

UNIVERSITE PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE : E517 « Particules Noyaux et Cosmos »
Service de Physique Nucléaire du CEA/Irfu

Physique
Physique Nucléaire

THÈSE DE DOCTORAT

soutenue le 25/09/2014

par

Charlotte AMOUROUX

Mesure des rendements de fission de l'Am-242 auprès du spectromètre Lohengrin (réacteur ILL) & Amélioration et validation du code semi- empirique GEF

Directeur de thèse :

Olivier SEROT

Directeur de Thèse CEA-Cadarache

Composition du jury :

Président du jury :
Rapporteurs :

Pierre DESESQUELLES
Xavier LEDOUX
Jonathan WILSON

Examineur Université Paris XI
Rapporteur CEA DAM
Rapporteur CNRS IPN Orsay

Examineurs :

Herbert FAUST
Beatriz JURADO
Thomas MATERNA
Stefano PANEBIANCO

Examineur Institut Laue Langevin
Examineur CNRS CENBG
Co-encadrant CEA Saclay
Co-encadrant CEA Saclay

Membres invités :

“Everyone you will ever meet
knows something you don’t”
Bill Nye

A Gilbert, Yvette et Jean-Pierre

J'aimerais en commençant ces remerciements être sûr de n'oublier personne mais ceci est impossible, alors je m'excuse par avance auprès des gens que j'ai oubliés. Je voudrais commencer par remercier mon jury qui a "dû" lire le document qui suit et qui chacun à leur manière m'ont fait devenir le 25 septembre 2014, Docteur.

3 ans c'est long (surtout durant l'écriture !) : combien de stagiaires ai-je vu défiler, je les remercie tous. 3 ans c'est aussi beaucoup de co-bureau. Christos, merci pour avoir introduit la Grèce dans ce bureau. Eric, merci de m'avoir fait entendre tous les jours mon accent du sud ouest.

Merci aussi à Bart et Fransceca, deux posts docs ultra gentils. Je n'oublie pas notre photo du 12/12/12 à 12:12. Je remercie aussi tous les thésards du SPhN.

Valérie, tu as été présente pour moi pendant 3 ans et je n'oublierais jamais tes précieux conseils.

Et au milieu de ses jeunots, il y avait vous les garçons. Oui Alain et Thomas, c'est de vous dont je parle. Merci d'avoir été là pendant 3 ans et demi. Vous me connaissez je serais capable d'écrire 200 pages sur vous mais je vais faire court (on ne rit pas !). Alain tu es le calme du labo, reste-le ! Thomas, ne t'inquiète pas un jour tu comprendras le système éducatif français et les tourneurs-fraiseurs. En attendant continue à penser vite et à être toi car tu es loin d'être pipot.

Olivier, toi qui étais au soleil pendant que l'on mourrait de froid dans le Nord, merci d'avoir été mon directeur et d'avoir du subir les premiers jets de ce manuscrit.

Puisque travailler seule sur Lohengrin c'est impossible, je remercie tous les shifteurs LPSC et ILL qui ont savouré avec moi ses petits caprices. Florence, tu as été mon mentor, merci.

Merci aux membres du service qui ont su répondre présent pour moi malgré leur discrétion.

Si on m'avait dit, en commençant mon stage de 3A, que je rencontrerais un ami grand nordiste comme toi Jean François, je ne l'aurais pas cru. J'ose le dire : j'ai comme ami un théoricien et j'en suis fière. L'année prochaine c'est ton tour !

Partir c'est aussi laisser les gens qui ont représentés une partie de votre vie pendant 3 ans. Emmeric et Maria, je vous les confie.

Karl-Heinz, je te dois tant que je ne sais pas comment te remercier. Tu m'as appris tant sur la fission et l'amour de mon métier. Travailler avec toi fut un réel plaisir et un tel épanouissement intellectuel. J'espère que tu continueras encore longtemps de transmettre ton savoir si précieux.

On ne se lève pas un jour pour devenir docteur. Il y a des dizaines d'années avant et des rencontres. Merci Elsa de ne pas avoir oublié tes bébés Phelma. Merci aux phénix qui ont été là pour ma soutenance en présence ou en pensée. Merci Cathy et Xavier pour ses trajets en bus en si bonne compagnie.

Merci à mes fournisseurs de chocolats Larnicol et de caramels, vos qualités humaines sont inestimables, vous aurez toujours une place spéciale dans mon cœur.

Le jour de la soutenance, il y a toujours dans l'assemblée des gens qui ne comprennent pas ce que vous dites, et qui espèrent que vous arrêterez un jour d'utiliser autant de mots barbares qu'ils commencent malgré tout à comprendre (n'est ce pas Sarah ?) et à qui vous devez tant : votre famille.

Merci à elle de m'avoir appris la valeur du travail et les sacrifices que l'on doit faire pour pouvoir voir ses enfants "décrocher la queue du mickey".

Table des matières

1	Contexte de cette étude	6
1.1	Rappels sur le processus de fission	6
1.1.1	Les étapes du processus	6
1.1.2	Les caractéristiques de la fission	7
1.1.2.1	Sections efficaces	8
1.1.2.2	Bilan en énergie	10
1.1.2.3	Energie coulombienne ou énergie cinétique	10
1.1.2.4	Energie de déformation, énergie d'excitation et particule émise	12
1.1.2.5	Partage de l'énergie	13
1.1.2.6	Rendement de fission	15
1.1.3	Les différents modèles	21
1.1.3.1	Modèle adiabatique sans structure	21
1.1.3.2	Modèle adiabatique avec structure	23
1.1.3.3	Modèle incluant la structure et la dynamique	23
1.2	Rendements de fission : mesure et utilisation	25
1.2.1	Les méthodes de mesure des rendements	25
1.2.1.1	Mesure par radiochimie	25
1.2.1.2	Mesure par méthode E-E et V-V	25
1.2.1.3	Mesure avec spectromètre de masse	25
1.2.2	De l'utilité des rendements de fission	26
1.3	Américium 242	27
1.3.1	Informations générales	27
1.3.2	Etat de l'art des rendements de l' ^{242m}Am	29
2	Le code de fission GEF	32
2.1	Principe	32
2.1.1	Asymétrie en masse	33
2.1.2	Conversion de Z en A	35
2.1.3	Répartition de l'énergie	36
2.1.3.1	Energie d'excitation et énergie cinétique	36
2.1.3.2	Répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments	37
2.1.4	Largeurs	39

2.1.5	Effet pair impair proton	40
2.1.6	Evaporation des neutrons et effet pair-impair neutron	42
2.1.7	Moment angulaire	43
2.2	Validation du code GEF	46
2.2.1	Les données expérimentales utilisées pour la validation	47
2.2.1.1	Les rendements de fission	47
2.2.1.2	Les énergies cinétiques	50
2.2.2	Les rendements en masse	51
2.2.2.1	En thermique	51
2.2.2.2	Influence de l'énergie d'excitation jusqu'à $E_n = 6 \text{ MeV}$	53
2.2.3	Les énergies cinétiques	55
2.2.4	Le moment angulaire	63
2.2.5	Applications industrielles	69
2.2.5.1	Puissance résiduelle	69
2.2.5.2	Neutrons retardés	72
2.3	Extension du code GEF	78
2.3.1	La fission de chances multiples	80
2.3.2	Γ_n/Γ_f proche de Bf	84
3	Mesure des rendements de ^{242}Am	93
3.1	Réacteur de l'ILL et le spectromètre Lohengrin	93
3.1.1	Réacteur de l'ILL	93
3.1.2	Spectromètre Lohengrin	94
3.2	Chambre d'ionisation	98
3.3	Détecteurs germaniums	100
3.4	Temps de mesure	104
4	Analyse des rendements en masse	105
4.1	Stratégie d'analyse des rendements en masse	105
4.1.1	Calcul des rendements en masse	105
4.1.2	Hypothèse de non corrélation	107
4.1.3	Stratégie de la prise de données	109
4.1.3.1	Les paramètres du spectromètre	110
4.1.3.2	La mesure du burn up	111
4.1.3.3	La mesure répétitive de 3 masses	112
4.1.3.4	Les masses mesurées	112
4.1.3.5	La mesure des particules α	112
4.1.3.6	Les problèmes rencontrés	112
4.1.3.7	Synthèse	112
4.2	Étude du flux de neutrons	112
4.3	Distribution en énergie cinétique	119
4.3.1	GEF	119

4.3.2	Expériences précédentes	119
4.3.3	Fonction d'ajustement et aire de la distribution en énergie cinétique	120
4.3.4	Quelles grandeurs pour décrire la distribution en énergie cinétique?	124
4.3.5	Énergie cinétique en fonction de la masse	128
4.4	Distribution en charge ionique	131
4.5	Évolution de la cible	136
5	Analyse des rendements isotopiques	143
5.1	Stratégie de la prise de données	143
5.2	Stratégie d'analyse	146
5.3	Automatisation du traitement des spectres gamma	147
5.3.1	Seuil des pics	148
5.3.2	Identification des pics	150
5.3.3	Recherche de nouvelles raies	151
5.3.4	Détermination du domaine du bruit de fond	152
5.4	Calibration en énergie et en efficacité	155
5.4.1	Calibration en énergie	155
5.4.2	Calibration en efficacité	157
5.5	Problèmes liés à la spectrométrie gamma à Lohengrin	162
5.5.1	L'incohérence de certaines données de décroissance	162
5.5.2	La présence de contaminants	164
5.6	Raies utilisées dans l'analyse	168
5.7	Traitement des incertitudes	169
6	Résultats et Discussion	173
6.1	Énergie cinétique	173
6.2	Rendements en masse	174
6.2.1	Comparaison aux données expérimentales	175
6.2.2	Comparaison aux bases évaluées et à GEF	178
6.2.3	Une systématique propre à l'instrument sur le pic.	180
6.3	Rendements isotopiques	181
6.3.1	$Y(Z A)$	181
6.3.2	$Y(A Z)$	182
6.3.3	Normalisation	183
6.3.4	Comparaison aux bases de données	183
6.3.5	Noyaux aux rendements incohérents.	186
6.3.5.1	^{136}Te et $^{136\text{gs}}\text{I}$	186
6.3.5.2	^{140}Cs	187
6.3.5.3	^{142}Cs	188
6.3.6	Rapports isomériques	188

7	Moment angulaire du noyau composé et rendements de fission	191
7.1	Etat de l'art	191
7.1.1	Rendements en masse	191
7.1.2	Rendements isomériques	194
7.2	Expériences à Lohengrin avec l' ^{242}Am	196
7.2.1	Rendements en masse	198
7.2.2	Rapports isomériques	201

Introduction

75% de l'énergie électrique française est d'origine nucléaire. Cette proportion nous garantit notre indépendance énergétique et est souvent source d'exemple pour de nombreux pays. De plus, la France constitue le premier exportateur mondial d'équipements et de services dans le secteur nucléaire. Cependant, cela requiert des réacteurs nucléaires d'une très grande fiabilité et possédant un grand taux de disponibilité.

Face à des ressources en ^{235}U (seul noyau fissile naturel) limitées et à un nombre croissant de réacteurs, les industriels s'orientent vers les combustibles multirecyclés type MOx (combustible composé de 7% de plutonium environ et d'uranium appauvri) et à haut burn-up (énergie fournie par le combustible). Ceci se traduit par une augmentation des concentrations en actinides mineurs. De plus il existe une volonté de réduction de la radiotoxicité des déchets nucléaires à la source ou dans des incinérateurs dédiés.

