécessité de couvrir l'ensemble des masses du pic lourd.

Les rendements ainsi que les matrices de variance-covariance associées seront mis à la disposition du sous-groupe 37 de la NEA "Improved fission product yield evaluation metho-

dologies". De nouvelles campagnes de mesures sont prévues après le redémarrage du réacteur de l'ILL en 2014. Les rendements en masse du ^{241}Pu seront complétés, ce qui permettra l'application de la procédure d'auto-normalisation, qui a été employée pour l' ^{233}U . En outre, la mesure des rendements du ^{243}Cm et ^{245}Cm est programmée. Les mesures de rendements isotopiques mettront en oeuvre un dispositif expérimental amélioré avec l'ajout de deux détecteurs Ge monocristaux. Cela permettra notamment une étude plus approfondie des effets de somme, dont la correction est apparue indispensable lors de l'analyse présentée dans ce document. Parmi ces nouvelles mesures, certaines seront ciblées pour l'étude des rendements isomériques. Ces derniers sont particulièrement importants pour l'étude des distributions de spins et des spectres de γ prompts de fission. La méthode d'analyse développée dans ce document servira de support pour ces futures expériences.

Dans un futur plus lointain, de nouveaux instruments sont envisagés. On peut notamment citer la thèse d'A. Chebboubi, dans laquelle le dimensionnement d'un spectromètre, qui fonctionnerait sur le principe d'une séparation des produits de fission grâce à un aimant rempli de gaz, est étudié. Cela fait suite à des résultats obtenus sur des expériences préliminaires, dans lesquelles l'aimant RED du spectromètre Lohengrin a été remplie de gaz.

La moyenne de plusieurs données

Lorsqu'une donnée a été mesurée plusieurs fois, il est souvent nécessaire de faire la moyenne des différentes mesures. Le premier estimateur auquel on pense, est la moyenne arithmétique, mais il ne conduit pas nécessairement à obtenir une valeur de faible incertitude. Prenons un exemple, la distance entre deux détecteurs a été mesurée à deux reprises. La première mesure est de 4.0 cm \pm 0.1 cm et la seconde mesure est de 4.6 cm \pm 0.7 cm. La moyenne arithmétique est de 4.3 cm avec une incertitude de $\sqrt{0.1^2 + 0.7^2}/2 = 0.35$ cm. Ainsi, dans cet exemple, la moyenne arithmétique fournit une valeur moins précise que la première mesure toute seule. C'est la raison pour laquelle, la moyenne qui sera appliquée est une moyenne pondérée par les variances (définie dans l'équation A.1), ce qui permet de minimiser l'incertitude (définie dans l'équation A.2). Dans notre exemple cela donnerait une moyenne de $(4.0/0.1^2 + 4.6/0.7^2)/(1/0.1^2 + 1/0.7^2) = 4.006$ cm et une incertitude de 0.099 cm. Cela n'améliore pas significativement le résultat obtenu avec la première mesure seule, mais cette méthode ne le dégrade pas. L'incertitude sera nettement améliorée dans le cas, où les mesures ont des incertitudes relativement proches.

$$\text{moyenne } \bar{X} = \frac{\sum_i X_i / \text{var}(X_i)}{\sum_i 1 / \text{var}(X_i)} \quad (\text{A.1})$$

$$\text{erreur } \sigma_{\bar{X}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_i 1 / \text{var}(X_i)}} \quad (\text{A.2})$$

Pour obtenir les formules ci-dessus, on cherche à déterminer m à partir de deux mesures indépendantes X_1 et X_2 . Ces mesures sont deux variables aléatoires décrites par deux distributions gaussiennes de même moyenne m et d'écart-type σ_1 et σ_2 . On cherche à déterminer l'estimateur \tilde{m} de m qui soit non-biaisé et de variance minimale, qui se présente sous la forme d'une combinaison linéaire de X_1 et X_2 :

$$\tilde{m} = aX_1 + bX_2 \quad (\text{A.3})$$

On veut que \tilde{m} soit non-biaisé, c'est à dire que son espérance ou sa moyenne soit égale à

m . Commençons par calculer l'espérance de \tilde{m} .

$$\begin{aligned} E[\tilde{m}] &= E[aX_1 + bX_2] \\ &= aE[X_1] + bE[X_2] \\ &= (a + b)m \end{aligned} \tag{A.4}$$

$$E[\tilde{m}] = m \text{ (non-biaisé)}$$

$$\Leftrightarrow a + b = 1 \tag{A.5}$$

$$\Leftrightarrow \tilde{m} = aX_1 + (1 - a)X_2 \tag{A.6}$$

Maintenant calculons la variance de \tilde{m} .

$$\begin{aligned} \text{var}(\tilde{m}) &= a^2 \text{var}(X_1) + (1 - a)^2 \text{var}(X_2) \\ &= a^2 \sigma_1^2 + (1 - a)^2 \sigma_2^2 \\ &= a^2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) - 2a\sigma_2^2 + \sigma_2^2 \end{aligned}$$

Puis dérivons $\text{var}(\tilde{m})$ par rapport à a :

$$\begin{aligned} \frac{d \text{var}(\tilde{m})}{d a} &= 2a(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) - 2\sigma_2^2 \\ \frac{d \text{var}(\tilde{m})}{d a} &= 0 \text{ (variance minimale)} \\ \Leftrightarrow a &= \frac{\sigma_2^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \\ &= \frac{1}{\frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2}} \end{aligned}$$

Ainsi l'estimateur non-biaisé de variance minimale de m est :

$$\tilde{m} = \frac{\frac{X_1}{\sigma_1^2} + \frac{X_2}{\sigma_2^2}}{\frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2}} \tag{A.7}$$

Et sa variance :

$$\text{var}(\tilde{m}) = \frac{1}{\frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2}} \tag{A.8}$$

La somme de deux gaussiennes

Dans cette annexe, nous allons nous intéresser à la distribution gaussienne (eq. B.1) ainsi qu'à la somme de deux distributions gaussiennes (eq. B.2). $\mathcal{N}(\mu, \sigma^2)$ correspond à la distribution gaussienne normalisée à 1, de moyenne μ et de variance σ^2 .

$$\begin{aligned} g(x) &= I \times \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) \\ &= \frac{I}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp -\frac{(x - \mu)^2}{2\sigma^2} \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

$$\begin{aligned} dg(x) &= I_1 \times \mathcal{N}(\mu_1, \sigma_1^2) + I_2 \times \mathcal{N}(\mu_2, \sigma_2^2) \\ &= \frac{I_1}{\sqrt{2\pi}\sigma_1} \exp -\frac{(x - \mu_1)^2}{2\sigma_1^2} + \frac{I_2}{\sqrt{2\pi}\sigma_2} \exp -\frac{(x - \mu_2)^2}{2\sigma_2^2} \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

B.1 Aire totale

L'aire totale de la gaussienne :

$$\begin{aligned} \int_x g(x) dx &= \int_x I \times \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) dx \\ &= I \times \int_x \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) dx \\ &= I \end{aligned}$$

L'aire totale de la somme des deux gaussiennes :

$$\begin{aligned} \int_x dg(x) dx &= \int_x [I_1 \times \mathcal{N}(\mu_1, \sigma_1^2) + I_2 \times \mathcal{N}(\mu_2, \sigma_2^2)] dx \\ &= I_1 + I_2 \end{aligned}$$

B.2 Moyenne

La moyenne de la gaussienne :

$$\frac{1}{I} \int_x x g(x) dx = \frac{I}{I} \int_x x \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) dx = \mu$$

La moyenne de la somme de deux gaussiennes M :

$$\begin{aligned}
 M &= \frac{1}{I_1 + I_2} \int_x x dg(x) dx \\
 &= \frac{1}{I_1 + I_2} \int_x x [I_1 \times \mathcal{N}(\mu_1, \sigma_1^2) + I_2 \times \mathcal{N}(\mu_2, \sigma_2^2)] dx \\
 &= \frac{I_1 \mu_1 + I_2 \mu_2}{I_1 + I_2}
 \end{aligned}$$

B.3 Variance

La variance de la gaussienne :

$$\frac{1}{I} \int_x (x - \mu)^2 g(x) dx = \frac{I}{I} \int_x (x - \mu)^2 \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) dx = \sigma^2$$

La variance de la somme de deux gaussiennes V :

$$\begin{aligned}
 V &= \frac{1}{I_1 + I_2} \int_x (x - M)^2 dg(x) dx \\
 \text{or } \forall x, \text{var}(x) &= E[x - E(x)]^2 = E(x^2) - E(x)^2 \\
 V &= \frac{1}{I_1 + I_2} \int_x x^2 dg(x) dx - M^2 \\
 &= \frac{I_1}{I_1 + I_2} \int_x x^2 \mathcal{N}(\mu_1, \sigma_1^2) dx + \frac{I_2}{I_1 + I_2} \int_x x^2 \mathcal{N}(\mu_2, \sigma_2^2) dx - M^2 \\
 &= \frac{I_1}{I_1 + I_2} (\sigma_1^2 + \mu_1^2) + \frac{I_2}{I_1 + I_2} (\sigma_2^2 + \mu_2^2) - \left(\frac{I_1 \mu_1 + I_2 \mu_2}{I_1 + I_2} \right)^2 \\
 &= \frac{I_1 \sigma_1^2 + I_2 \sigma_2^2}{I_1 + I_2} + \frac{I_1^2 \mu_1^2 + I_1 I_2 \mu_1^2 + I_2^2 \mu_2^2 + I_1 I_2 \mu_2^2 - I_1^2 \mu_1^2 - I_2^2 \mu_2^2 - 2I_1 I_2 \mu_1 \mu_2}{(I_1 + I_2)^2} \\
 &= \frac{I_1 \sigma_1^2 + I_2 \sigma_2^2}{I_1 + I_2} + \frac{I_1 I_2 (\mu_1^2 + \mu_2^2 - 2\mu_1 \mu_2)}{(I_1 + I_2)^2} \\
 &= \frac{I_1 \sigma_1^2 + I_2 \sigma_2^2}{I_1 + I_2} + \frac{I_1 I_2 (\mu_1 - \mu_2)^2}{(I_1 + I_2)^2}
 \end{aligned}$$

Sensibilités et propagations des incertitudes

La sensibilité est un outil qui permet d'appréhender l'influence d'un paramètre sur une grandeur et de propager ainsi son incertitude sur cette même grandeur.

C.1 Définition de la sensibilité

La sensibilité de Y à x en a , se définit de la manière suivante :

$$S_{Y,x}(a) = \frac{\partial Y(a)}{\partial x} \frac{x}{Y(a)} \quad (\text{C.1})$$

C.2 Propriétés de la sensibilité

$$\begin{aligned} S_{\alpha f(x),x} &= S_{f(x),x} \\ S_{[f(x)]^n,x} &= nS_{f(x),x} \\ S_{A \times B,x} &= S_{A,x} + S_{B,x} \\ S_{A/B,x} &= S_{A,x} - S_{B,x} \\ S_{A+B,x} &= \frac{A}{A+B} S_{A,x} + \frac{B}{A+B} S_{B,x} \\ S_{A-B,x} &= \frac{A}{A-B} S_{A,x} - \frac{B}{A-B} S_{B,x} \\ S_{\alpha x^n,x} &= n, \quad \forall n \in \mathfrak{R} \end{aligned}$$

C.3 Propagations des incertitudes

Soit n variables aléatoires $(x_1, x_2, \dots, x_n) = \underline{x}$ d'espérances $(\mu_1, \mu_2, \dots, \mu_n = \underline{\mu})$ et d'écart-type $(\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_n)$ suivant la loi de probabilité $f(\underline{x})$. Soit Y une fonction de variables : x_1, x_2, \dots, x_n [122].

Développement limité au premier ordre de $Y(\underline{x})$

$$Y(\underline{x}) = Y(\underline{\mu}) + \sum_{i=1}^n \frac{\partial Y(\underline{\mu})}{\partial x_i} (x_i - \mu_i)$$

L'espérance de $Y(\underline{x})$

$$\begin{aligned} E[Y(\underline{x})] &= \int_{\underline{x}} Y(\underline{x}) f(\underline{x}) d\underline{x} \\ &= \int_{\underline{x}} \left[Y(\underline{\mu}) + \sum_{i=1}^n \frac{\partial Y(\underline{\mu})}{\partial x_i} (x_i - \mu_i) \right] f(\underline{x}) d\underline{x} \\ &= Y(\underline{\mu}) + \sum_{i=1}^n \frac{\partial Y(\underline{\mu})}{\partial x_i} \int_{\underline{x}} (x_i - \mu_i) f(\underline{x}) d\underline{x} \\ &= Y(\underline{\mu}) + \sum_{i=1}^n \frac{\partial Y(\underline{\mu})}{\partial x_i} \left[\underbrace{\int_{\underline{x}} x_i f(\underline{x}) d\underline{x}}_{=\mu_i} - \mu_i \right] \\ &= Y(\underline{\mu}) + \sum_{i=1}^n \frac{\partial Y(\underline{\mu})}{\partial x_i} * 0 \\ &= Y(\underline{\mu}) \end{aligned}$$

En résumé, si l'on développe Y au premier ordre, alors : $E[Y(\underline{x})] = Y(E[\underline{x}])$.