Dans ce contexte, la mesure précise de la production des fragments de fission présente un grand intérêt pour réduire les incertitudes liées à la prédiction des noyaux qui influent sur le pilotage et la sûreté du réacteur (poisons neutroniques, émetteurs de neutrons retardés, éléments radiotoxiques...). Alors que l'on peut considérer que les rendements de fission sont bien caractérisés dans le domaine thermique pour les actinides majeurs (^{235}U , ^{239}Pu), les mesures concernant les autres domaines en énergie et les actinides mineurs comme l' ^{242}Am sont beaucoup plus limitées. Or ce noyau intervient dans la transmutation de l' ^{241}Am , principal contributeur à la radiotoxicité des déchets entre 200 et 1000 ans, et participe à la production d'énergie dans les combustibles MOx.

La mesure d'un seul noyau ne peut toutefois pas répondre à cette grande problématique, il est donc indispensable de comparer les données mesurées avec les bases d'évaluation utilisées pour les calculs réacteurs et de valider les modèles semi-empiriques, comme GEF [SCH14], utilisé pour extrapoler sur d'autres noyaux ou à d'autres énergies en particulier le domaine rapide où il y a peu de données. Les composants essentiels et la validation de ce code sur certains éléments clés seront détaillés au chapitre 2.

Cette thèse présente les résultats des mesures des rendements de fission de l' ^{242}Am réalisées au moyen du spectromètre de masse Lohengrin (ILL) couplé à une chambre d'ionisation et des détecteurs germaniums. Ce dispositif présenté au chapitre 3 a permis de mesurer l'ensemble des rendements en masse supérieurs à 1% dont l'analyse sera détaillée dans le chapitre 4 et d'extraire 18 rendements isotopiques dans le pic lourd et quelques rapports isomériques par spectrométrie gamma. L'analyse associée sera présentée au chapitre 5. Le chapitre 6 présentera les résultats obtenus.

Si l'influence de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant est clairement établie, les études sur l'influence du spin de ce dernier sont assez restreintes. Le chapitre 7 présentera la méthode et les mesures réalisées dans cette thèse afin de répondre à la question à l'origine de cette thèse : la section efficace de fission de l' ^{242m}Am est très largement différente de celle de l' $^{242gs}\text{Am}$; en est il de même pour les rendements de fission ?

Chapitre 1

Contexte de cette étude

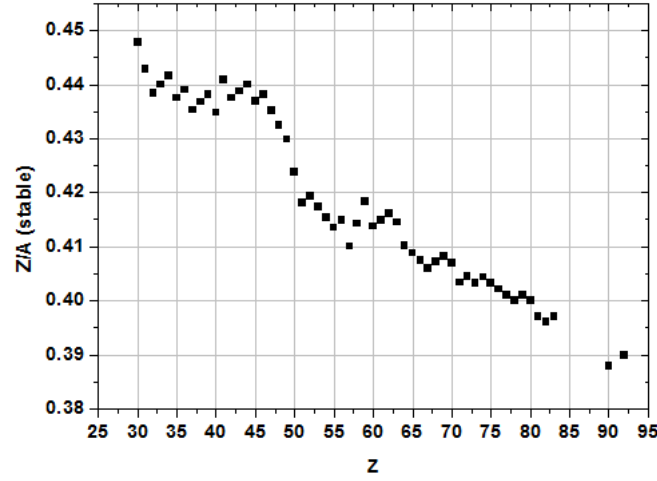
1.1 Rappels sur le processus de fission

1.1.1 Les étapes du processus

Lorsqu'un noyau de masse A absorbe un neutron, il forme un noyau composé de masse $A + 1$ dans un état excité. La durée de vie du noyau composé est considérée comme très longue par rapport à la période de révolution des nucléons. L'énergie d'excitation de ce dernier résulte de l'apport de l'énergie cinétique et de l'énergie de liaison du neutron absorbé.

Le noyau composé ainsi formé peut par la suite, selon son énergie d'excitation, soit se désexciter jusqu'à son état fondamental en émettant des gamma (capture radiative), soit réémettre un neutron (diffusion élastique ou inélastique), soit encore fissionner. La fission est souvent privilégiée pour les noyaux lourds dont la masse est supérieure à environ 200. On estime d'après les largeurs des résonnances des sections efficaces des actinides que la capture est plus lente que la fission. On définit théoriquement parlant deux moments clés dans le processus de fission : le point selle et le point de scission. J-F Berger a estimé l'intervalle de temps entre ces deux points comme étant de l'ordre de $10^{-19} s$ [BER11]. Le point selle correspond au moment où la déformation du noyau composé est telle que la fission devient inévitable. Le point de scission est quant à lui le moment à partir duquel on peut considérer les deux entités issues de la fission comme des noyaux distincts, avec des propriétés propres. Ces derniers sont appelés fragments primaires.

En première approximation, la densité de charge nucléaire, i.e le rapport Z/A , des fragments primaires est identique à celle du noyau composé. Cette approximation bien vérifiée expérimentalement est appelée hypothèse UCD pour unchanged charge density. Or, comme illustré figure 1.1, le rapport Z/A correspondant à un noyau stable a tendance à diminuer avec le nombre de protons Z du noyau. Les fragments primaires, qui ont en première approximation une charge 2 fois inférieure à celle du noyau composé, sont donc trop riches en neutrons. De plus ils sont dans un état excité de quelques dizaines de MeV. Ils vont donc évaporer dans un temps très court ($10^{-17} s$) des neutrons prompts suivis, lorsque l'évaporation neutronique n'est énergétiquement plus possible, de l'émission de gamma prompts ($10^{-14} s$) [BER11]. Le nombre de neutrons émis lors de la fission est voisin de 3. Les fragments après évaporation sont appelés fragments secondaires.

FIGURE 1.1 – Evolution du rapport Z/A pour les noyaux stables en fonction de Z

Ces derniers sont toujours trop riches en neutrons et procèdent à 2-3 désexcitations β^- pour rejoindre la stabilité. Dans un cas sur cent environ, la désexcitation β^- s'accompagne de l'émission d'un neutron (β_n^-) dit neutron retardé émis longtemps après la fission ($\sim ms - min$). La figure 1.2 récapitule les étapes du processus de fission.

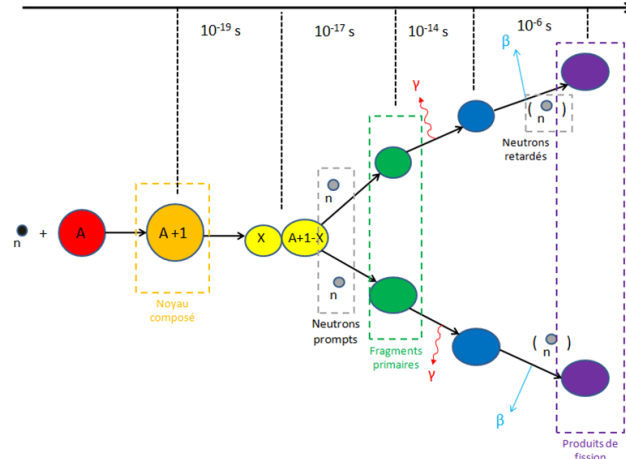


FIGURE 1.2 – Schéma récapitulatif du processus de fission [WAG91]

1.1.2 Les caractéristiques de la fission

Si le phénomène de fission reste encore souvent considéré comme une boîte noire notamment parce qu'il ne peut pas être décrit *ab initio*, les mesures réalisées (le nombre de neutrons prompts émis et leurs énergies, la multiplicité gamma et l'énergie de ces derniers, les fragments de fission et leurs caractéristiques) depuis sa découverte nous ont permis de mettre en évidence certaines de ces caractéristiques : certaines liées à la structure des noyaux, certaines liées à la dynamique du phénomène.

1.1.2.1 Sections efficaces

La voie d'entrée du processus est caractérisée par la section efficace de fission. Le noyau composé est principalement soumis à la force de répulsion coulombienne, qui tend à éloigner les protons et la force nucléaire qui tend à garder le noyau compact. Le rapport de ces forces évolue avec l'élongation du noyau composé. Le potentiel résultant de la somme de ces deux forces en fonction de l'élongation est représenté figure 1.3. On observe une « barrière de potentiel » appelée barrière de fission B_f . Le haut de la barrière correspond au point selle. Elle traduit la compétition entre les deux forces mentionnées auparavant. La prise en compte des effets de couches génère une énergie potentielle ayant en général deux barrières.

Le surplus d'énergie apporté par l'absorption d'un neutron est la somme de l'énergie de liaison (S_n) et cinétique (E_n dans le référentiel du centre de masse) du neutron : $S_n + \frac{A}{A+1} E_n$. Lors d'une fission thermique, l'énergie cinétique $E_n = 25 \text{ meV}$ est négligeable par rapport à son énergie de liaison dont la valeur est typiquement autour de 6 MeV. Le noyau composé ne fissionne que si $S_n > B_f$. Cette affirmation doit cependant être légèrement nuancée par l'existence de l'effet tunnel qui permet une fission faiblement probable lorsque $S_n < B_f$. Si on se reporte aux barrières de fission calculées par [MYE81] (cf figure 1.4) dans le cadre d'un modèle simplifié de la goutte liquide, on en déduit que la fission induite par neutron thermique n'est possible que dans la zone des actinides ($A > 230$). Un calcul raffiné incluant les effets de couche du fondamental et ceux présents à la barrière montre que cette dernière et S_n sont du même ordre de grandeur. Les différences $|S_n - B_f|$ sont en absolues inférieures à 2 MeV dans cette région. Les effets de structure locaux vont donc déterminer deux catégories de noyaux dans la zone des actinides : les noyaux fissiles (comme l' ^{235}U) avec $S_n > B_f$ et les noyaux fertiles (comme l' ^{238}U) avec $S_n < B_f$ qui se dés excitent principalement en émettant des gamma (capture radiative).