La covariance de $Y_k(\underline{x})$ et de $Y_l(\underline{x})$

$$\begin{aligned}
 \text{cov}(Y_k(\underline{x}), Y_l(\underline{x})) &= E \left[\left\{ Y_k(\underline{x}) - E[Y_k(\underline{x})] \right\} \left\{ Y_l(\underline{x}) - E[Y_l(\underline{x})] \right\} \right] \\
 &= E \left[\left\{ Y_k(\underline{x}) - Y_k(\underline{\mu}) \right\} \left\{ Y_l(\underline{x}) - Y_l(\underline{\mu}) \right\} \right] \\
 &= E \left[\left\{ \sum_{i=1}^n \frac{\partial Y_k(\underline{\mu})}{\partial x_i} (x_i - \mu_i) \right\} \left\{ \sum_{j=1}^n \frac{\partial Y_l(\underline{\mu})}{\partial x_j} (x_j - \mu_j) \right\} \right] \\
 &= \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \frac{\partial Y_k(\underline{\mu})}{\partial x_i} \frac{\partial Y_l(\underline{\mu})}{\partial x_j} E[(x_i - \mu_i)(x_j - \mu_j)] \\
 &= \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \frac{\partial Y_k(\underline{\mu})}{\partial x_i} \frac{\partial Y_l(\underline{\mu})}{\partial x_j} \text{cov}(x_i, x_j)
 \end{aligned}$$

$$\frac{\text{cov}(Y_k(\underline{x}), Y_l(\underline{x}))}{Y_k(\underline{\mu}) * Y_l(\underline{\mu})} = \sum_{i=1}^n S_{Y_k, x_i}(\underline{\mu}) \sum_j S_{Y_l, x_j}(\underline{\mu}) \frac{\text{cov}(x_i, x_j)}{\mu_i * \mu_j}$$

La variance de $Y(\underline{x})$

$$\begin{aligned}
 \frac{\text{var}(Y(\underline{x}))}{Y(\underline{\mu})^2} &= \frac{\text{cov}(Y(\underline{x}), Y(\underline{x}))}{Y(\underline{\mu}) * Y(\underline{\mu})} \\
 &= \sum_{i=1}^n S_{Y, x_i}(\underline{\mu}) \sum_{j=1}^n S_{Y, x_j}(\underline{\mu}) \frac{\text{cov}(x_i, x_j)}{\mu_i * \mu_j}
 \end{aligned}$$

Démonstration des formules de rendements en masse

D.1 Si les distributions en charge ionique et en énergie cinétique sont indépendantes

Si les distributions en charge ionique q et en énergie cinétique E sont indépendantes, alors $N(A, q, E)$ peut s'écrire comme le produit de ces distributions f_q et f_E respectivement (eq. D.1).

$$N(A, q, E) = N(A) f_q(q) f_E(E) \quad (\text{D.1})$$

Le taux de comptage d'une masse A est la somme sur q et l'intégrale sur E $N(A, q, E)$ (eq. D.2). En remplaçant $N(A, q, E)$ par son expression (eq. D.1), nous obtenons l'équation D.3. En multipliant en haut et en bas par $N(A) f_q(q_E) f_E(E_q)$ (eq. D.4), apparaissent les mesures du scan E et du scan q (eq. D.5 et D.6).

$$N(A) = \sum_q \int_E N(A, q, E) dE \quad (\text{D.2})$$

$$= \sum_q \int_E N(A) f_q(q) f_E(E) dE \quad (\text{D.3})$$

$$= N(A) \times \sum_q f_q(q) \times \int_E f_E(E) dE \times \frac{N(A) f_q(q_E) f_E(E_q)}{N(A) f_q(q_E) f_E(E_q)} \quad (\text{D.4})$$

$$= \frac{\sum_q N(A) f_q(q) f_E(E_q)}{N(A) f_q(q_E) f_E(E_q)} \times \int_E N(A) f_q(q_E) f_E(E) dE \quad (\text{D.5})$$

$$= \frac{\sum_q N(A, q, E_q)}{N(A, q_E, E_q)} \int_E N(A, q_E, E) dE \quad (\text{D.6})$$

D.2 Si les distributions en charge ionique et en énergie cinétique sont corrélées

Dans ce cas là, la distribution f_E est supposé dépendante de q . On peut exprimer $\bar{E}(q) = a \times q + b$ et l'on note : $\Delta\bar{E}(q) = \bar{E}(q) - \bar{E}(q_E) = a \times (q - q_E) = a \times \Delta q$. On fait l'hypothèse que la corrélation de E et q comme une translation de la distribution en énergie, en fonction de la charge.

$$f_E(E, q) = f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E)$$

$$N(A, q, E) = N(A) f_q(q) f_E(E, q) \quad (\text{D.7})$$

$$= N(A) f_q(q) f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E) \quad (\text{D.8})$$

$$N(A) = \sum_q \int_E N(A, q, E) dE \quad (\text{D.9})$$

$$= \sum_q \int_E N(A) f_q(q) f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E) dE \quad (\text{D.10})$$

$$= \sum_q N(A) f_q(q) \int_E f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E) dE \quad (\text{D.11})$$

$$= \sum_q \frac{N(A) f_q(q) f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E)}{N(A) f_q(q_E) f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E)} \int_E N(A) f_q(q_E) f_E(E - \Delta\bar{E}(q), q_E) dE \quad (\text{D.12})$$

$$= \sum_q \frac{N^q(A, q, E_q)}{N^E(A, q_E, E_q - \Delta\bar{E}(q))} \int_E N^E(A, q_E, E) dE \quad (\text{D.13})$$

de plus, pour conserver une certaine homogénéité entre les données avec et sans corrélation, le temps de référence pour le BU doit correspondre à la distribution en énergie.

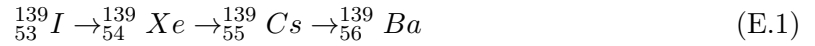
$$N(A) = \frac{\sum_q N^q(A, q, E_q) \frac{N^E(A, q_E, E_q)}{N^E(A, q_E, E_q - \Delta\bar{E}(q))}}{N^q(A, q_E, E_q)} \int_E N^E(A, q_E, E) dE \quad (\text{D.14})$$

$$(\text{D.15})$$

Résolution matricielle des équations de Bateman

E.1 Les équation de Bateman

Prenons l'exemple de la masse 139 (schéma E.1), l'iode 139 décroît à 90% en xénon 139, (les 10% restant décroissent en xénon 138). Le xénon 139 décroît en césium 139, qui décroît en baryum 139.



Les populations de ces différents noyaux sont régies par les équations de Bateman (eq. E.2, E.3, E.4, E.5) avec N_Z la quantité de noyaux Z , λ_Z leur constante de désintégration et P_Z leur production par unité de temps.

$$\frac{dN_I}{dt} = -\lambda_I N_I + P_I \quad (\text{E.2})$$

$$\frac{dN_{Xe}}{dt} = -\lambda_{Xe} N_{Xe} + P_{Xe} + 0.9\lambda_I N_I \quad (\text{E.3})$$

$$\frac{dN_{Cs}}{dt} = -\lambda_{Cs} N_{Cs} + P_{Cs} + \lambda_{Xe} N_{Xe} \quad (\text{E.4})$$

$$\frac{dN_{Ba}}{dt} = -\lambda_{Ba} N_{Ba} + P_{Ba} + \lambda_{Cs} N_{Cs} \quad (\text{E.5})$$

Ces équations peuvent s'écrire sous une forme matricielle (eq. E.6)

$$\frac{d\underline{N}}{dt} = \underline{A}\underline{N} + \underline{B} \quad (\text{E.6})$$

$$\text{avec } \underline{N} = \begin{pmatrix} N_I \\ N_{Xe} \\ N_{Cs} \\ N_{Ba} \end{pmatrix}, \underline{A} = \begin{pmatrix} -\lambda_I & 0 & 0 & 0 \\ 0.9\lambda_I & -\lambda_{Xe} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{Xe} & -\lambda_{Cs} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{Cs} & -\lambda_{Ba} \end{pmatrix} \text{ et } \underline{B} = \begin{pmatrix} P_I \\ P_{Xe} \\ P_{Cs} \\ P_{Ba} \end{pmatrix}$$

\underline{N} correspond à la quantité de chaque noyau au temps t . \underline{B} est le terme source c'est à dire le terme de production. Enfin \underline{A} est la matrice caractéristique des constantes de décroissances et des rapports d'embranchement (eq. E.1).

E.2 Mesure avec le faisceau est ouvert

Lorsqu'une mesure de rendements isotopiques est réalisée, le faisceau est ouvert en même temps que le début de l'acquisition de données par les détecteurs Germanium. Au temps initial, le vecteur \underline{N} est supposé nul, car a priori il n'y a aucun noyau sur la bande.

Le nombre de désintégration par seconde d'un noyau Z est égal à $\lambda_Z N_Z$. Les mesures effectuées avec les détecteurs Germanium, après correction de l'efficacité des Germanium et de l'intensité γ , permettent de déterminer le nombre de désintégration du noyau Z pendant une durée t , ce qui correspond à $\int_0^t \lambda_Z N_Z(u) du = \lambda_Z \times \int_0^t N_Z(u) du$. Pour la suite des calculs, l'intégral de \underline{N} du temps initial au temps t est notée $\underline{X} = \int_0^t \underline{N}(u) du$.

L'équation E.6 est intégrée de 0 à t :

$$\underline{N}(t) - \underline{N}(0) = \underline{A} \int_0^t \underline{N}(u) du + \int_0^t \underline{B}(u) du \quad (\text{E.7})$$

Comme cela a été précisé précédemment, au temps initial le vecteur $\underline{N}(0)$ est supposé nul. De plus, le vecteur production \underline{B} est supposé constant pendant toute la durée de la mesure et il est directement proportionnel aux rendements. L'équation E.7 devient :

$$\frac{d\underline{X}}{dt} = \underline{A} \underline{X} + t \underline{B} \quad (\text{E.8})$$

La matrice \underline{A} est triangulaire inférieur, elle est donc diagonalisable.

En notant : $\underline{A} = \underline{P} \underline{D} \underline{P}^{-1}$, $\underline{Y} = \underline{P}^{-1} \underline{X}$ et $\underline{C} = \underline{P}^{-1} \underline{B}$ ainsi qu'en multipliant par \underline{P}^{-1} , l'équation E.8 devient :

$$\frac{d\underline{Y}}{dt} = \underline{D} \underline{Y} + t \underline{C} \quad (\text{E.9})$$

On obtient alors n équations de la forme :

$$\frac{dY_i}{dt} = D_{i,i} Y_i + t C_i \text{ avec } i \in [0, n-1] \quad (\text{E.10})$$

Il s'agit d'une équation linéaire à coefficients constants avec second membre polynomial du premier degré. La Solution Générale de l'Equation Avec Second Membre (SGEASM) s'obtient en sommant la Solution Générale de l'Equation Sans Second Membre (SGESSM) et une Solution Particulière (SP).

$$\begin{aligned} \text{SGESSM } Y_i(t) &= \mathcal{A} \exp(D_{i,i} t) \\ \text{SP } Y_i(t) &= \mathcal{B} t + \mathcal{C} \end{aligned}$$

De plus, comme $\underline{X}(0) = [0]$ par définition, $\underline{Y}(0) = [0]$, la Solution Générale de l'équation

Avec Second Membre devient unique et s'écrit :

$$\begin{aligned} SGEASM \quad Y_i(t) &= \frac{C_i}{D_{i,i}^2} [\exp(D_{i,i}t) - 1 - D_{i,i}t] \\ \Leftrightarrow C_i &= \frac{D_{i,i}^2}{\exp(D_{i,i}t) - 1 - D_{i,i}t} Y_i \end{aligned} \quad (E.11)$$

En posant $E_{i,i} = \frac{D_{i,i}^2}{\exp(D_{i,i}t) - 1 - D_{i,i}t}$, l'équation E.11 peut s'écrire sous forme matricielle :

$$\begin{aligned} \underline{C} &= \underline{E} \underline{Y} \\ \Leftrightarrow \underline{P}^{-1} \underline{B} &= \underline{E} \underline{P}^{-1} \underline{X} \\ \Leftrightarrow \underline{B} &= \underline{P} \underline{E} \underline{P}^{-1} \underline{X} \end{aligned}$$

Attention, la mesure corrigée de l'efficacité et de l'intensité correspond à $\lambda_i X_i$ et non à X_i (l'intensité prend en compte les rapports d'embranchements).

E.3 Le faisceau est fermé

Ce problème correspond à la correction du cadre. Une mesure est effectuée pendant que le faisceau est fermé du temps t_0 au temps t_1 pour déterminer la contribution de la contamination qui se trouve sur le cadre pendant la mesure faisceau ouvert de t_2 à t_3 . Les différentes étapes sont listées ci-dessous :

- $t < t_0 = 0$ le faisceau est fermé
- t_0 , le faisceau est toujours fermé et début de la mesure "cadre"
- t_1 , le faisceau est toujours fermé et fin de la mesure "cadre"
- t_2 , ouverture du faisceau et début de la mesure "isotopique"
- t_3 , fermeture du faisceau et fin de la mesure "isotopique"

Quelque soit l'instant considéré, le terme de production \underline{B} est nul, car l'étude porte sur la contribution des noyaux présents au temps initial t_0 . L'équation E.6 devient :

$$\frac{d\underline{N}}{dt} = \underline{A} \underline{N} \quad (E.12)$$

L'équation E.12 est intégrée entre le temps de 0 et le temps t :

$$\underline{N}(t) - \underline{N}(0) = \underline{A} \int_0^t \underline{N}(u) du \quad (E.13)$$

En notant $\underline{X}(t) = \int_0^t \underline{N}(u) du$, l'équation E.13 devient :

$$\frac{d\underline{X}}{dt} = \underline{A} \underline{X}(t) + \underline{N}(0) \quad (E.14)$$

$\underline{A} = \underline{P} \underline{D} \underline{P}^{-1}$, $\underline{Y} = \underline{P}^{-1} \underline{X}$ et $\underline{N}d = \underline{P}^{-1} \underline{N}$, ce qui permet d'obtenir :

$$\begin{aligned}
\frac{d\underline{Y}}{dt} &= \underline{D}\underline{Y}(t) + \underline{N}d(0) \\
\Leftrightarrow \frac{dY_i}{dt} &= D_{i,i}Y_i(t) + Nd_i(0) \\
\Leftrightarrow Y_i(t) &= \frac{\exp(D_{i,i}t) - 1}{D_{i,i}}Nd_i(0) \\
\Leftrightarrow Nd_i(0) &= \frac{D_{i,i}}{\exp(D_{i,i}t) - 1}Y_i(t)
\end{aligned}$$

En notant $E_{i,i} = \frac{\exp(D_{i,i}t)-1}{D_{i,i}}$ et $F_{i,i} = \frac{D_{i,i}}{\exp(D_{i,i}t)-1}$, les deux dernières équations peuvent s'écrire sous forme matricielle :

$$\begin{aligned}
&\begin{cases} \underline{Y}(t) = \underline{E}(t)\underline{N}d(0) \\ \underline{N}d(0) = \underline{F}(t)\underline{Y}(t) \end{cases} \\
\Leftrightarrow &\begin{cases} \underline{P}^{-1}\underline{X}(t) = \underline{E}(t)\underline{P}^{-1}\underline{N}(0) \\ \underline{P}^{-1}\underline{N}(0) = \underline{F}(t)\underline{P}^{-1}\underline{X}(t) \end{cases} \\
\Leftrightarrow &\begin{cases} \underline{X}(t) = \underline{P}\underline{E}(t)\underline{P}^{-1}\underline{N}(0) \\ \underline{N}(0) = \underline{P}\underline{F}(t)\underline{P}^{-1}\underline{X}(t) \end{cases}
\end{aligned}$$

In fine, la donnée à déterminer est la contribution de $\underline{N}(0)$ durant la mesure des rendements isotopiques. Cette contribution est égale à l'intégrale de \underline{N} de t_2 à t_3 soit $\underline{X}(t_3) - \underline{X}(t_2)$. $\underline{N}(0)$ se déduit de la mesure "cadre" $\underline{X}(t_1) - \underline{X}(t_0) = \underline{X}(t_1)$. Ainsi $\underline{X}(t_{2/3})$ sont exprimés en fonction de $\underline{X}(t_1)$

$$\begin{aligned}
\underline{X}(t_{2/3}) &= \underline{P}\underline{E}(t_{2/3})\underline{P}^{-1}\underline{P}\underline{F}(t_1)\underline{P}^{-1}\underline{X}(t_1) \\
&= \underline{P}\underline{E}(t_{2/3})\underline{F}(t_1)\underline{P}^{-1}\underline{X}(t_1)
\end{aligned}$$

De la même façon que les mesures avec faisceau, $X(t)$ correspond à la mesure divisée par l'efficacité, l'intensité et la constante de désintégration λ :

$$X = \frac{\text{mesure}}{\epsilon_\gamma \times I_\gamma \times \lambda}$$

Démonstration des formules de rendements isotopiques

La chambre d'ionisation a permis de mesurer la distribution en énergie et en charge. L'histogramme 2D fournit un comptage qui une fois divisé par le BU et le temps de mesure correspond à :

$$N_{A_k}^{CI}(q, \Delta E_q) = \int_{\Delta E_q} N_{A_k}^{CI}(qE, E) dE$$

où ΔE_q correspond à l'acceptance en énergie du Lohengrin pour la sortie considérée (ici la sortie droite avec la chambre d'ionisation (CI)).

Le taux de comptage pour la masse A_k s'obtient en intégrant sur l'énergie et sur la charge :

$$N_{A_k}^{CI} = \frac{\sum_q N_{A_k}^{CI}(q, \Delta E_q)}{N_{A_k}^{CI}(qE, \Delta E_q)} \int_E N_{A_k}^{CI}(qE, E) dE$$

Les détecteurs Germanium ont mesuré la distribution en charge des différents isotopes constituant la masse A_k . Le comptage après correction du temps, du BU, de l'efficacité du Germanium, de l'intensité des raies et enfin intégration des équations de Bateman correspond à :

$$N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}, q, \Delta E_q) = \int_{\Delta E_q^{Ge}} N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}, q, E) dE$$

, où ΔE_q^{Ge} correspond à l'acceptance en énergie du Lohengrin pour la sortie considérée (ici la sortie après le Red). On notera :

$$N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}, \Delta E_q) = \sum_q N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}, q, \Delta E_q)$$

L'étape suivante consiste à déterminer le taux de comptage d'un isotope donné dans la chambre d'ionisation. Pour rappel, la chambre d'ionisation ne permet pas de différencier les différentes charges nucléaires d'une même masse pour le pic lourd.

$$\begin{aligned} N_{A_k}^{CI}(Z_{ik}) &= \frac{N_{A_k}^{CI}(Z_{ik})}{N_{A_k}^{CI}} N_{A_k}^{CI} \\ &= \frac{N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik})}{N_{A_k}^{Ge} N_{A_k}^{CI}} \\ &= P(Z_{ik}|A_k) N_{A_k}^{CI} \end{aligned}$$

On fait l'hypothèse que $P(Z_{ik}|A_k, E) = \text{constante} \forall E$. On notera $f_{A_k}(E)$, la distribution en énergie de la masse A_k normalisée à l'unité.

$$\begin{aligned} N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}, \Delta E_q^{Ge}) &= N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}) \int_{\Delta E_q^{Ge}} f_{A_k}(E) dE \\ &\simeq N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}) \Delta E_q^{Ge} f_{A_k}(E_q^{Ge}) \\ \Leftrightarrow N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}) &= \frac{N_{A_k}^{Ge}(Z_{ik}, \Delta E_q^{Ge})}{\Delta E_q^{Ge} f_{A_k}(E_q^{Ge})} \end{aligned}$$

Si A_k est une masse "complète", alors les taux de comptage de chaque isotope peuvent être calculés.

Si A_l est une masse "incomplète", alors $N_{A_k}^{Ge}(Z_{il})$ ne peut être déterminé directement et il faut faire appel à un coefficient de passage $\mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge}$ entre le taux de comptage de la chambre d'ionisation et celui des détecteurs Germanium.

$$\begin{aligned} N_{A_k}^{Ge} &= \mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge} N_{A_k}^{CI} \\ \Leftrightarrow \mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge} &= \frac{N_{A_k}^{Ge}}{N_{A_k}^{CI}} \end{aligned}$$

Le coefficient de passage $\mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge}$ est indépendant de l'isotope considéré, ce qui permet d'écrire :

$$\begin{aligned} N^{Ge}(A_l) &= \mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge} N^{CI}(A_l) \\ \text{et } N^{CI}(A_l, Z_{il}) &= \mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge} N^{CI}(A_l, Z_{il}) \\ \Leftrightarrow N^{Ge}(A_l, Z_{il}) &= N^{Ge}(A_l, Z_{il}) / \mathcal{A}_{CI \rightarrow Ge} \end{aligned}$$

En conclusion, cette dernière formule parait extrêmement simple, mais elle cache de très nombreuses étapes : analyse des pics, de l'efficacité des Germanium, de l'intégration des équations de Bateman, des corrections du cadre pour les éléments à vie longue, analyse des données de la chambre d'ionisation, prise en compte du temps de mesure et du BU. Il faut de plus ajouter que les éléments qui ne sont pas mesurables avec les détecteurs Germanium, seront dotés d'une incertitude particulièrement grande, car ils seront le résultat de la soustraction entre $N^{CI}(A_l)$ et la somme des éléments accessibles : $\sum_{il} N^{Ge}(A_l, Z_{il})$.

Les distributions en charges ioniques obtenues avec les détecteurs Ge

Les figures G.1, G.2, G.3, G.4, G et G.5 présentent les distributions en charges ioniques obtenues par spectrométrie γ . Les distributions positionnées à gauche correspondent au nombre de décroissances mesurées pour chaque isotope en fonction de la charge ionique q . En intégrant les équations de Bateman, on obtient le rendement relatif d'un isotope pour une charge ionique et une énergie cinétique données, ce qui correspond aux distributions de droite.

Les rendements isotopiques sont obtenus à partir de ces distributions, qui constituent aussi un outil pour les expériences de structures, en fournissant des indications les réglages optimaux. Par exemple la distribution du ^{140}Cs (fig.G) présente un maximum au niveau de la charge ionique 28 alors que le ^{140}Xe y est absent. Ainsi pour étudier le ^{140}Cs , il serait préférable de se placer à une charge ionique proche de la charge 28. Il en va de même pour le ^{144}La (fig. G).