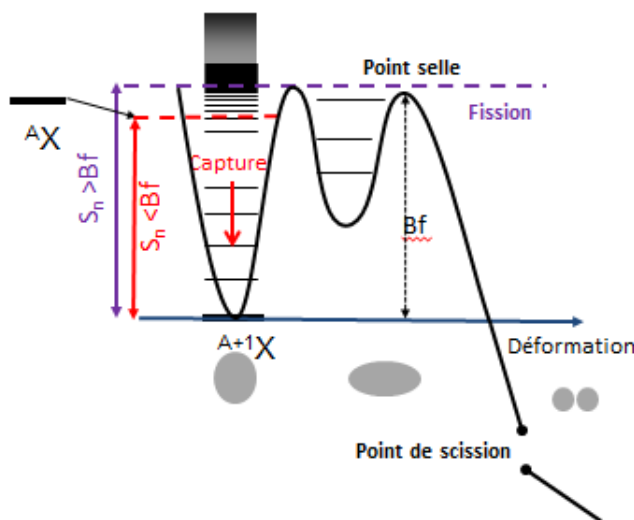


FIGURE 1.3 – Énergie potentielle du noyau composé en fonction de la déformation [LET11]

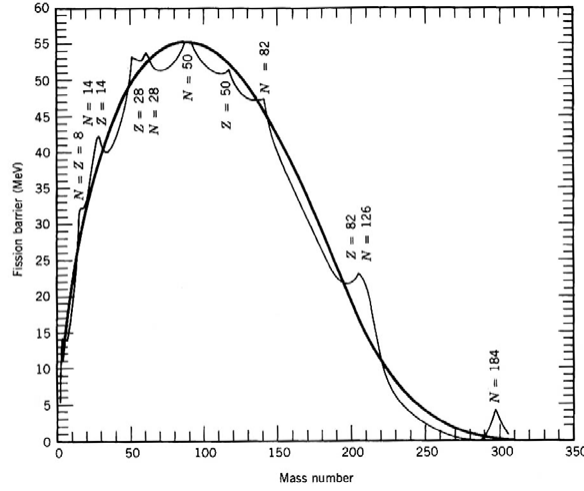
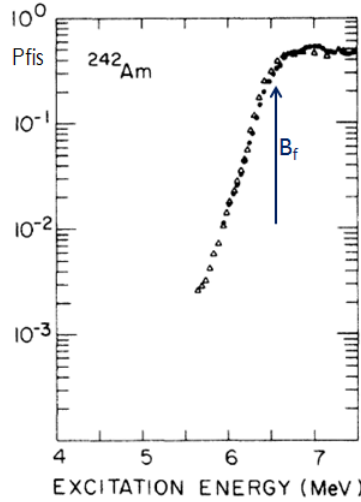


FIGURE 1.4 – Hauteur des barrières de fission [KRA88]

Le rapport entre la section efficace de fission et la section efficace totale (moins la diffusion neutronique potentielle) est appelé probabilité de fission (P_{fis}). Les réactions (d,p) et les réactions de transferts en général peuvent permettre d'étudier un domaine en énergie inférieure à S_n inaccessible par réaction induite par neutron. Comme on peut le voir figure 1.5, quand l'énergie d'excitation est en dessous de la barrière, la fission n'est possible que par effet tunnel (P_{fis} est faible). Lorsque la barrière de fission est dépassée, P_{fis} augmente très significativement.

FIGURE 1.5 – Probabilité de fission de l' Am^{242} en fonction de l'énergie d'excitation [BAC74b] ($S_n=5.54$ MeV)

Lorsque l'énergie du neutron incident augmente cette dernière peut correspondre à un niveau excité du noyau composé, conduisant ainsi aux résonances que l'on observe dans les sections efficaces à basse énergie. Au delà de cette zone dite des « résonances résolues », l'énergie d'excitation correspond au continuum du noyau composé. On obtient donc une section efficace pour les noyaux fissiles comme celle de l' ^{235}U . Dans le cas d'un fertile comme l' ^{238}U , la section efficace de fission présente un seuil tel que $E_n = B_f - S_n$. Les deux types de section efficace sont

présentés figure 1.6.

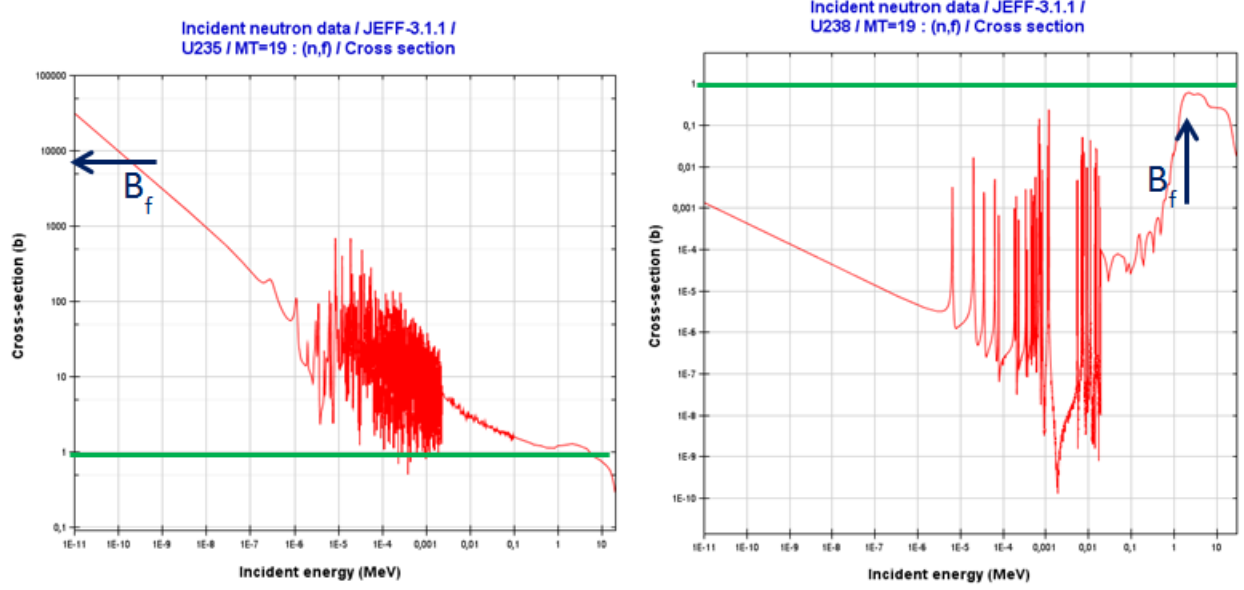


FIGURE 1.6 – Section efficace de fission d’après JEFF 3.1.1. pour l’ ^{235}U (gauche) et l’ ^{238}U (droite). A des fins de comparaison $\sigma = 1$ barn est marqué par un trait vert

1.1.2.2 Bilan en énergie

La partie précédente s’est intéressée au noyau composé. La partie qui suit étudie la répartition de l’énergie totale disponible lors du processus grâce aux observables de la fission : énergie cinétique des fragments, multiplicité et énergie des particules promptes évaporées.

1.1.2.3 Energie coulombienne ou énergie cinétique

L’interaction coulombienne entre les fragments conduit ces derniers à s’éloigner l’un de l’autre avec une vitesse de l’ordre de 1 cm par nanoseconde. Il est communément admis que le calcul de l’interaction coulombienne entre les fragments permet de prédire l’énergie cinétique mesurée [QUE69]. De manière simplifiée on peut écrire que :

$$E_{\text{coul}} \propto \frac{Z_1 Z_2}{d_{12}} \quad (1.1)$$

où d_{12} correspond à la distance entre les centres de charge nucléaire des deux fragments. Dans le cas d’une fission symétrique de noyaux sphériques en contact $d_{12} \propto A_{CN}^{1/3}$ et $Z_1 Z_2 \propto Z_{CN}^2$ donc

$$E_{\text{coul}} \propto \frac{Z_{CN}^2}{A_{CN}^{1/3}} \quad (1.2)$$

Cette première approximation a été observée expérimentalement et est traduite par la formule de Viola [VIO66] :

$$T\bar{K}E = 0.1189 * Z^2 / A^{1/3} + 7.3 [MeV]$$

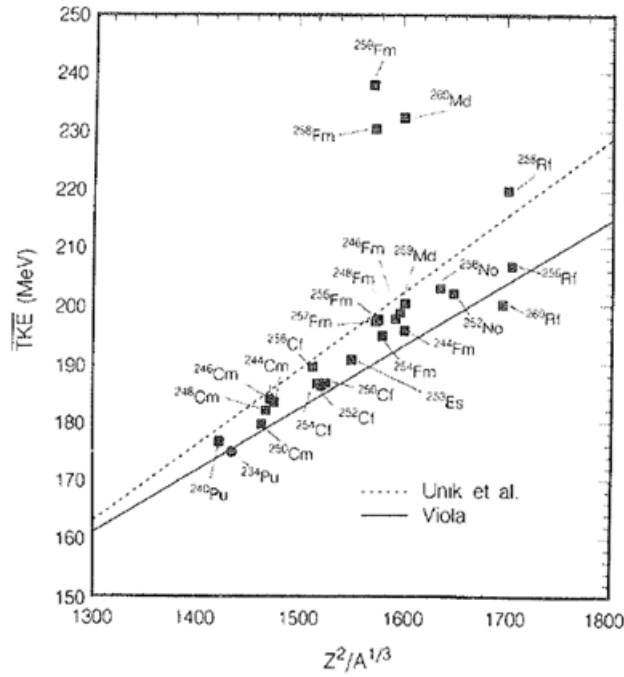


FIGURE 1.7 – Énergie cinétique totale (TKE) moyenne pour différents noyaux fissionnants en fonction du paramètre $Z^2/A^{1/3}$ [VIO66]

Supposons deux fragments sphériques dont les surfaces sont séparées par une distance d alors la distribution en énergie cinétique totale est parabolique comme illustré figure 1.8. La forme générale est assez bien reproduite pour une distance de 6 fm. Cependant on observe une large sur-estimation pour les masses inférieures à 100 et une légère sous estimation pour les masses au delà de 110. Si on considère de manière très simplifiée que les fragments sont déformés selon une loi telle que le paramètre de déformation $\beta = a * Z + b$, comme indiqué par les données de structure, alors on observe une forme similaire mais une diminution de 15-20 MeV de l'énergie cinétique totale. Le calcul de l'énergie cinétique est également très dépendant de la distance entre les fragments comme illustré figure 1.8 par les distributions pour 2,4,6 fm.

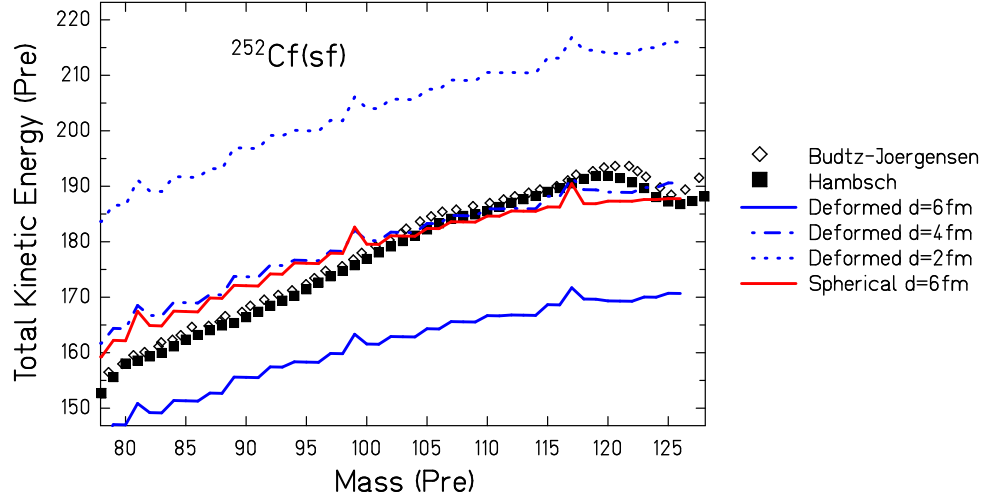


FIGURE 1.8 – Énergie cinétique totale moyenne expérimentales (symboles noirs) et calculées pour différentes formes des fragments (sphériques et déformés) et pour différentes distances entre les surfaces [BUD88]. Calculs effectués par J-F Lemaitre [LEM14]

1.1.2.4 Énergie de déformation, énergie d'excitation et particule émise

Contrairement à l'énergie coulombienne, l'énergie d'excitation stockée à la scission sous forme de déformation et d'énergie d'excitation intrinsèque ne peut pas être mesurée directement. Les particules émises (neutrons, gamma) permettent néanmoins d'évaluer cette quantité.