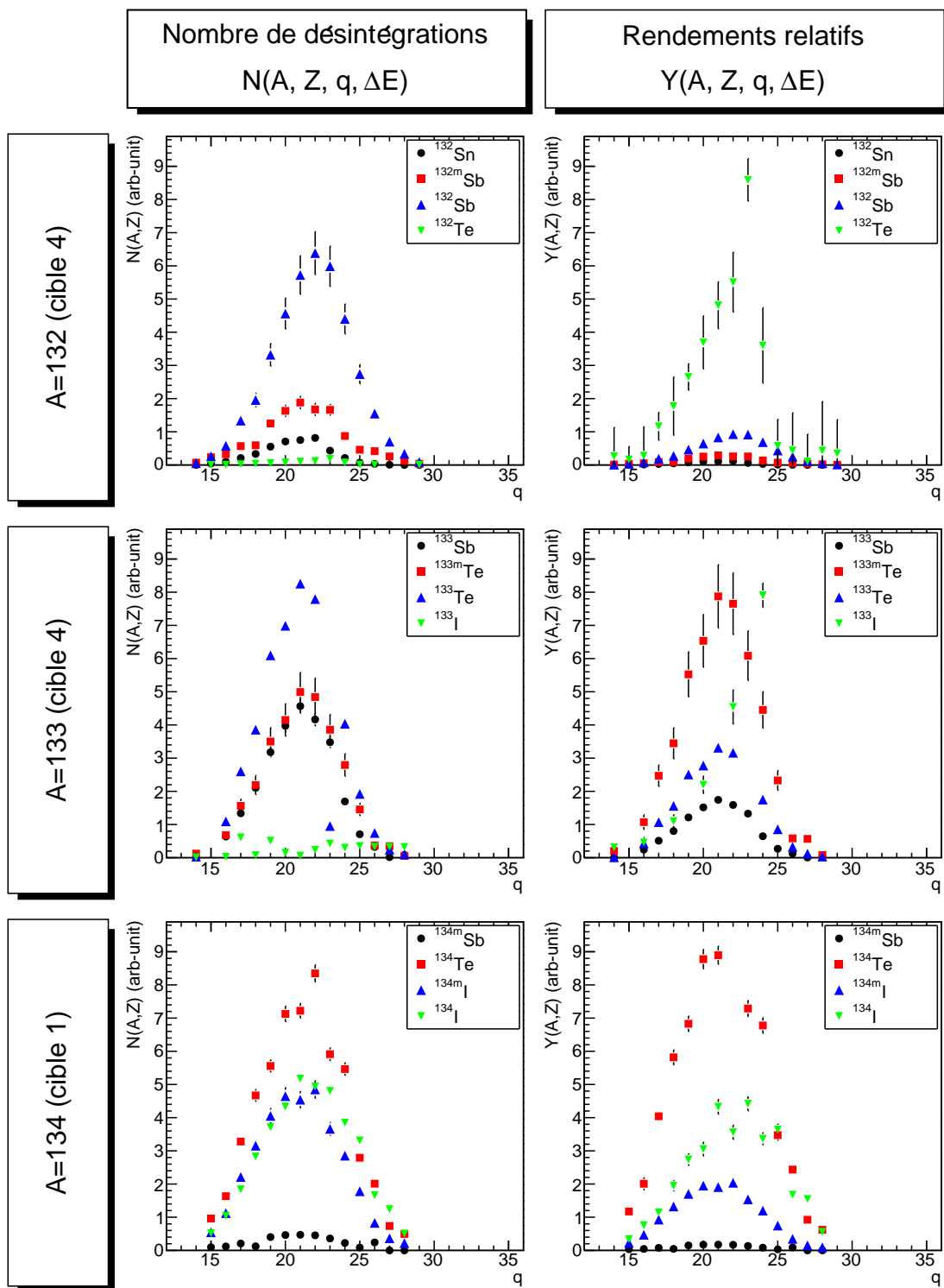


FIGURE G.1. Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 132, 133 et 134 avant et après corrections de Bateman.

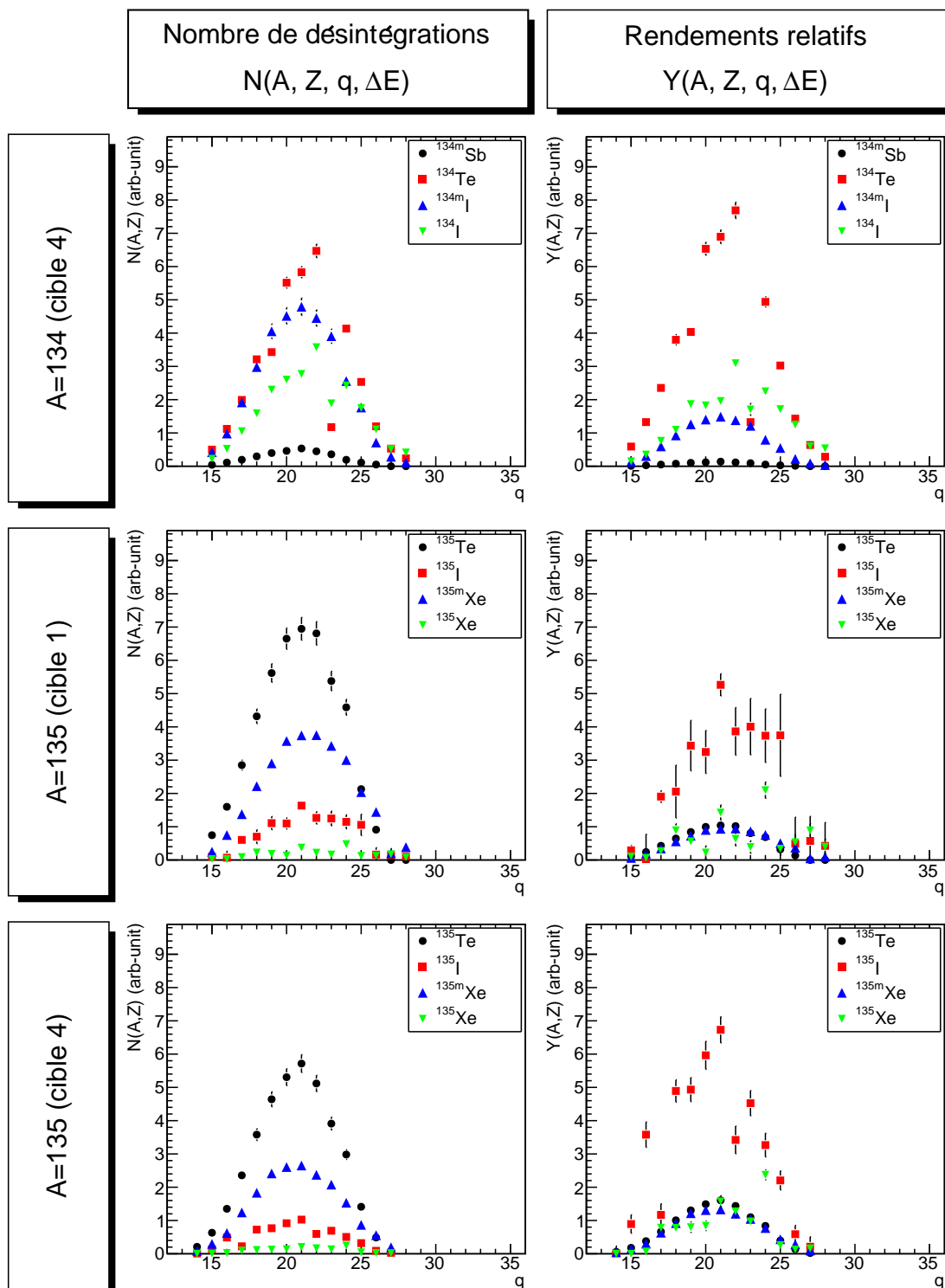


FIGURE G.2. Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 134 et 135 avant et après corrections de Bateman.

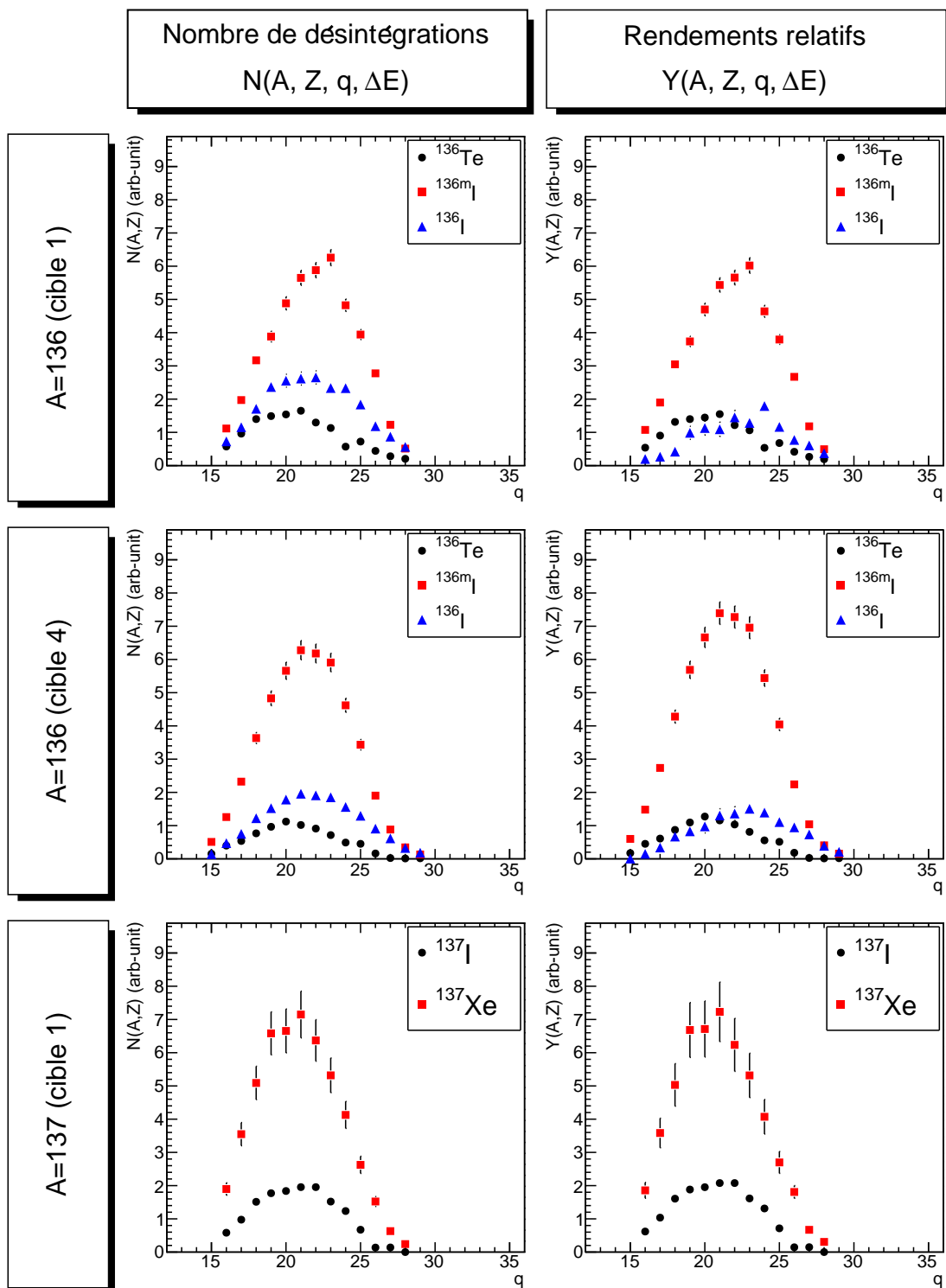


FIGURE G.3. Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 136 et 137 avant et après corrections de Bateman.