On a ainsi :

$$E_{\text{fragments}} = E_{\text{intr}} + E_{\text{deformation}} = \nu_n * (\varepsilon_n + S_n) + M_\gamma * \bar{E}_\gamma$$

où ν_n est le nombre de neutrons prompts évaporés, ε_n l'énergie moyenne des neutrons dans le centre de masse, M_γ la multiplicité gamma et $\bar{E}_\gamma$ l'énergie moyenne des gamma prompts émis.

L'évaporation des neutrons et des gamma a lieu vers 10^{-17} s, les fragments sont alors éloignés de 10^{-7} m, l'interaction coulombienne entre les deux fragments peut donc être considérée comme nulle.

Dans le cadre de la goutte liquide, l'énergie d'excitation est principalement stockée sous forme d'énergie de déformation définie comme $E_{\text{deformation}} = E(\beta) - E(\beta = 0)$. Cette dernière est proportionnelle à β^2 au premier ordre comme on peut le voir figure 1.10.

Les neutrons sont émis pour évacuer de l'énergie alors que les gammas sont émis pour leur moment angulaire et souvent lorsque l'émission de neutron n'est plus énergétiquement possible. La conservation de l'énergie totale étant propre à chaque fragmentation, un grand intérêt est porté à la complémentarité des deux informations : énergie cinétique et nombres de particules évaporées.

Lors d'une fission thermique, on a $\bar{\nu}_n \sim 3$, $\varepsilon_n + S_n \sim 8 - 9 \text{ MeV}$, $M_\gamma \sim 7$ et $\bar{E}_\gamma \sim 1 \text{ MeV}$ donc $\bar{\nu}_n * (\varepsilon_n + S_n) \gg M_\gamma * \bar{E}_\gamma$. La déformation, qui provient de la structure des noyaux, peut en première approximation s'écrire $\beta \propto (a * Z + b)$ avec a et b différents pour le fragment lourd et léger.

On a donc en première approximation:

$$E_{*fragments} \sim E_{deformation} \propto \beta^2 \propto (a * Z + b)^2$$

et $E_{*fragments} \sim \bar{\nu}_n * (\bar{\varepsilon}_n + S_n)$

De plus dans une hypothèse de thermalisation du noyau $\bar{\varepsilon}_n$ est très faiblement dépendant de la masse du fragment. Ainsi le nombre de neutrons $\bar{\nu}_n \propto (a * Z + b)^2$ forme une dent de scie en fonction de Z imputable en première approximation à la forme des fragments comme illustré figure 1.9.

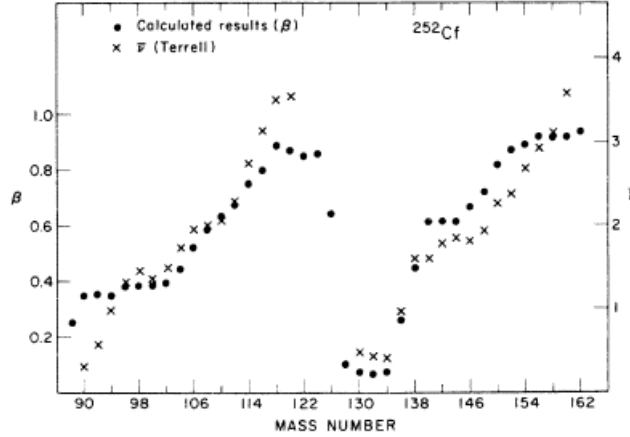


FIGURE 1.9 – Nombre de neutrons émis et déformation beta en fonction de la masse du fragment pour le ^{252}Cf [WIL76]

Cette forme de dent de scie fonction de la masse du fragment a également été observée pour l'énergie émise par les gammas ($M_\gamma * \bar{E}_\gamma$) en : $M_\gamma * \bar{E}_\gamma = [G * \bar{\nu}(A) + 2.2\text{MeV}]$ [FRE89] où est G est compris entre 0.7 et 1 et ne dépend que du noyau père.

1.1.2.5 Partage de l'énergie

La déformation des fragments pilote donc en première approximation la répartition de l'énergie d'excitation du noyau composé entre l'énergie cinétique et l'énergie d'excitation des fragments. Plus les fragments sont déformés plus les centres de charge sont éloignés et donc plus l'énergie coulombienne est faible et plus l'énergie de déformation est élevée (figure 1.10 à droite).

La somme de ces énergies est une parabole comme illustré figure 1.10 et correspond à l'énergie minimale nécessaire à la formation de deux fragments déformés. La différence d'énergie entre l'énergie d'excitation du noyau père, le Q de réaction et la somme de l'énergie cinétique et l'énergie de déformation des fragments constitue alors l'énergie d'excitation interne. Les deux cas extrêmes de fragmentation où aucune énergie d'excitation intrinsèque n'est disponible correspondent à la fission froide compacte (noyaux sphériques et grande énergie cinétique) et à la fission froide déformée (noyaux très déformés et faible énergie cinétique). Ces deux cas extrêmes permettent d'observer et de décrire les propriétés fines du processus de fission comme l'évolution de l'effet pair-impair avec l'énergie d'excitation [BOC90].

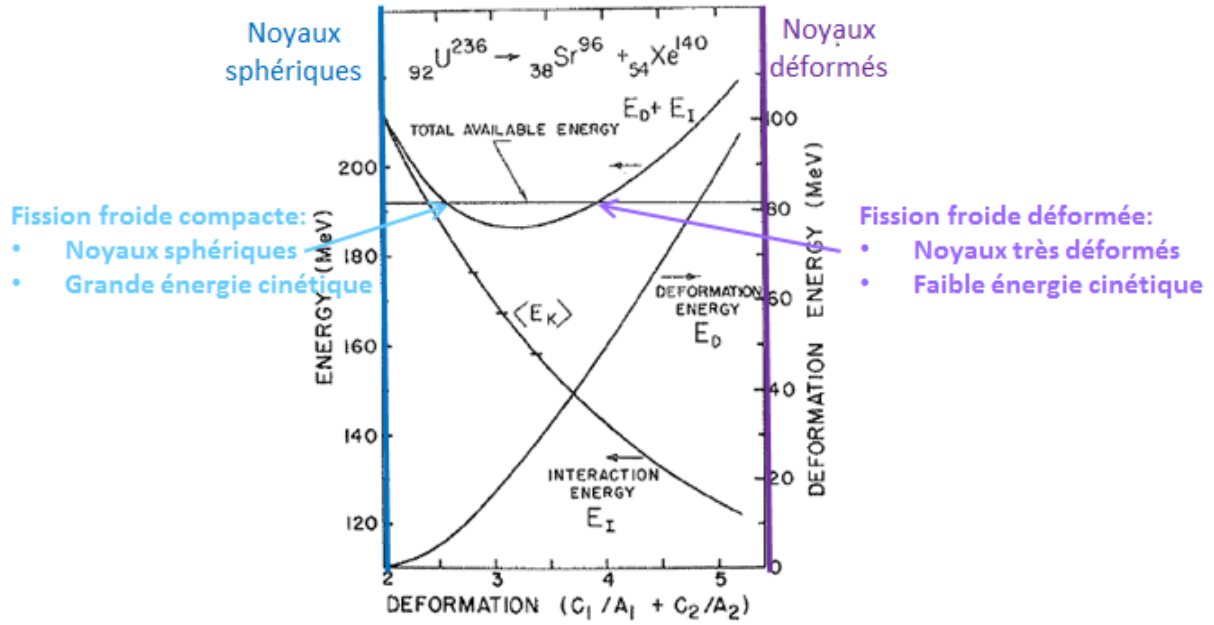


FIGURE 1.10 – Energie de déformation, énergie coulombienne et énergie totale en fonction de la déformation [WAG91]

La mesure d'un moment angulaire des fragments élevé ($J \sim 7\hbar$) nous indique également que 1-2 MeV d'énergie d'excitation sont convertis en énergie de rotation. En effet dans l'approximation d'une goutte liquide, l'énergie rotationnelle s'exprime sous la forme :

$$E_{rot} = \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2 * I}$$

où I est le moment d'inertie du système. Pour un fragment de masse 100 avec $\beta = 0.5$ on a $I \sim 30$ [HAS88] donc $E_{rot}(A = 100, \beta = 0.5) \sim 0.8 \text{ MeV}$

La figure 1.11 synthétise le discours tenu précédemment.

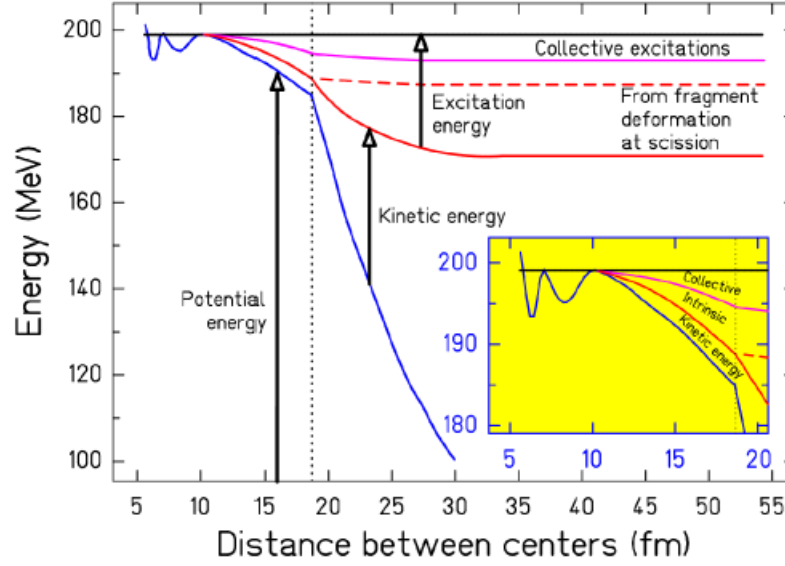


FIGURE 1.11 – Répartition de l'énergie lors du processus de fission en fonction de la distance entre les fragments [SCH11]

On peut maintenant s'intéresser à la répartition de l'énergie au sein du système en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé. L'énergie cinétique étant gouvernée par la forme des fragments et la distance les séparant, elle ne devrait pas varier lorsque l'on introduit de l'énergie supplémentaire dans le système. Cette première intuition a été vérifiée expérimentalement : l'énergie cinétique qui est de l'ordre de 170 MeV ne varie que de 0.5-1 MeV lorsqu'on ajoute plusieurs MeV au système [MEA63]. Ainsi l'ajout d'énergie au noyau composé alimente essentiellement l'énergie d'excitation intrinsèque disponible à la scission ce qui se traduit par une augmentation du nombre de neutrons émis.

1.1.2.6 Rendement de fission

Distribution en masse Revenons plus en détail à la dernière observable de la fission, celle qui est au cœur de cette thèse : les rendements de fission. On définit différents types de rendements de fission : le rendement dit indépendant ou direct qui correspond à la probabilité de formation d'un produit de fission après l'émission de neutrons prompts mais avant les désintégrations beta retardées et le rendement dit cumulé qui correspond à la probabilité de l'accumulation d'un produit de fission directement de la fission et par décroissance de ses précurseurs. Les fragments décroissant très majoritairement par désexcitation β^- , les rendements en masse indépendants et cumulés sont quasiment identiques.