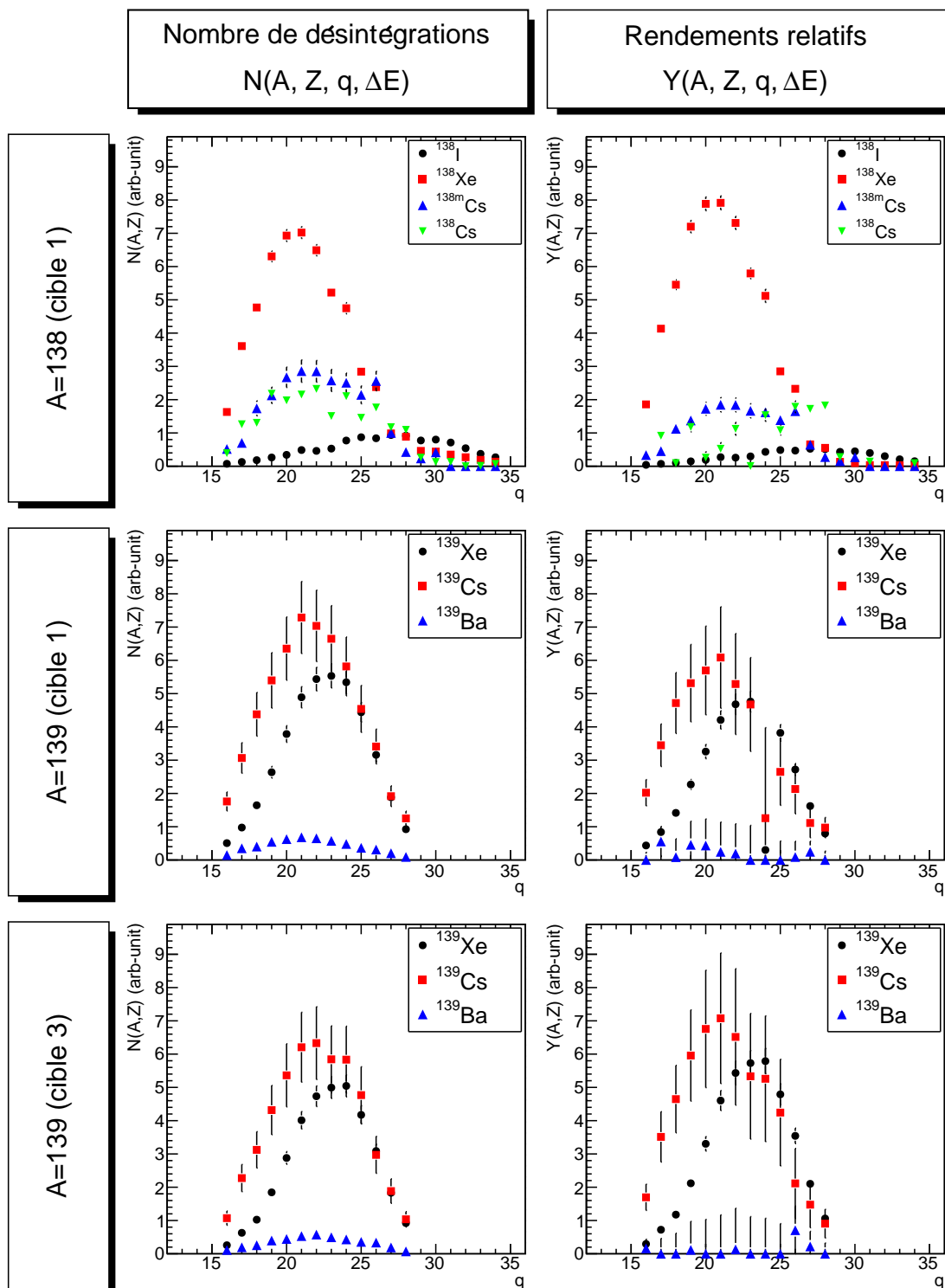
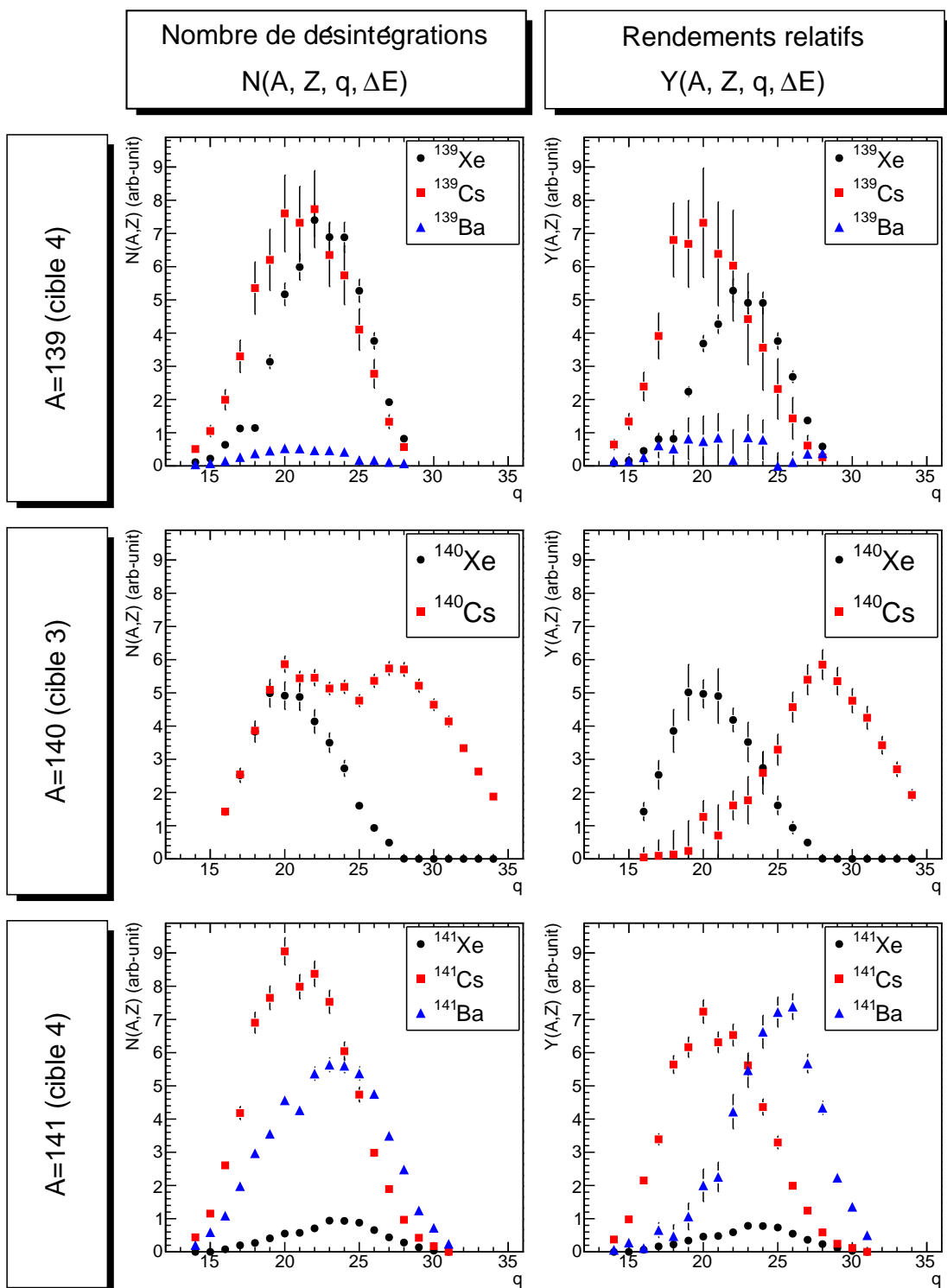
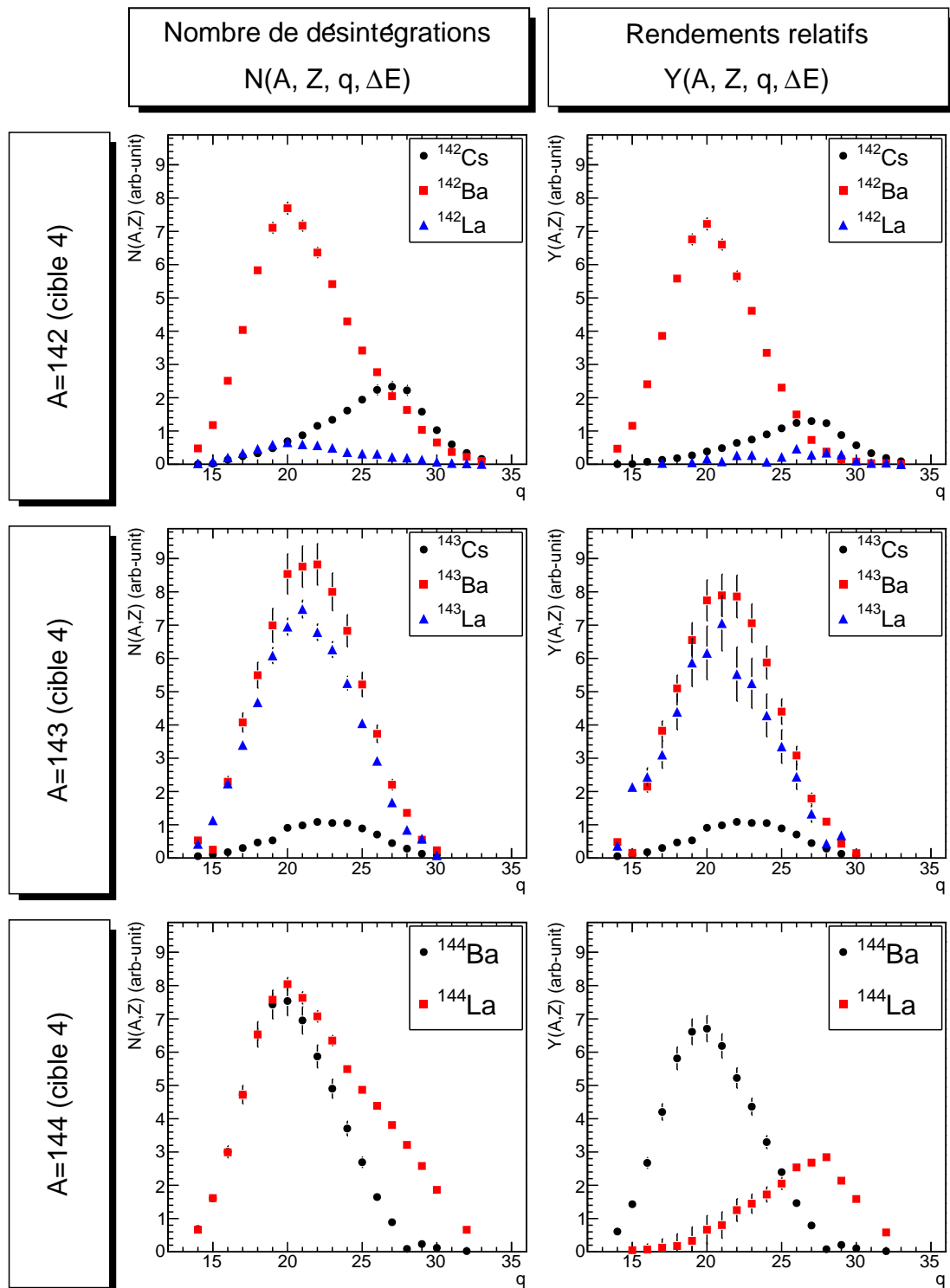


FIGURE G.4. Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 138 et 139 avant et après corrections de Bateman.



Les

distributions en charge ionique des isotopes des masses 139, 140 et 141 avant et après corrections de Bateman.



Les

distributions en charge ionique des isotopes des masses 142, 143 et 144 avant et après corrections de Bateman.

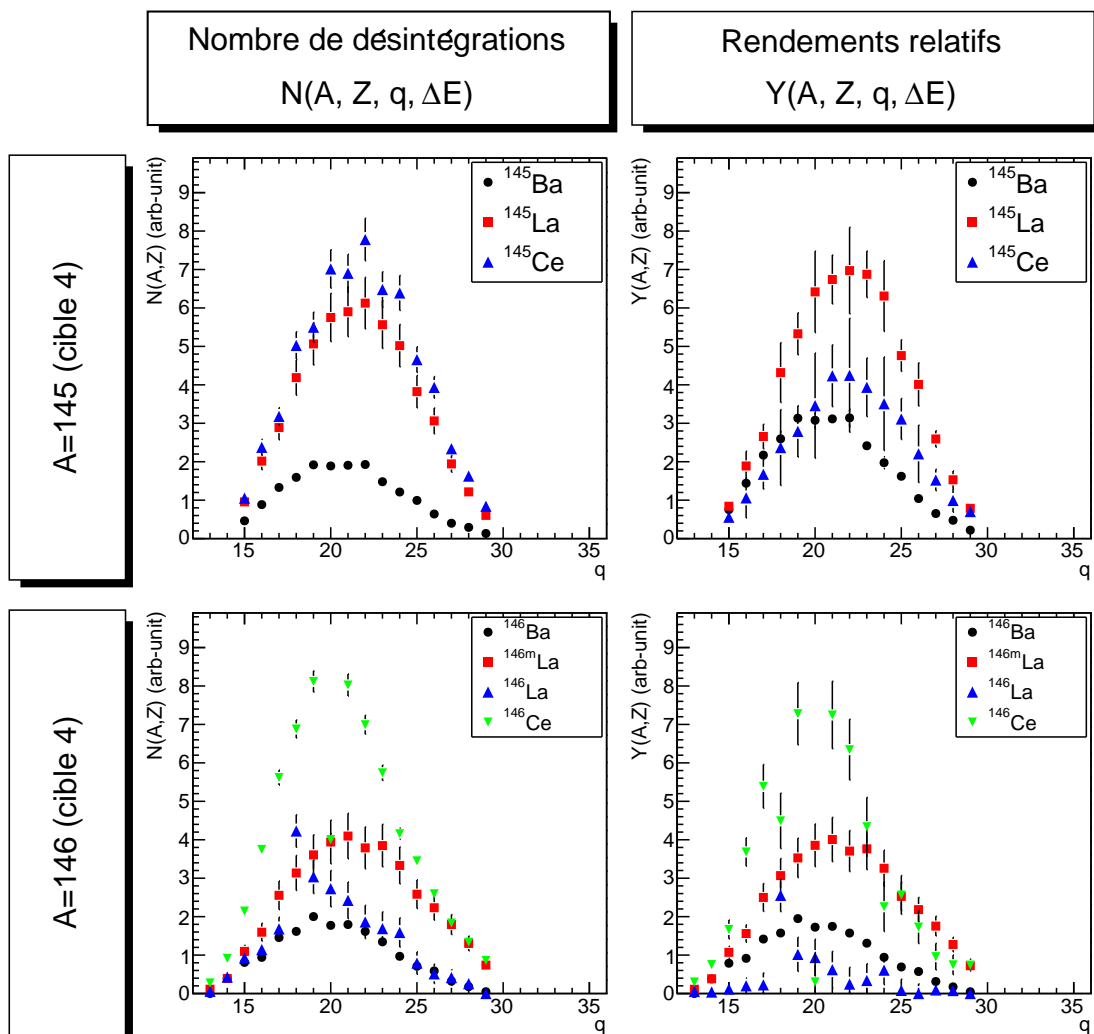


FIGURE G.5. Les distributions en charge ionique des isotopes des masses 145 et 146 avant et après corrections de Bateman.

Les résultats des mesures

H.1 Les rendements en masse de $l^{233}\text{U}$

TABLE H.1: *Rendements absolus en masse de $l^{233}\text{U}$ obtenus dans ce travail.*

Masse	$Y(A) \pm \sigma(Y(A))$ %	Masse	$Y(A) \pm \sigma(Y(A))$ %
85	2.553 ± 0.101	130	2.467 ± 0.097
87	4.533 ± 0.183	131	3.637 ± 0.160
90	7.759 ± 0.435	132	4.999 ± 0.247
95	5.932 ± 0.422	133	6.119 ± 0.209
98	5.160 ± 0.165	134	6.241 ± 0.202
103	1.834 ± 0.154	135	6.409 ± 0.185
105	0.516 ± 0.048	136	6.895 ± 0.161
106	0.264 ± 0.026	137	6.872 ± 0.232
107	0.118 ± 0.009	138	6.211 ± 0.254
108	0.078 ± 0.007	139	5.895 ± 0.170
109	0.058 ± 0.005	140	6.277 ± 0.241
110	0.046 ± 0.004	141	6.754 ± 0.206
111	0.031 ± 0.003	142	6.072 ± 0.195
112	0.022 ± 0.002	143	5.774 ± 0.206
113	0.023 ± 0.002	144	4.281 ± 0.174
120	0.056 ± 0.003	145	3.387 ± 0.119
121	0.081 ± 0.005	146	2.519 ± 0.129
122	0.092 ± 0.006	147	1.824 ± 0.105
123	0.102 ± 0.009	148	1.237 ± 0.056
124	0.129 ± 0.006	149	0.771 ± 0.054
125	0.197 ± 0.012	150	0.498 ± 0.035
126	0.316 ± 0.020	151	0.351 ± 0.022
127	0.570 ± 0.029	152	0.188 ± 0.014
128	1.112 ± 0.055	153	0.075 ± 0.005
129	1.552 ± 0.132	154	0.040 ± 0.004

H.2 Les rendements en masse du ^{241}Pu

TABLE H.2: *Rendements absolus en masse de $l^{241}\text{Pu}$ obtenus dans ce travail.*

Masse	$Y(A) \pm \sigma(Y(A))$ %
125	0.226 ± 0.205
129	1.268 ± 0.611
130	1.896 ± 0.147
131	3.108 ± 0.186
132	4.673 ± 0.245
133	6.545 ± 0.296
134	7.682 ± 0.352
135	6.811 ± 0.309
136	6.015 ± 0.290
137	7.001 ± 0.345
138	6.485 ± 0.357
139	6.049 ± 0.370
140	5.220 ± 0.365
141	5.750 ± 0.465
142	4.027 ± 0.477
143	4.405 ± 0.519
144	3.920 ± 0.540
145	3.672 ± 0.592
146	2.831 ± 0.525
147	2.438 ± 0.528
148	1.785 ± 0.491
149	1.391 ± 0.623
150	1.297 ± 0.662
151	0.660 ± 0.229

H.3 Les rendements isotopiques de l' ^{233}U TABLE H.3: Rendements isotopiques absolus de ^{233}U obtenus dans ce travail (1/2).

Masse	Z	$Y(A, Z) \pm \sigma(Y(A, Z)) \%$
88	35	$0.012711 \pm 1.44\text{E-}03$
	36	$0.038758 \pm 4.09\text{E-}03$
	37	$0.002825 \pm 3.59\text{E-}04$
92	36	$0.008373 \pm 1.01\text{E-}02$
	37	$0.056855 \pm 8.09\text{E-}03$
	38	$0.017646 \pm 7.01\text{E-}03$
132	50	$0.000809 \pm 8.96\text{E-}05$
	51	$0.007904 \pm 1.22\text{E-}03$
	51 ^m	$0.002285 \pm 3.30\text{E-}04$
	52	$0.034826 \pm 6.44\text{E-}03$
133	51	$0.006876 \pm 8.06\text{E-}04$
	52	$0.012479 \pm 1.40\text{E-}03$
	52 ^m	$0.033206 \pm 5.37\text{E-}03$
134	51 ^m	$0.000523 \pm 5.49\text{E-}05$
	52	$0.030296 \pm 3.08\text{E-}03$
	53	$0.007519 \pm 8.97\text{E-}04$
	53 ^m	$0.006373 \pm 6.93\text{E-}04$
135	52	$0.007006 \pm 7.50\text{E-}04$
	53	$0.029111 \pm 3.16\text{E-}03$
	54	$0.007139 \pm 8.33\text{E-}04$
	54 ^m	$0.006719 \pm 6.75\text{E-}04$
136	52	$0.002892 \pm 3.38\text{E-}04$
	53	$0.003848 \pm 5.67\text{E-}04$
	53 ^m	$0.016790 \pm 1.83\text{E-}03$
137	53	$0.009110 \pm 2.08\text{E-}03$
	54	$0.030552 \pm 7.94\text{E-}03$

TABLE H.4: Rendements isotopiques absolus de $l^{233}\text{U}$ obtenus dans ce travail (2/2).

Masse	Z	$Y(A, Z) \pm \sigma(Y(A, Z))$ %
138	53	$0.003029 \pm 7.36\text{E-}04$
	54	$0.031687 \pm 7.28\text{E-}03$
	55	$0.006417 \pm 1.67\text{E-}03$
	55 ^m	$0.008707 \pm 2.22\text{E-}03$
139	54	$0.023473 \pm 1.71\text{E-}03$
	55	$0.033499 \pm 3.70\text{E-}03$
	56	$0.001979 \pm 2.69\text{E-}03$
140	54	$0.011097 \pm 1.76\text{E-}03$
	55	$0.015290 \pm 2.44\text{E-}03$
141	54	$0.003293 \pm 3.94\text{E-}04$
	55	$0.031262 \pm 3.73\text{E-}03$
	56	$0.028390 \pm 4.11\text{E-}03$
142	55	$0.007753 \pm 9.81\text{E-}04$
	56	$0.037952 \pm 4.26\text{E-}03$
	57	$0.001850 \pm 6.54\text{E-}04$
143	55	$0.005107 \pm 7.18\text{E-}04$
	56	$0.036305 \pm 4.93\text{E-}03$
	57	$0.024826 \pm 4.40\text{E-}03$
144	56	$0.023411 \pm 2.88\text{E-}03$
	57	$0.009300 \pm 1.86\text{E-}03$
145	56	$0.006054 \pm 7.81\text{E-}04$
	57	$0.013288 \pm 2.59\text{E-}03$
	58	$0.007442 \pm 2.91\text{E-}03$
146	56	$0.002446 \pm 2.97\text{E-}04$
	57	$0.001082 \pm 7.05\text{E-}04$
	57 ^m	$0.006227 \pm 9.65\text{E-}04$
	58	$0.008167 \pm 1.44\text{E-}03$

Bibliographie

- [1] FRANCES PLEASANTON. Fission-Fragment Energy-Correlation Measurements for the Thermal-Neutron Fission of ^{233}U . Physical Review, **174**(4), p. 1500–1508, 1968. [13](#), [44](#)
- [2] CEA. Mémento sur l'énergie. Direction de la communication, Bâtiment Siège - 91191 Gif-sur-Yvette cedex, 2012. [23](#), [24](#)
- [3] PAUL REUSS. Précis de neutronique. EDP Sciences, 2003. [26](#), [28](#)
- [4] ASN. Lexique et définitions du site internet de l'ASN. Rapport, Autorité de Sûreté Nucléaire, 2013. [26](#), [27](#), [29](#)
- [5] JEAN-CHRISTOPHE BENOIT. Développement d'un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides. Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, 2012. [27](#), [28](#)
- [6] L. MATHIEU, O. SEROT, T. MATERNA, A. BAIL, U. KÖSTER, H. R. FAUST, O. LITAIZE, E. DUPONT, C. JOUANNE, A. LETOURNEAU et S. PANEBIANCO. New neutron long-counter for delayed neutron investigations with the Lohengrin fission fragment separator. Journal of Instrumentation, 2012. [28](#), [29](#)
- [7] E. FORT, V. ZAMMIT-AVERLANT, M. SALVATORES, A. FILIP et J-F LEBRAT. Recommended values of the delayed neutron yield for : U-235 ; U-238 and Pu-239. Progress in Nuclear Energy, **41**(1–4), p. 317–359, 2002. [29](#)
- [8] M. FALLOT, S. CORMON, M. ESTIENNE, A. ALGORA, V. M. BUI, A. CUCOANES, M. ELNIMR, L. GIOT, D. JORDAN, J. MARTINO, A. ONILLON, A. PORTA, G. PRONOST, A. REMOTO, J. L. TAÍN, F. YERMIA et A.-A. ZAKARI-ISSOUFOU. New Anti-neutrino Energy Spectra Predictions from the Summation of Beta Decay Branches of the Fission Products. Physical Review Letters, **109**, p. 202504, 2012. [29](#)
- [9] C. BATAILLE et R. GALLEY. L'aval du cycle nucléaire. Rapport 612, Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques, 1997/1998. [30](#)
- [10] M. BROVCHENKO. Etudes préliminaires de sûreté du réacteur à sels fondus le MSFR. Thèse de doctorat, Université de Grenoble, 2013. [30](#)
- [11] A. NUTTIN. Physique des réacteurs à eau lourde ou légère en cycle thorium : étude par simulation des performances de conversion et de sûreté. Rapport, HDR de l'Université de Grenoble, 2012. [30](#)
- [12] JULIEN BOUISSOU. L'Inde mise sur le thorium comme nouveau combustible nucléaire. Le Monde, 17 Novembre 2007. [30](#)
- [13] GOVERNMENT OF INDIA. Shaping the third stage of Indian nuclear power programme. Rapport, Government of India - Department of Atomic Energy. [30](#)

- [14] GOVERNMENT OF INDIA. site web du département de l'énergie atomique (énergie nucléaire). 30
- [15] HAHN et STRASSMANN. Discovery of Nuclear Fission. American Journal of Physics, 1939. 32
- [16] L. MEITNER et O. R. FRISCH. Disintegration of Uranium by Neutrons : a New Type of Nuclear Reaction. Nature, **3615**, p. 239, 1939. 32, 34
- [17] N. BOHR et J. WHEELER. The mechanism of nuclear fission. Physical Review, **56**(426), 1939. 32, 34
- [18] C. WAGEMANS. The nuclear fission process. CRC Press, 1991. 32, 34, 40, 41
- [19] RUTH LEWIN SIME. Lise Meitner, A life in physics. University of California Press, 1997. 34
- [20] S.M. POLIKANOV, V.A. DRUIN et V.A. KARNAUKHOV. Spontaneous Fission with an Anomalously Short Period. Soviet Phys. JETP, **15**, p. 1016, 1962. 34
- [21] J. R. NIX. Annual Review of Nuclear Science, **22**, p. 65, 1972. 35
- [22] S. G. NILSSON. Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., **1**(8), 1959. 35
- [23] V.M.STRUTINSKY. Shell Effects in Nuclear Masses and Deformation Energies. Nuclear Physics A, **95**, p. 420–442, 1967. 35
- [24] V. STRUTINSKY. Macroscopic and microscopic aspects in nuclear fission. Nuclear Physics A, **502**, p. 67–84, 1989. 35
- [25] J.W. NEGELE et D. VAUTHERIN. Density-Matrix Expansion for an Effective Nuclear Hamiltonien. Physical Review C, **13**(1226), 1972. 36
- [26] J. W. NEGELE, S. E. KOONIN, P. MÖLLER, J. R. NIX et A. J. SIERK. Dynamics of induced fission. Physical Review C, **17**(3), 1978. 36
- [27] P. MÖLLER, DAVID G. MADLAND, A. J. SIERK et A. IWAMOTO. Nuclear fission modes and fragment mass asymmetries in a five-dimensional deformation space. Nature, **409**, p. 785–790, 2001. 36, 37
- [28] J. F. BERGER, M. GIROD et D. GOGNY. Microscopic analysis of collective dynamics in low energy fission. Nuclear Physics A, **428**, p. 23–36, 1984. 38
- [29] J. F. BERGER, M. GIROD et D. GOGNY. Time-dependent quantum collective dynamics applied to nuclear fission. Computer Physics Communications, **63**, p. 365–374, 1991. 38
- [30] J. DECHARGÉ et D. GOGNY. Hartree-Fock-Bogolyubov calculations with the D1 effective interaction on spherical nuclei. Physical Review C, **21**(4), p. 1568–1593, April 1980. 38
- [31] J.-P. DELAROCHE, M. GIROD, J. LIBERT, H. GOUTTE, S. HILAIRE, S. PÉRU, N. PILLET et G.F. BERTSCH. Structure of even-even nuclei using a mapped collective Hamiltonian and the D1S Gogny interaction. Physical Review C, **81**, 2010. 38