La figure 1.12 représente la distribution en masse des fragments de fission pour l' ^{235}U avant et après émission des neutrons prompts. La fission est asymétrique, elle produit un fragment lourd centré pour des raisons de structure autour de $A=140$ et un fragment léger qui assure la conservation de la masse. Les parties asymétriques sont appelées pics (lourd et léger) et la partie symétrique vallée.

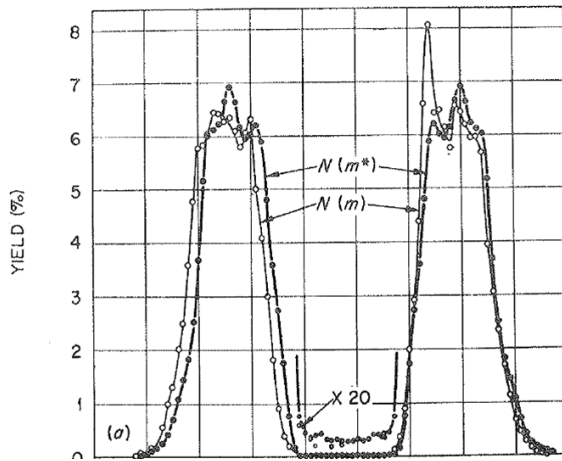


FIGURE 1.12 – Distribution en masse des fragments de fission avant (exposant *) et après évaporation : pour l' $^{235}\text{U}(n, f)$ [WAG91]

La caractéristique principale des rendements est la stabilisation du pic lourd (voir figure 1.13). Ce dernier est souvent annoncé à tort comme centré en $A=132$ à cause de l'étain 132 : noyau doublement magique. Ce dernier est en réalité centré autour de la masse 140. De nombreuses études ont cherché à déterminer si cette stabilité était imputable à une fermeture de couche neutrons ou protons. Wilkins [WIL76] avait noté une fermeture de couche déformée pour $N=88$. Des études plus étendues, notamment grâce aux réactions en cinématique inverse, ont cependant montré que le nombre de protons du fragment lourd induisait une stabilisation du pic lourd (voir figure 1.14). Les explications théoriques sont actuellement incapables d'expliquer la stabilisation due à des effets de couches déformées pour $Z=54-55$. La stabilisation apparaît en A car dans les zones étudiées : Z/A est relativement constant.

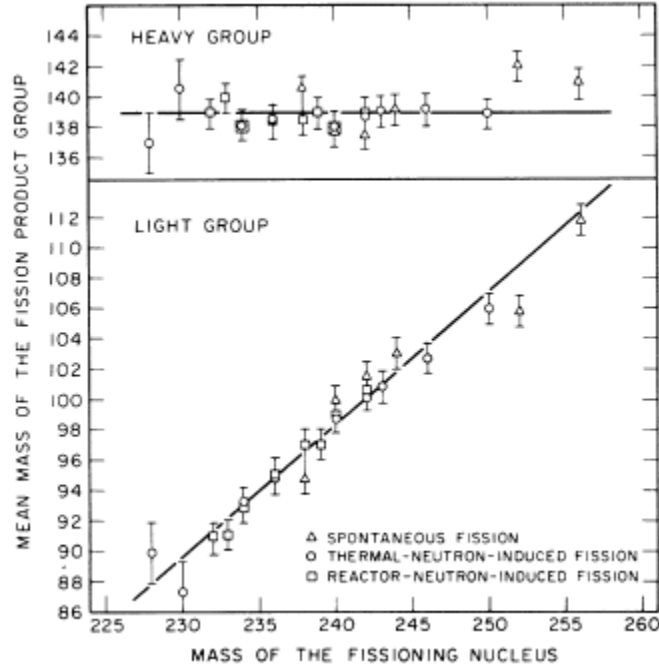


FIGURE 1.13 – Masse moyenne des fragments lourds et légers en fonction de la masse du noyau fissionnant [FLY72]

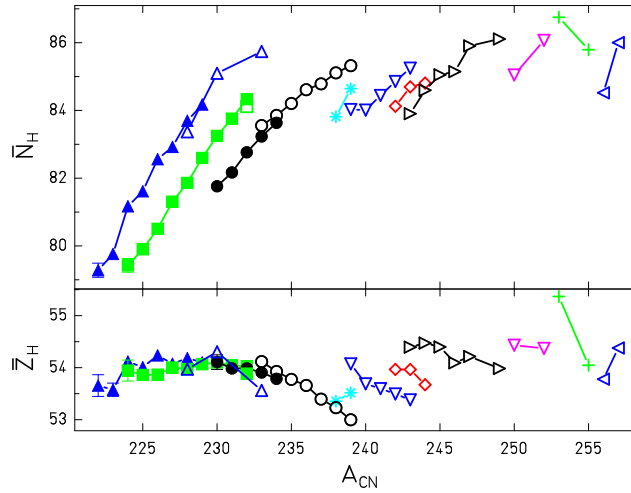


FIGURE 1.14 – Nombre de neutrons (haut) et protons (bas) moyens en fonction de la masse du noyau composé [SCH11] Les différents symboles correspondent à des charges différentes du noyau fissionnant.

Si l'emplacement des pics montre l'importance des effets de structure des fragments, la largeur des distributions semble traduire les effets dynamiques du processus de fission. En effet, lorsque la dynamique n'est pas prise en compte les largeurs calculées des distributions sont très largement sous estimées [JUR13]. On observe également une faible dépendance linéaire de cette largeur avec la masse du noyau fissionnant (voir figure 1.15).

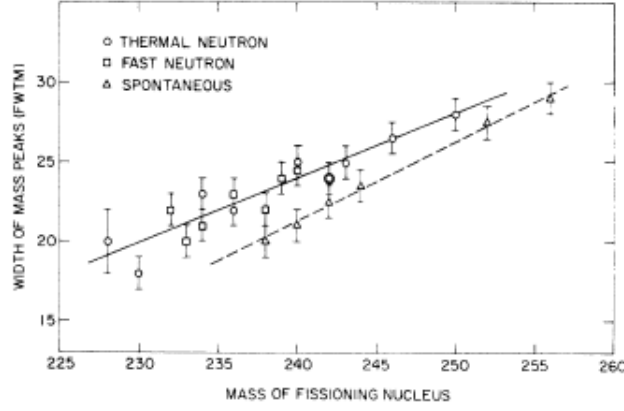


FIGURE 1.15 – Largeur de la distribution en masse des fragments de fission en fonction de la masse du noyau fissionnant [FLY72]

Effet Pair-Impair Les rendements isotopiques $Y(A, Z)$ se caractérisent quant à eux par une prédominance des fragments à Z pair sur les fragments à Z impair appelé effet pair-impair. L'effet pair-impair est quantifié par

$$\delta = \frac{\sum Y_{pair} - \sum Y_{impair}}{\sum Y}$$

Lors d'une fission thermique, l'énergie disponible au point selle ($E_{CN}^* - B_f$) n'est pas suffisante pour briser une paire de protons ($\sim MeV$) or l'effet pair-impair est présent pour tous les systèmes fissionnants. L'effet pair-impair n'est donc pas présent au point selle. Différentes explications de l'origine de cet effet sont avancées. Plusieurs modèles dont [NIF82] corrélient l'énergie dissipée entre le point selle et le point de scission à l'effet pair-impair. D'autres modèles comme [BOU98] considèrent que la descente entre le point selle et le point de scission est adiabatique et que c'est la vitesse de rupture du col, traduisant la répulsion coulombienne qui détermine l'effet pair-impair. Plus la rupture est rapide i.e plus la répulsion coulombienne (proportionnelle à $Z^2/A^{1/3}$) est importante plus l'effet pair-impair est faible. La dépendance de δ avec le paramètre coulombien a été observé expérimentalement.

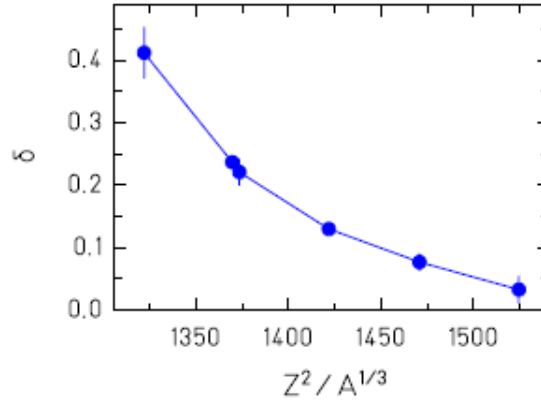


FIGURE 1.16 – Effet Pair-Impair δ en fonction du paramètre caractéristique de la répulsion coulombienne $Z_{CN}^2/A_{CN}^{1/3}$ [CAA11]

Cependant l'énergie dissipée entre le point selle et le point de scission étant également dépendante de ce paramètre aucune des deux hypothèses ne peut donc être exclue. Les deux premiers modèles présentés précédemment donnent un effet pair-impair indépendant de la masse du fragment or il a été observé que l'effet pair-impair local $\delta(Z)$ [TRA72]

$$\delta(Z + 3/2) = \frac{1}{8}(-1)^Z [\ln Y(Z + 3) - \ln Y(Z) - 3(\ln Y(Z + 2) - \ln Y(Z + 1))]$$

augmentait avec l'asymétrie $a = (Z_{lourd} - Z_{léger})/Z_{cn}$ des fragments (figure 1.17). Les modèles précédents ne décrivent donc pas toute la physique mise en jeu dans l'effet pair-impair. L'augmentation de cet effet est d'autant plus forte que le noyau fissionnant est léger (figure 1.16). Afin de répondre à cette problématique, [SCH10a] part du principe que l'effet pair-impair provient de la répartition en énergie intrinsèque entre les deux fragments. Cette modélisation est détaillée §2.1.5.

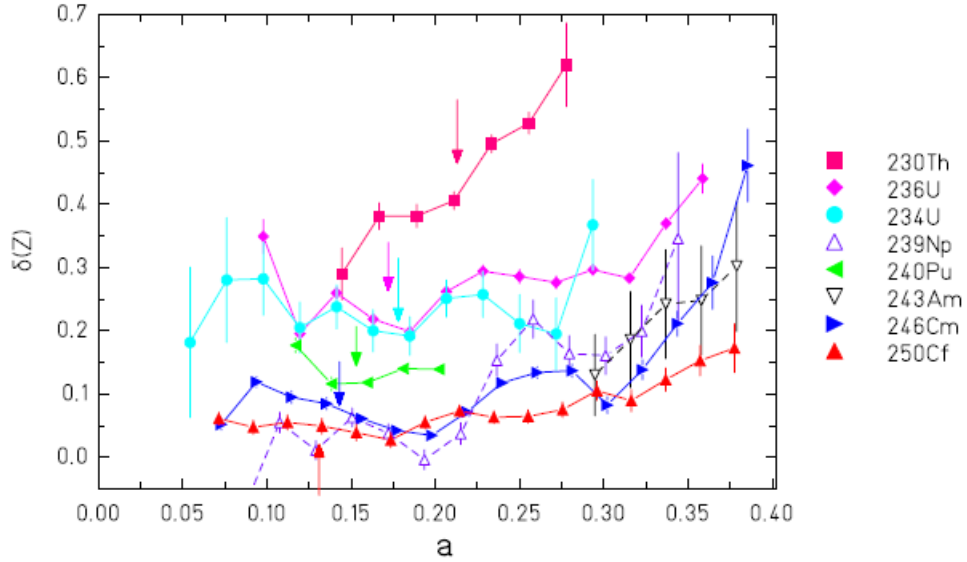


FIGURE 1.17 – Effet Pair-Impair Local en fonction de l'asymétrie a du système pour différents systèmes fissionnants [CAA11]

Les noyaux composés à charges impaires comme l'américium fissionnent par définition toujours en produisant un fragment pair et un fragment impair, l'effet pair-impair global attendu est donc nul. Toutefois comme illustré figure 1.17 et 1.18, le ^{93}Np et l' ^{95}Am présentent des effets pairs impairs répondant à la même systématique que les noyaux composés pairs. Ces observations sont cependant basées sur les mesures réalisées à l'ILL et restraints au pic léger [BOC89]. Les mesures par cinématique inverse ont montré que pour les fragmentations symétriques l'effet pair-impair était nul, qu'il était positif pour les fragments légers et négatif pour les fragments lourds.