- [32] H. FLOCARD, P. QUENTIN, D. VAUTHERIN et M. VENERONI. Self-consistent calculation of the fission barrier of ^{240}Pu . Nuclear Physics A, **231**, p. 176–188, 1974. [38](#)
- [33] H. GOUTTE, P. CASOLI et J. F. BERGER. Mass and kinetic energy distribution of fission fragments using the time dependent generator coordinate method. Nuclear Physics A, **734**, p. 217–220, 2004. [38](#)
- [34] H. GOUTTE, J. F. BERGER, P. CASOLI et D. GOGNY. Microscopic approach of fission dynamics applied to fragment kinetic energy and mass distribution of ^{238}U . Physical Review C, **71**, 2005. [38](#)
- [35] S. PÉRU et H. GOUTTE. Role of deformation on giant resonances within the quasi-particle random-phase approximation and the Gogny force. Physical Review C, **77**, 2008. [38](#)
- [36] B. D. WILKINS, E. P. STEINBERG et R. R. CHASMAN. Scission-point model of nuclear fission based on deformed-shell effects. Physical Review C, **14**, p. 1832–1863, 1976. [38](#), [39](#)
- [37] S. PANEBIANCO, J. L. SIDA, H. GOUTTE, J. F. LEMAÎTRE, N. DUBRAY et S. HILAIRE. Role of deformed shell effects on the mass asymmetry in nuclear fission of mercury isotopes. Physical Review C, **86**, 2012. [39](#)
- [38] U. BROSA, S. GROSSMANN et A. MÜLLER. Nuclear Scission. Physics Report, **197** N°4, p. 167–262, 1990. [40](#)
- [39] U. BROSA. Multimodal fission and neutron evaporation. Physical Review C, **38**, octobre 1988. [40](#)
- [40] U. BROSA, H. H. KNITTER, TIE-SHUAN FAN et SHANG-LIAN BAO. Systematics of fission-channel probabilities. Physical Review C, **59**, février 1999. [40](#)
- [41] P. SIEGLER, F. J. HAMBSCH, S. OBERSTEDT et J. P. THEOBALD. Fission modes in the compound nucleus ^{238}Np . Nuclear Physics A, **594**, p. 45–56, 1995. [40](#)
- [42] DORIN N. POENARU et WALTER GREINER, editors. Experimental Techniques in Nuclear Physics. Walter de Gruyter, 1997. [41](#), [73](#)
- [43] L. R. BUNNEY et E. M. SCADDEN. Heavy mass yields in the slow neutron fission of ^{233}U and $^{235}\text{U}^*$. J. Inorg. Nucl. Chem., **27**, p. 273–279, 1965. [41](#)
- [44] A. G. C. NAIR, A. SRIVASTAVA, A. GOSWAMI et B. K. SRIVASTAVA. Cumulative yields of short-lived ruthenium isotopes in the thermal neutron induced fission of ^{233}U , ^{235}U and ^{239}U . Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **91**, p. 73–79, 1985. [41](#)
- [45] D. R. BIDINOSTI, D. E. IRISH et R. H. TOMLINSON. The thermal neutron fission yields of ^{233}U . Canadian Journal of Chemistry, **39**, p. 628–634, 1961. [41](#)
- [46] MASAKO SHIMA, H. G. THODE et R. H. TOMLINSON. Cumulative yields of stable a long-lived isotopes of ruthenium and palladium in neutron-induced fission. Canadian Journal of Physics, **56**, p. 1340–1352, octobre 1978. [41](#)

- [47] M. BERNAS, P. ARMBRUSTER, J. BENLLIURE, A. BOUDARD, E. CASAREJOS, T. ENQVIST, A. KELIC, R. LEGRAIN, S. LERAY, J. PEREIRA, F. REJMUND, M. V. RICCIARDI, K. H. SCHMIDT, C. STÉPHAN, J. TAIEB, L. TASSAN-GOT et C. VOLANT. Very heavy fragments produced in the spallation reaction $^{238}\text{U}+p$ at 1AGeV. Nuclear Physics A, **765**, p. 197–210, 2006. [42](#)
- [48] E. PELLEREAU. Présentation. In Fission 2013 Caen (en cours de publication), 28-31 mai 2013. [42](#)
- [49] H. W. SCHMITT, J. H. NEILER et F. J. WALTER. Fragment Energy Correlation Measurements for ^{252}Cf Spontaneous Fission and ^{235}U Thermal-Neutron Fission. Physical Review, **141**(3), p. 1146–1160, Janvier 1966. [43](#)
- [50] S.L. WHETSTONE. Coincident time-of-flight measurements of the velocities of ^{252}Cf fission fragments. Physical Review, 1963. [43](#)
- [51] F. J. WALTER, H. W. SCHMITT et J. H. NEILER. Fragment mass distributions for thermal-neutron induced fission of ^{239}Pu and ^{241}Pu . Physical Review, **133**(6B), p. 1500–1502, 1964. [43](#)
- [52] H. W. SCHMITT, J.H. NEILER, F. J. WALTER et A. CHETHAM-STRODE. Mass distribution and kinetics of ^{235}U thermal-neutron-induced three-particle fission. Physical Review Letters, **9**(10), 1962. [43](#)
- [53] M. ASGHAR, F. CAÏTUCOLI, B. LEROUX, P. PERRIN et G. BARREAU. Fission-fragment energy correlation measurements for (n_{th},f) of ^{232}U and ^{233}U . Nuclear Physics A, **368**, p. 328–336, 1981. [43](#)
- [54] HIROSHI BABA, TADASHI SAITO, NARUTO TAKAHASHI, AKIHIKO YOKOYAMA, TAKAHIRO MIYAUCHI, SIGEHISA MORI, DAISAKU YANO, TERUYUKI HAKODA, KOICHI TAKAMIYA, KIYOSHI NAKANISHI et YOSHIHIRO NAKAGOME. Role of Effective Distance in the Fission Mechanism Study by the Double-energy Measurement for Uranium Isotopes. Journal of Nuclear Science and Technology, **34**(9), p. 871–881, 1997. [43](#), [95](#), [97](#), [98](#)
- [55] E. ALLAERT, C. WAGEMANS, G. WEGENER-PENNING, A. J. DERUYTTER et R. BARTHÉLÉMY. Energy and mass distribution for $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$, $^{242}\text{Pu}(s.f.)$ and $^{244}\text{Pu}(s.f.)$ fragments. Nuclear Physics A, **380**, p. 61–71, 1982. [43](#)
- [56] F. CAÏTUCOLI, C. WAGEMANS, P. PERRIN, E. ALLAERT et P. DHONDT. Mass and energy characteristics of the $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ fragments. Nuclear Physics A, **369**, p. 14–24, 1981. [43](#)
- [57] J. N. NEILER, F. J. WALTER et H. W. SCHMITT. Fission-Fragment Energy-Correlation Measurements for the Thermal-Neutron Fission of ^{239}Pu and ^{241}Pu . Physical Review, **149**, p. 894–905, Sep 1966. [43](#)
- [58] H. THIENS, E. JACOBS, P. D'HONDT, A. DE CLERCQ, M. PIESSENS et D. DE FRENNE. Fragment mass and kinetic energy distributions for $^{242}\text{Pu}(sf)$, $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$, and $^{242}\text{Pu}(\gamma,f)$. Physical Review C, **29**, p. 498–507, Feb 1984. [43](#)

- [59] H. W. SCHMITT et FRANCES PLEASANTON. Evaluation of semiconductor detectors for fission fragment energy measurements. Nuclear Instruments and Methods, **40**, p. 204–208, 1966. [43](#)
- [60] GLENN F. KNOLL. Radiation Detection and Measurement. John Wiley & Sons, Inc., third edition edition, 2000. [45](#), [74](#), [78](#), [99](#)
- [61] J. GALY, B. FOGELBERG, F. STORRER et H. MACH. Yields of products from fast neutron-induced fission of ^{233}U measured by means of an Isotope Separator On-Line (ISOL) system. The European Physical Journal A, **8**, p. 331–354, 2000. [45](#), [133](#)
- [62] A. BAIL. Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission Lourds sur le spectromètre de masse Lohengrin. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux I, 2009. [45](#), [63](#), [93](#), [99](#), [107](#), [133](#)
- [63] A. BAIL, O. SEROT, L. MATHIEU, O. LITAIZE, T. MATERNA, U. KÖSTER, H. R. FAUST, A. LETOURNEAU et S. PANEBIANCO. Isotopic yield measurement in the heavy mass region for ^{239}Pu thermal neutron induced fission. Physical Review C, **84**, p. 034605, 2011. [45](#), [63](#), [133](#), [186](#)
- [64] M.A. KELLETT, O. BERSILLON et R.W. MILLS. The JEFF-3.1/-3.1.1 radioactive decay data and fission yields sub-libraries. Rapport, NEA, 2009. [47](#)
- [65] M.B. CHADWICK et ET AL. ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology : Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. Nuclear Data Sheets, **112**, p. 2887–2996, 2011. [47](#)
- [66] M.B. CHADWICK et ET AL. ENDF/B-VII.0 : Next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology. Nuclear Data Sheets, **107**, p. 2931–3060, 2006. [47](#)
- [67] T.R. ENGLAND et B.F. RIDER. Evaluation and Compilation of Fission Product Yields 1993. Rapport, Los Alamos National Laboratory, 1994. [47](#)
- [68] JUNC-ICHI KATAKURA. JENDL FP Decay Data File 2011 and Fission Yields Data File 2011. Rapport, Japan Atomic Energy Agency, 2012. [48](#), [51](#)
- [69] ARTHUR C. WAHL. Nuclear Charge Distribution and delayed-neutron yields for thermal-neutron-induced fission of U235, U233, and Pu239 and for spontaneous fission of Cf252. Atomic Data and Nuclear Data Tables, **39**, p. 1–156, 1988. [48](#)
- [70] K. H. SCHMIDT et B. JURADO. General model description of fission observables. Rapport, EFNUDAT, CENBG, CNRS/IN2P3, Chemin du Solarium B.P. 120, 33175 Gradignan, France, 2010. [50](#), [98](#)
- [71] P. ARMBRUSTER, M. ASGHAR, J. P. BOCQUET, R. DECKER, H. EWALD, J. GREIF, E. MOLL, B. PFEIFFER, H. SCHRADER, F. SCHUSSLER, G. SIEGERT et H. WOLLNIK. The recoil separator Lohengrin : performance and special features for experiments. Nuclear Instruments and Methods, **139**, p. 213–222, 1976. [63](#), [69](#)
- [72] F. GÖNNENWEIN. 35 years of fission research at the ILL. In Seminar on fission, 2010. [63](#)