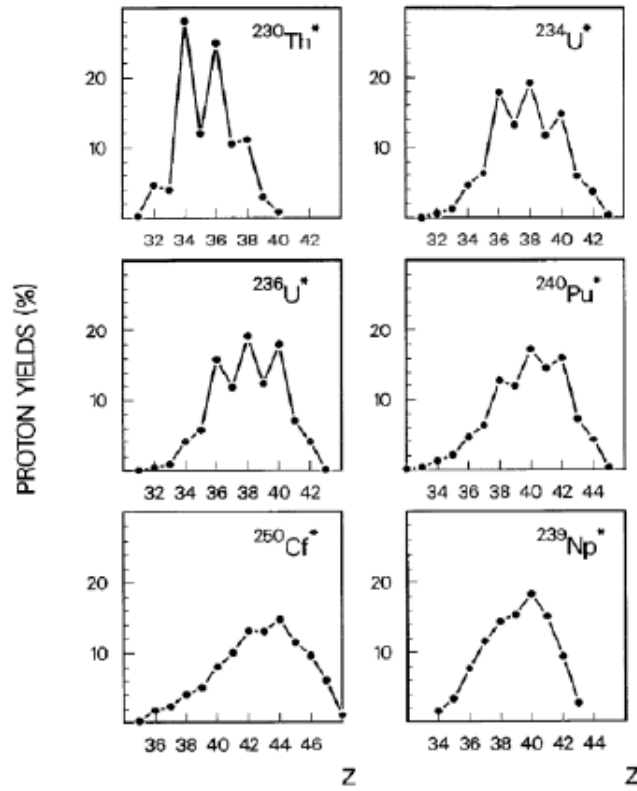


FIGURE 1.18 – Rendements de fission en fonction de la charge Z des fragments pour différents noyaux fissionnants [BOC89]

Influence de l'énergie d'excitation L'augmentation de l'énergie d'excitation se traduit par un « lavage » des effets de structures. Des configurations à la fission jusqu'alors énergétiquement défavorisées deviennent possibles. On a donc une diminution du rapport pic sur vallée comme illustré figure 1.19 par le rapport $A=115/A=140$ et une largeur des pics lors de la fission spontanée plus faible que lors d'une fission induite par neutron thermique (figure 1.15).

Lorsque l'on augmente l'énergie d'excitation du système on s'attend également à une réduction de l'effet pair-impair et cette dernière est observée [CAA11]. Les noyaux fissionnants pairs et impairs présentant les mêmes comportements en thermique sur le pic léger, on s'attend logiquement à ce qu'ils gardent des comportements similaires lors d'une augmentation de l'énergie d'excitation du noyau composé. Il a cependant été récemment observé sur les légers, pour une énergie d'excitation plus élevée, un effet pair-impair plus faible pour les noyaux fissionnants à charges impaires que pour les noyaux à charges paires.

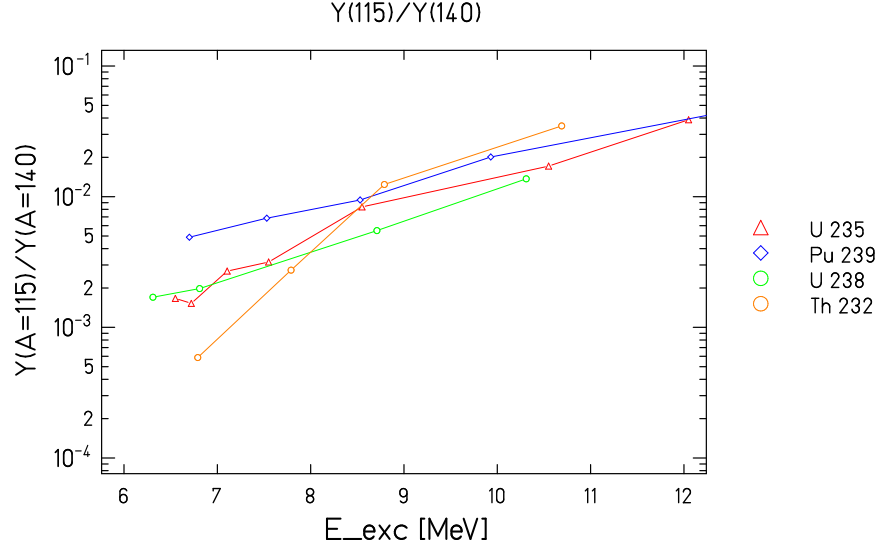


FIGURE 1.19 – Rapport Vallée sur Pic illustré via le rapport $A=115/A=140$ en fonction de l'énergie d'excitation pour différents noyaux fissionnants [GLE81, GIN83, NAG68, GLE80]

1.1.3 Les différents modèles

Cette section va se consacrer à l'étude de la modélisation du processus de fission. La complexité de la modélisation réside dans le couplage entre les effets de structure des fragments pilotant l'emplacement des pics et la dynamique du processus induisant une largeur des pics élevée. Trois modèles vont être présentés dans ce paragraphe : le premier modèle est macroscopique il n'inclut ni dynamique ni structure, le second modèle n'inclut pas de dynamique mais tient compte de la structure des noyaux fils et le troisième modèle incorpore la structure des noyaux fils et ajoute l'effet dynamique.

1.1.3.1 Modèle adiabatique sans structure

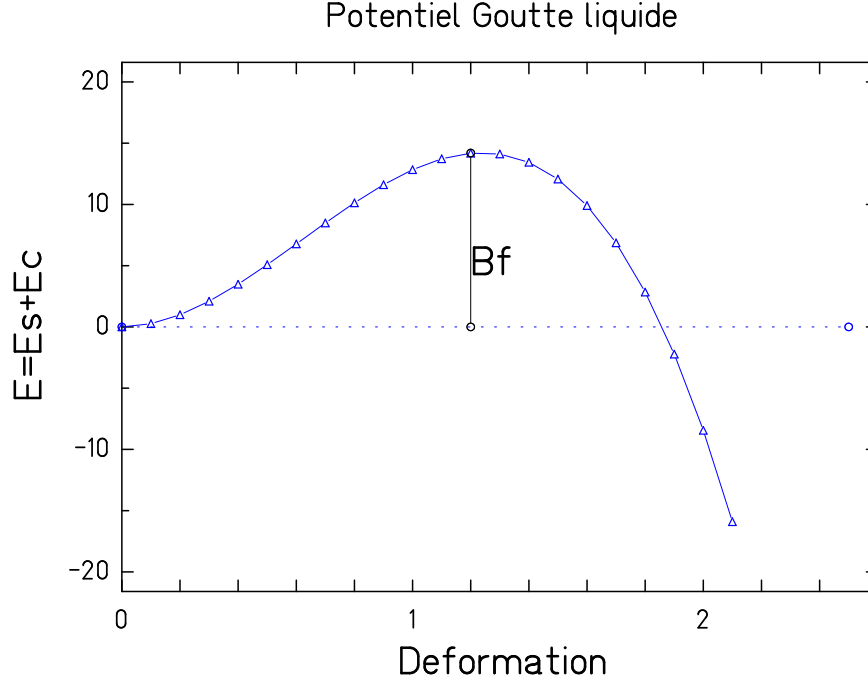
Le premier modèle et le plus simple est le modèle de la goutte liquide [WEI35] où le phénomène est supposé purement collectif. Ce modèle considère l'évolution de l'énergie potentielle du noyau quand celui-ci se déforme. Les forces s'exerçant sur le noyau peuvent être vues comme une force volumique $E_v(-a_v r^3)$ qui tend à lier l'ensemble, une force coulombienne $E_c(a_c \frac{Z^2}{r})$ due aux particules chargées qui tend à vouloir éloigner les protons les uns des autres donc « délier » le noyau et une force surfacique $E_s(a_s r^2)$ qui traduit la moindre liaison des nucléons à la périphérie. En considérant un noyau incompressible on a $V \propto A$ donc $r \propto A^{1/3}$. L'énergie totale s'écrit

$$E = -a_v A + a_s A^{2/3} + a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}}$$

Le terme volumique étant constant l'évolution de cette énergie en fonction de l'élongation du noyau ne dépend que de E_c et E_s . Au troisième ordre, E_c et E_s deviennent, en fonction de la déformation, [BOH39] :

$$E_s(\beta) = E_s(\beta = 0) \left[1 + \frac{1}{2\pi} \beta^2 - 9.56 \cdot 10^{-3} \beta^3 \right] \quad (1.3)$$

$$E_c(\beta) = E_c(\beta = 0) \left[1 - \frac{1}{4\pi} \beta^2 - 9.56 \cdot 10^{-3} \beta^3 \right] \quad (1.4)$$

FIGURE 1.20 – Energie potentielle de l' ^{236}U en fonction du paramètre de déformation

Ce modèle permet de mettre en exergue l'une des caractéristiques principales de la fission : la barrière de fission. Le volume du noyau restant constant, elle n'existe que si $E_c/2E_s$ appelé fissilité est supérieur à 1. Cette dernière illustre la compétition entre la force coulombienne répulsive et la force surfacique attractive.

Si on considère deux fragments (Z_1, A_1) et (Z_2, A_2) tels que $Z_1 + Z_2 = Z_{cn}$ et $A_1 + A_2 = A_{cn}$ et dont la densité de charge est identique à celle du noyau composé (hypothèse UCD) : $Z_{1,2}/A_{1,2} = Z_{cn}/A_{cn}$ alors l'énergie disponible $E_{cn} - (E_1 + E_2)$ est de l'ordre de 200 MeV. Cette dernière est maximale pour une fragmentation symétrique ce qui conduit dans l'hypothèse d'un phénomène adiabatique et statique à une fission symétrique comme indiqué figure 1.21. Or on sait que la fission est asymétrique dans la région des actinides.

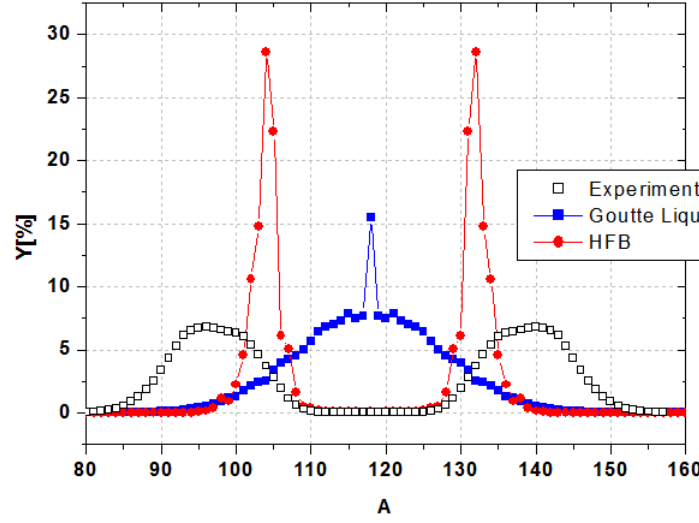


FIGURE 1.21 – Comparaison entre les rendements avant évaporation des neutrons prompts obtenus avec le modèle de la goutte liquide (bleu), avec des énergies individuelles où la structure est incluse HFB (rouge) et les données expérimentales (noir). Calculs effectués par J-F Lemaître avec l’hypothèse d’un processus adiabatique et statistique pour un noyau composé d’ $^{236}\text{U}^*$ [LEM14]

1.1.3.2 Modèle adiabatique avec structure

Le modèle suivant [WIL76][HEI04][LEM14] considère également le phénomène comme adiabatique et statique, il prend cependant en compte la structure des noyaux fils. Les noyaux fils ne peuvent être définis qu’à partir du point de scission. Dans l’hypothèse d’une évolution adiabatique, le système va chercher à minimiser son énergie au point de scission. L’introduction d’énergie individuelle des fragments tenant compte de la structure (ici HFB[HIL07]) tend à privilégier les noyaux magiques comme l’ ^{132}Sn (cf figure 1.21) puisqu’ils maximisent l’énergie disponible. Cependant ces noyaux ne sont pas toujours privilégiés dans l’expérience car ils s’éloignent trop d’UCD. L’éloignement d’UCD peut être perçu comme l’inertie du système. Pouvoir s’éloigner d’UCD c’est considérer que l’on peut échanger entre les deux fragments des particules en permanence or l’énergie coulombienne écarte au fur et à mesure du temps les deux fragments ; ils ne peuvent donc pas continuer à échanger durant un temps très élevé. Cependant bien qu’on observe que les pics soient décalés et pas assez larges, la fission est asymétrique comme attendu (figure 1.22 pointillés).

1.1.3.3 Modèle incluant la structure et la dynamique

Comme illustré par le modèle précédent la structure des noyaux fils influence fortement la distribution des rendements de fission. Toutefois, la largeur des pics obtenus lors d’un calcul statique est très étroite (ligne pointillé figure 1.22). La propagation de paquets d’ondes sur la surface d’énergie potentielle réalisée dans le cadre de [GOU05] et présentée figure 1.22 permet d’élargir significativement les distributions. Cependant les rendements obtenus ne correspondent qu’en ordre de grandeur aux rendements mesurés et ces calculs sont très gourmands en temps de calcul.

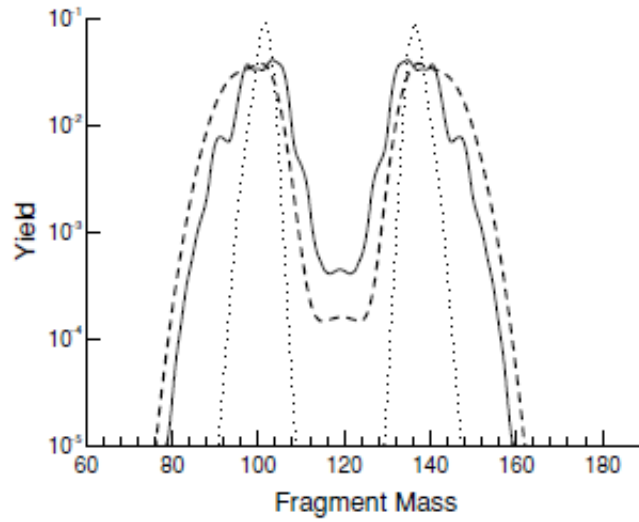


FIGURE 1.22 – Rendements de fission obtenus avec un calcul statistique (points), avec un calcul dynamique (traits pleins). Les données expérimentales sont représentées par l'évaluation de Wahl [GOU05] (tirés)

Afin de réduire les temps de calculs mis en jeu et d'augmenter significativement la précision sur la prédiction des rendements, on peut se baser sur l'observation de plusieurs «groupes de noyaux» avec leurs caractéristiques propres appelées modes [BRO90]. Un mode doit être vu comme un chemin dans la surface d'énergie potentielle emprunté lors du processus de fission (voir figure 1.23). En effet les rendements sont en général très bien reproduits par 5 gaussiennes qui correspondent à trois modes (deux modes asymétriques et un mode symétrique). Le code GEF repose sur la décomposition en modes des distributions des fragments de fission. Ce type de modèle sera développé beaucoup plus en détails dans le chapitre suivant.

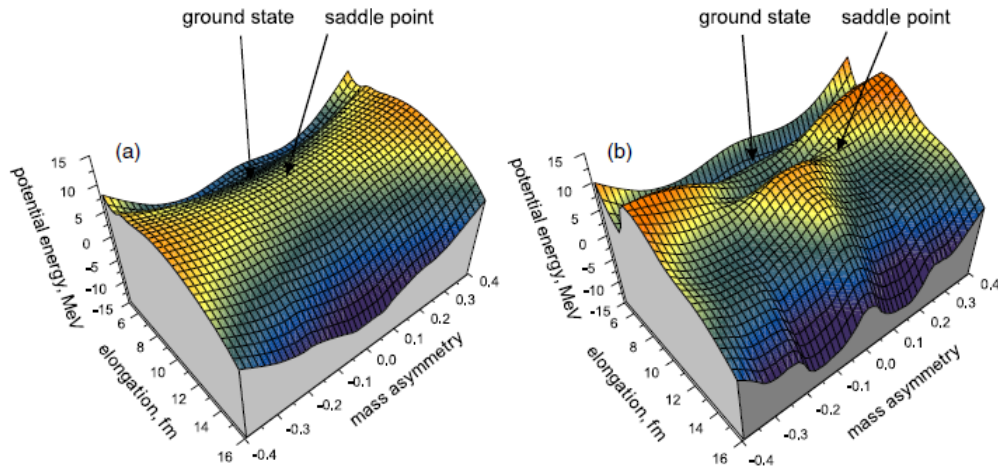


FIGURE 1.23 – Surface d'énergie potentielle sans tenir compte de la structure(gauche) et en tenant compte des corrections de couche (droite)[KAR08]

La précision et la juste prédictibilité sur les rendements obtenues par les différents modèles sont très faibles, la

connaissance du phénomène de fission ainsi que l'industrie nucléaire se reposent donc très largement sur les données expérimentales pour mettre en exergue de nouvelles caractéristiques du processus mais aussi donner des rendements de fission à 1-5% pour les rendements en masse et 5-15% pour les rendements isotopiques.

1.2 Rendements de fission : mesure et utilisation

1.2.1 Les méthodes de mesure des rendements

Trois grands types de techniques de mesure de rendements de fission existent : méthode radiochimique, méthode E-E (ou V-V) et spectrométrie de masse. Si ces trois types ont perduré avec le temps c'est avant tout parce qu'ils sont complémentaires et sont d'ailleurs souvent couplés entre eux.

1.2.1.1 Mesure par radiochimie

L'extraction des rendements par méthode radiochimique consiste en une séparation chimique des produits de fission d'un combustible irradié souvent couplée à une spectroscopie gamma. Elle permet d'identifier un noyau parfaitement y compris pour les noyaux faiblement produits. La normalisation des résultats est cependant souvent un problème. Ces mesures sont souvent les plus anciennes et les plus précises ($\sim 7\%$). Les données de décroissance sont considérées comme fiables car concernant des noyaux à durée de vie longue donc souvent étudiés. Toutefois seuls des rendements cumulés peuvent être extraits compte tenu des temps mis en jeu et des temps de demi-vie des produits de fission.

1.2.1.2 Mesure par méthode E-E et V-V

La méthode E-E (respectivement V-V) consiste à irradier une cible et mesurer en coïncidence l'énergie (e.g vitesse) des fragments émis. Par conservation du moment et de l'énergie totale on obtient les masses après (e.g avant) évaporation. L'obtention des rendements avant évaporation repose sur l'hypothèse d'une vitesse avant et après évaporation identique.

Ces méthodes présentent l'avantage de mesurer l'ensemble de la distribution cependant la très pauvre résolution en masse ($\sigma_A = 2$ a.m.u) conduit ces données à n'être utilisées que pour décrire des comportements généraux. Il est à noter que pendant des dizaines d'années, la méthode V-V a donné, de manière inexplicable, une énergie cinétique des fragments 4 MeV inférieure à celle trouvée par la méthode E-E. Les biais entraînés par ces différentes méthodes seront étudiés lors de la validation de GEF.

1.2.1.3 Mesure avec spectromètre de masse

Le troisième type de mesure est basé sur le recours à un spectromètre de masse, Lohengrin par exemple. Le détail de fonctionnement est décrit beaucoup plus en détail en 2.2.1. Le principal avantage de cette méthode est la résolution en masse qui est inférieure à 1. Les spectromètres étant des appareils ultra sélectifs, la partie symétrique est cependant souvent exclue du domaine d'étude pour des raisons de statistiques.

Afin de comparer ces différentes techniques, les observables mesurées par les méthodes citées précédemment sont comparées dans la table 1.1. L'intérêt principal de la radiochimie est la très grande précision de ces mesures notamment dans la partie symétrique. La méthode 2V est la seule méthode capable de donner la distribution

des fragments avant évaporation. Les mesures avec spectromètre présentent l'avantage de donner des rendements indépendants en masse et en charge nucléaire pour le pic léger (et lourd par spectrométrie gamma).

Techniques	Radiochimie + Spectroscopie Gamma	E-E	V-V	Spectromètre (Lohengrin) + Spectroscopie Gamma
Nombre de fragments mesurés simultanément	1	2	2	1
Rendements indépendants	NON	OUI	OUI	OUI
Rendements cumulés	OUI	NON	NON	NON
Rendements avant évaporation	NON	NON	OUI	NON
Energie Cinétique	NON	OUI	OUI	OUI
Résolution en A	<1	>2	>2	<1
Résolution en Z	1	?	?	<1

TABLE 1.1 – Comparaison des différentes techniques expérimentales de mesure des rendements de fission

Les différentes méthodes donnant des informations très différentes et souvent complémentaires, il est nécessaire de procéder à leur évaluation afin d'obtenir une distribution en rendements de fission exploitable.

1.2.2 De l'utilité des rendements de fission

75% de l'énergie électrique française est d'origine nucléaire. Cette proportion nous garantit notre indépendance énergétique et est souvent source d'exemple pour de nombreux pays. De plus, la France constitue le premier exportateur mondial d'équipements et de services dans le secteur nucléaire. Cependant, cela requiert des réacteurs nucléaires d'une très grande fiabilité et possédant un grand taux de disponibilité. Face à des ressources en ^{235}U (seul noyau fissile naturel) limitées et un nombre croissant de réacteurs, les industriels s'orientent vers les combustibles multirecyclés types MOx et à haut burn-up. A plus long terme, les instituts de recherches étudient des réacteurs de nouvelle génération fonctionnant souvent dans le domaine rapide.