- [73] J. P. BOCQUET, R. BRISSOT, H. R. FAUST, M. FOWLER, WILHELMY et M. ASGHAR, M. AND DJEBARA. Characteristics of Mass and Nuclear Charge Distribution of $^{229}\text{Th}(n_{\text{th}},f)$. Implications for Fission Dynamics. *Zeitschrift für Physik A.*, **335**, p. 41–48, 1990. [63](#), [76](#)
- [74] U. QUADE, K. RUDOLPH, S. SKORKA, P. ARMBRUSTER, H. G. CLERC, W. LANG, M. MUTTERER, C. SCHMITT, J. P. THEOBALD, F. GÖNNENWEIN, J. PANNICKE, H. SCHRADER, G. SIEGERT et D. ENGELHARDT. Nuclide yields of light fission products from thermal-neutron induced fission of ^{233}U at different kinetic energy. *Nuclear Physics A*, **487**, p. 1–36, 1988. [63](#), [76](#), [77](#)
- [75] H. G. CLERC, W. LANG, M. MUTTERER, C. SCHMITT, J. P. THEOBALD, U. QUADE, K. RUDOLPH, P. ARMBRUSTER, F. GÖNNENWEIN, H. SCHRADER et D. ENGELHARDT. Cold Fragmentation in Thermal-Neutron-Induced Fission of ^{233}U and ^{235}U . *Nuclear Physics A*, **452**, p. 277–295, 1986. [63](#)
- [76] H. G. CLERC, K. H. SCHMIDT, H. WOHLFARTH, W. LANG, H. SCHRADER, PFERDEKÄMPER, R. JUNGMANN, M. ASGHAR, J. P. BOCQUET et G. SIEGERT. Nuclear charge distribution of mass-separated isobars from thermal-neutron-induced fission of ^{235}U . *Nuclear Physics A*, **247**, p. 74–90, 1975. [63](#)
- [77] G. SIEGERT, H. WOLLNIK, R. GREIF, J. AND DECKER, G. FIEDLER et B. PFEIFFER. Nuclear charge distribution of fission products from $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ of the masses 79 to 100. *Physical Review C*, **14**(5), p. 1864–1873, 1976. [63](#)
- [78] H. WOHLFARTH, W. LANG, H. G. CLERC, H. SCHRADER, K. H. SCHMIDT et H. DANN. Mass distribution of $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ fission products as a function of their kinetic energy. *Physics Letters*, **63B**(3), p. 275–278, 1976. [63](#)
- [79] W. LANG, H. G. CLERC, H. WOHLFARTH, H. SCHRADER et K. H. SCHMIDT. Nuclear charge and mass yields for $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ as a function of the kinetic energy of the fission products. *Nuclear Physics A*, **345**, p. 34–71, 1980. [63](#)
- [80] J. L. SIDA, P. ARMBRUSTER, M. BERNAS, J. P. BOCQUET, R. BRISSOT et H. R. FAUST. Mass, charge, and energy distributions in very asymmetric thermal fission of ^{235}U . *Nuclear Physics A*, **502**, p. 233–242, 1989. [63](#), [76](#)
- [81] G. MARTINEZ, G. BARREAU, A. SICRE, T.P. DOAN, P. AUDOUARD, B. LEROUX, W. ARAFA, R. BRISSOT, J. P. BOCQUET, H. R. FAUST, P. KOCZON, M. MUTTERER, F. GÖNNENWEIN, M. ASGHAR, U. QUADE, K. RUDOLPH, D. ENGELHARDT et E. PIASECKI. Mass and nuclear charge yields for $^{237}\text{Np}(2n_{\text{th}},f)$ at different fission fragment kinetic energies. *Nuclear Physics A*, **515**, p. 433–465, 1990. [63](#)
- [82] I. TSEKHANOVICH, H. O. DENSCHLAG, M. DAVI, Z. BÜYÜKMUMCU, F. GÖNNENWEIN, S. OBERSTEDT et H. R. FAUST. Mass and charge distributions in the very asymmetric mass region of the neutron induced fission of ^{238}Np . *Nuclear Physics A*, p. 633–658, 2001. [63](#), [76](#)
- [83] C. SCHMITT, A. GUESSOUS, J. P. BOCQUET, H. G. CLERC, R. BRISSOT, D. ENGELHARDT, H. R. FAUST, F. GÖNNENWEIN, M. MUTTERER, H. NIFENECKER, J. PANNICKE, CH. RISTORI et J. P. THEOBALD. Fission yields at different fission-Product

- kinetic energies for thermal neutron induced fission of ^{239}Pu . Nuclear Physics A, p. 21–60, 1984. [63](#)
- [84] I. TSEKHANOVICH, H. O. DENSCHLAG, M. DAVI, Z. BÜYÜKMUMCU, M. WÖSTHEINRICH, F. GÖNNENWEIN, S. OBERSTEDT et H. R. FAUST. Mass and charge distributions in the very asymmetric mass region of the neutron induced fission of odd-Z nucleus ^{242m}Am . Nuclear Physics A, **658**, p. 217–239, 1999. [63](#), [76](#)
- [85] D. ROCHMAN. Mesure et analyse de la distribution en masse et charge des produits de fission de ^{245}Cm (n_{th}, f) grâce au spectromètre Lohengrin (ILL-Grenoble). Thèse de doctorat, Université de Strasbourg,, 2001. [63](#), [76](#)
- [86] D. ROCHMAN, H. R. FAUST, I. TSEKHANOVICH, F. GÖNNENWEIN, F. STORRER, S. OBERSTEDT et V. SOKOLOV. Isotopic yields from the reaction $^{245}\text{Cm}(n_{\text{th}}, f)$ at the Lohengrin mass spectrometer. Nuclear Physics A, **710**, p. 3–28, 2002. [63](#), [76](#)
- [87] D. ROCHMAN, I. TSEKHANOVICH, F. GÖNNENWEIN, V. SOKOLOV, F. STORRER, G. SIMPSON et O. SEROT. Super-asymmetric fission in the $^{245}\text{Cm}(n_{\text{th}}, f)$ reaction at the Lohengrin fission-fragment mass separator. Nuclear Physics A, **735**, p. 3–20, 2004. [63](#)
- [88] M. DJEBARA, M. ASGHAR, J. P. BOCQUET, R. BRISSOT, J. CRANÇON, CH. RISTORI, E. AKER, D. ENGELHARDT, J. E. GINDLER, B. D. WILKINS, U. QUADE et K. RUDOLPH. Mass and nuclear charge yields for $^{249}\text{Cf}(n_{\text{th}}, f)$ at different fission-product kinetic energies. Nuclear Physics A, **496**, p. 346–366, 1989. [63](#)
- [89] R. HENTZSCHEL, H. R. FAUST, H. O. DENSCHLAG, B. D. WILKINS et J. E. GINDLER. Mass, charge, and energy distributions in very asymmetric fission of ^{249}Cf induced by thermal neutrons. Nuclear Physics A, **571**, p. 427–446, 1994. [63](#), [76](#)
- [90] E. BIRGERSSON, S. OBERSTEDT, A. OBERSTEDT, F. J. HAMBSCH, D. ROCHMAN, I. TSEKHANOVICH et S. RAMAN. Light fission-fragment mass distribution from the reaction $^{251}\text{Cf}(n_{\text{th}}, f)$. Nuclear Physics A, **791**, p. 1–23, 2007. [63](#)
- [91] CH. AMOUROUX, S. PANEBIANCO, A. BIDAUD, N. CAPELLAN, S. CHABOD, H. R. FAUST, G. KESSEDIAN, U. KÖSTER, A. LETOURNEAU, F. MARTIN, T. MATERNA, C. SAGE et O. SEROT. Measurement of mass yields from the $^{241}\text{Am}(2n_{\text{th}}, f)$ reaction at the Lohengrin Spectrometer. EPJ Web of Conferences, **42**, p. 01006, 2013. [63](#)
- [92] SITE INTERNET DE L'ILL. www.ill.eu. [64](#), [65](#)
- [93] SITE INTERNET DE L'ASN. www.asn.fr. [64](#)
- [94] Rapport transparence et sécurité nucléaire 2010 Réacteur à Haut Flux. Rapport, Institut Laue-Langevin, 2010. [64](#)
- [95] SITE INTERNET DE L'ILL. www.ill.eu/?id=802. [66](#), [70](#)
- [96] U. KÖSTER, H. R. FAUST, T. MATERNA et L. MATHIEU. Experience with in-pile fission targets at Lohengrin. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, **613**, p. 363–370, 2010. [66](#), [71](#)

- [97] G. FIONI, H. R. FAUST, M. GROSS, M. HESSE, P. ARMBRUSTER, F. GÖNNENWEIN et G. MÜNZENBERG. Reduction of energy dispersion on a parabola mass spectrometer. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, **332**, p. 175–180, 1993. 67
- [98] H. R. FAUST, P. GELTENBORT, F. GÖNNENWEIN et A. OED. Calibration and adjustment procedures for Lohengrin. Rapport scientifique interne 81FA45S, 1981. 67
- [99] SITE INTERNET DE L'ILL. www.ill.eu/?id=11710. 70
- [100] REFFAAT EL-HAJJE. A simultaneous measurement of the angular distribution, mass and kinetic energy of ^{235}U and ^{232}Th fission fragments. Thèse de doctorat, University of New South Wales, 2000. 74
- [101] RONALD BIEBER. Investigation of the (n,p) and (n, α) reactions on ^{36}Cl and ^{37}Ar . Thèse de doctorat, Universiteit Gent, 1998. 74
- [102] FAST COMTEC GMBH. MPA-3 Multiparameter Data Acquisition System User Manual. D-82041 Oberhaching, Germany. 75
- [103] W.R. LEO. Techniques for Nuclear and Particles Physics experiments. Ed. Springer-Verlog, 1987. 76
- [104] H. G. CLERC, K. H. SCHMIDT, H. WOHLFARTH, W. LANG, M. ASGHAR, J. P. BOCQUET et G. SIEGERT. Separation of isobaric elements by the energy-loss dispersion in carbon absorber foils. Nuclear Instruments and Methods, **124**, p. 607–608, 1975. 76
- [105] U. QUADE et K. RUDOLPH. A High Resolution ionisation chamber tested with fission products of ^{235}U . Nuclear Instruments and Methods, **164**, p. 435–436, 1979. 76
- [106] ANDREAS FITZLER. Tv User-Manual. Institute for Nuclear Physics, University of Cologne, 2000. 80, 139
- [107] SITE INTERNET DE SRIM. www.srim.org. 82, 92
- [108] J. F. ZIEGLER, M. D. ZIEGLER et J. P. BIERSACK. SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010). Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **268**, p. 1818–1823, 2010. 82
- [109] BRUNO ESCOUBÈS. Probabilités et statistiques à l'usage des physiciens. ellipses, 1998. 85
- [110] H. R. FAUST et ZONGYU BAO. Higher moments in the kinetic energy distribution of fission products. Nuclear Physics A, **736**, p. 55–76, 2004. 98
- [111] H. WOHLFARTH, W. LANG, H. DANN, H. G. CLERC, K. H. SCHMIDT et H. SCHRAEDER. The Ionic Charge Distribution of Fission Products and the Influence of Internal Conversion on Highly Preionized Heavy Ions. Zeitschrift für Physik A, **287**, p. 153–163, 1978. 99
- [112] A. D. BELYAEV, Z. S. BIRKBOVA, V. L. GAISHAN, T. L. GURVICH, V. I. KOGAN, V. P. PIKUL et A. M. USMANDIYAROV. Some peculiarities in ionic charge distributions of ^{241}Pu (n_{th} ,f)-fission products. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **43**, p. 5–8, 1989. 99

- [113] T. MATERNA, A. BAIL, L. MATHIEU, U. KÖSTER, H. R. FAUST, O. SEROT et F. MICHEL-SENDIS. Indirect Identification of Nanosecond Isomers using the Fission Fragment Separator Lohengrin. In AIP Conf. Proc. 1175, p. 367–370, 2009. [99](#)
- [114] V. S. NIKOLAEV et I. S. DMITRIEV. On the equilibrium charge distribution in heavy element ion beams. Physics Letters, **28A**(4), p. 277–278, 1968. [103](#), [106](#)
- [115] H.-D. BETZ, G. HORTIG, E. LEISCHNER, CH. SCHMELZER, B. STADLER et J. WEIHR-RAUCH. The average charge of stripped heavy ions. Physics Letters, **22**(5), p. 643 – 644, 1966. [103](#)
- [116] KUNIHIRO SHIMA, TOYOYUKI ISHIHARA et TAKASHI MIKUMO. Empirical formula for the average equilibrium charge-state of heavy ions behind various foils. Nuclear Instruments and Methods, **200**, p. 605–608, 1982. [103](#)
- [117] K. SCANNAPIECO, G. KESSEDJIAN et A. CHEBBOUBI. Stage de Master 1. Rapport, LPSC Grenoble, 2013. [105](#)
- [118] G. KESSEDJIAN et ET AL. NEEDS/JEFF. 25-29 Nov.2013. [105](#), [106](#)
- [119] HANS D. BETZ. Applied Atomic collision physics, Volume 4. Academic Press.Inc., 1983. [106](#)
- [120] R. BRISSOT, J. CRANÇON, CH. RISTORI, J. P. BOCQUET et A. MOUSSA. Distributions isotopiques des gaz rares dans la fission par neutrons thermiques de ^{235}U et ^{233}U . Nuclear Physics A, **255**, p. 461–471, 1975. [186](#)
- [121] K. NISHIO, M. NAKASHIMA, I. KIMURA et Y. NAKAGOME. Multi-parametric measurement of prompt neutrons and fission fragments for $^{233}\text{U}(n_{th},f)$. Journal of Nuclear Science and Technology, **35**(9), p. 631–642, 1998. [186](#)
- [122] WORKING GROUP 1 OF THE JOINT COMMITTEE FOR GUIDES IN METROLOGY (JCGM/WG1). Évaluation des données de mesure – Guide pour l’expression de l’incertitude de mesure. JCGM 2008, 2008. [200](#)