Étudions dans cette sous section plus en détail le rôle des rendements de fission dans l'industrie nucléaire.

Le fonctionnement d'un réacteur repose sur un équilibre fragile entre le nombre de neutrons émis et le nombre de neutrons « consommés » par le combustible. Les neutrons émis correspondent aux neutrons évaporés par les fragments de fission. Le nombre et le spectre de ces neutrons nécessitent donc la connaissance des rendements de fission.

Ces neutrons étant produits quasiment instantanément après la fission et thermalisés en environ $0.5 \mu\text{s}$, le pilotage de la réaction en chaîne via ces seuls neutrons est impossible. La criticité du réacteur est donc obtenue en « attendant » les neutrons retardés ($\sim s$). La multiplicité de ces derniers est calculée en sommant le produit de la probabilité de produire un fragment donné (Y) et la probabilité que ce dernier émette un neutron retardé (P_n). Les précurseurs de neutrons retardés sont peu nombreux, leur connaissance avec une grande précision est donc absolument nécessaire.

Les principaux absorbeurs des neutrons émis par les fragments sont les actinides présents dans le combustible. Cependant certains produits de fission appelés poisons neutroniques ont une influence sur la réactivité du cœur du même ordre de grandeur que l'efficacité de l'ensemble des barres de contrôle du réacteur (jusqu'à quelques milliers de pcm). Ces noyaux, qui n'existent pas lorsque le combustible est neuf, possèdent une section efficace de capture très élevée. A titre d'exemple, les deux poisons neutroniques les plus importants sont le Samarium (^{149}Sm) ($\sigma_c = 5.10^4$ barns) et le Xénon (^{135}Xe) ($\sigma_c = 3.10^6$ barns).

Le fonctionnement d'un réacteur nucléaire nécessite également l'évaluation du taux de fission qui a lieu en son coeur. Cette évaluation peut être effectuée via la mesure de la raie gamma à 1.6 MeV qui provient de la décroissance du ^{140}La (40h). Les prédictions du rendement cumulé du père du ^{140}La le ^{140}Ba , bien qu'affichant une incertitude de l'ordre de 1.5%, ne sont pas compatibles entre les différentes bases de données [BAI09].

L'accident de Fukushima a également permis de mettre en exergue l'importance de la puissance émise par les fragments de fission après arrêt du réacteur (puissance résiduelle). Elle peut être calculée en sommant les produits des activités des produits de fission, i.e, leur rendement (Y) et l'énergie émise par leur désexcitation (γ et β). Différentes études ont analysé l'impact des incertitudes des rendements sur la puissance résiduelle. Elles sont présentées plus en détail §2.2.5.1.

Que cela soit le nombre de neutrons retardés, le nombre de neutrons absorbés par les poisons neutroniques ou la puissance résiduelle, on constate que les rendements jouent un rôle très important mais que la connaissance de ces grandeurs nécessite également de porter un effort sur la mesure et l'évaluation d'autres types de données (P_n , σ_c , I_γ , ...)

L'industrie nucléaire ne peut utiliser directement les données expérimentales, ces dernières doivent être rassemblées, évaluées, complétées et formatées afin d'être introduites dans les simulations. La base de données expérimentales (EXFOR) a pour vocation de répertorier toutes les données expérimentales et les conditions de prise de données. Les bases de données évaluées les plus complètes sont : JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion, Européenne), ENDF (Evaluated Nuclear Data File, Américaine) et JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Japonaise).

Bien que les données expérimentales utilisées par les différents évaluateurs soient souvent les mêmes et que les modèles utilisés pour les compléter soient similaires, les données expérimentales ne sont pas assez nombreuses et pas assez précises pour permettre de contraindre suffisamment les rendements de fission de certains noyaux comme pour l' ^{242}Am figure 1.27. La précision de ces rendements n'est souvent pas suffisante pour les applications industrielles.

Les chapitres suivants ont pour but de présenter les rendements mesurés pour l' ^{242}Am (chapitre 3 à 7) mais également de montrer l'amélioration et la validation d'un code de fission afin qu'il soit utilisé dans le cadre des évaluations.

1.3 Américium 242

La section qui suit dresse l'état de l'art des connaissances sur la fission de l' ^{242}Am .

1.3.1 Informations générales

L' ^{242}Am présente un état métastable et un état fondamental. Ses schémas de niveaux sont présentés figure 1.24. Comme on peut le voir :

- l'isomère a une demi-vie bien plus élevée que le fondamental : 16h pour le fondamental et 141 ans pour l'isomère
- l'énergie qui les sépare est très faible : 48,6 keV
- le changement de spin est de 4 unités : 1^- pour le fondamental et 5^- pour l'isomère [ASA60]
- aucun changement de parité.

				[LET11]
$^{242m}\text{Am} + n$	$6.6 \cdot 10^5 (9/2)$ $7.6 \cdot 10^5 (11/2)$	$7.1 \cdot 10^5$	6400	5972 ± 173
$^{242gs}\text{Am} + n$	$1.44 \cdot 10^5 (3/2)$ $2.85 \cdot 10^5 (5/2)$	$2.2 \cdot 10^5$	2095	1751 ± 55
$^{242m}\text{Am} + n / ^{242gs}\text{Am} + n$		3.3	3.1	3.4

TABLE 1.2 – Densité de niveau de l' ^{243}Am pour différents spins (RIPL3) et sections efficaces de fission en thermique de l' ^{242}Am

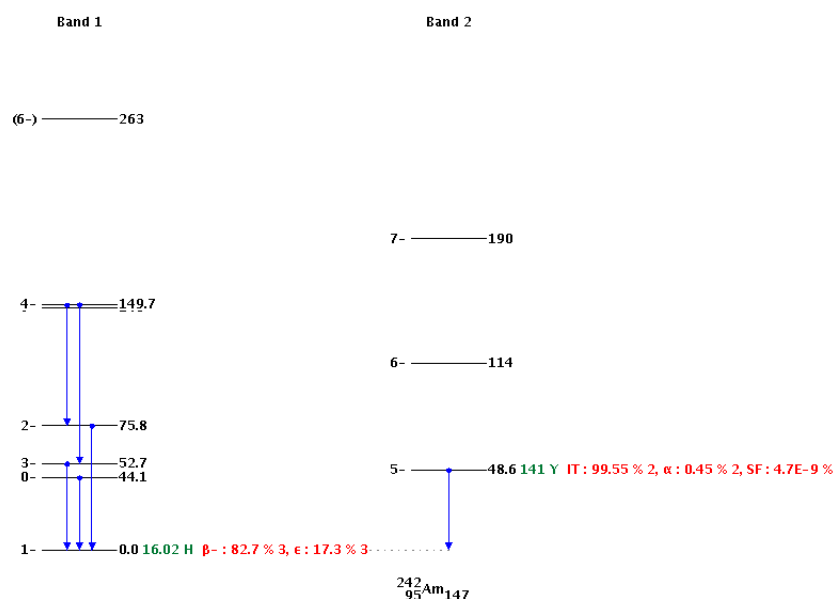
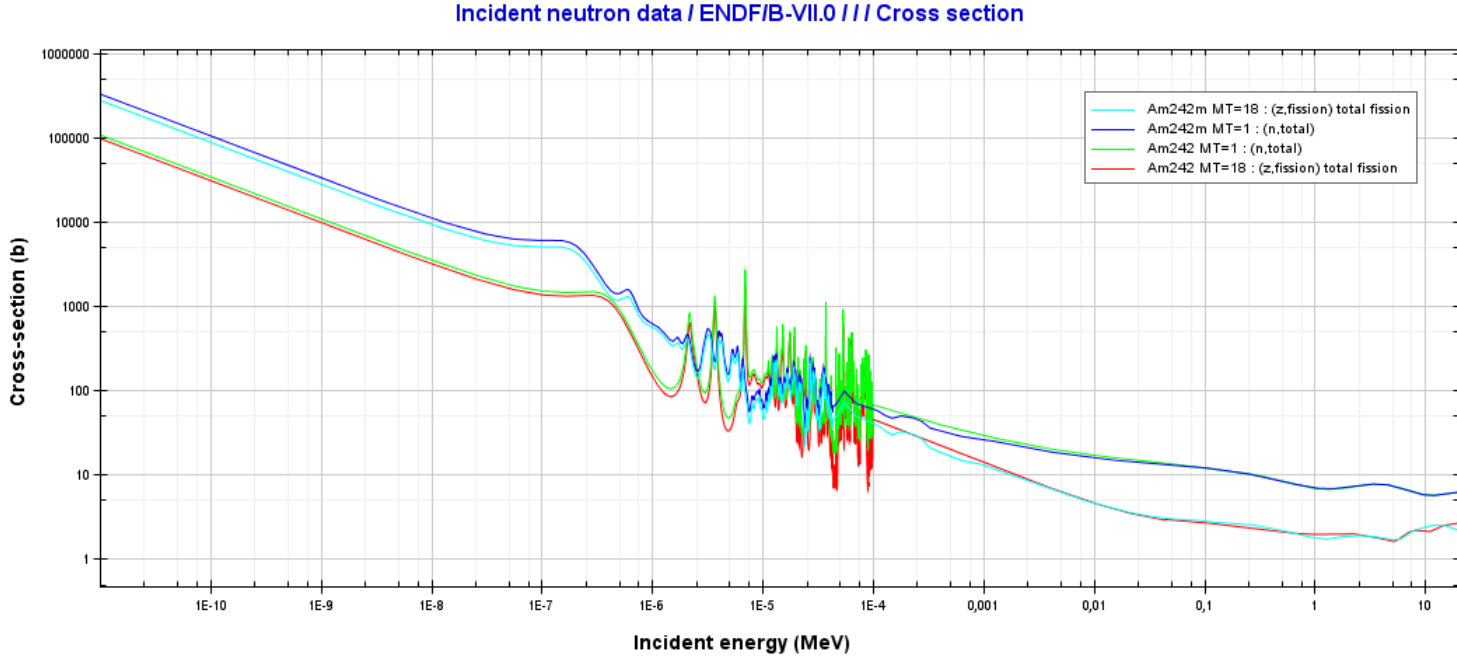


FIGURE 1.24 – Schéma de niveau de l' ^{242}Am

Cette différence de spin entre les deux états entraîne une différence non négligeable dans les sections efficaces à basse énergie comme illustré figure 1.25. Après absorption d'un neutron l' ^{242}Am forme un noyau d' ^{243}Am avec un spin de 9/2 ou 11/2 si ^{242}Am était dans son état isomérique et 3/2 ou 5/2 si il était dans son état fondamental. D'après RIPL3 [CAP09], il existe un rapport 3.3 entre les densités de niveaux à (9/2-11/2) et (3/2-5/2) ce qui est en accord avec le rapport des sections efficaces de fission données par les bases de données et trouvées expérimentalement comme indiqué tableau 1.2.

La section efficace de fission est l'observable de la voie d'entrée du processus de fission.

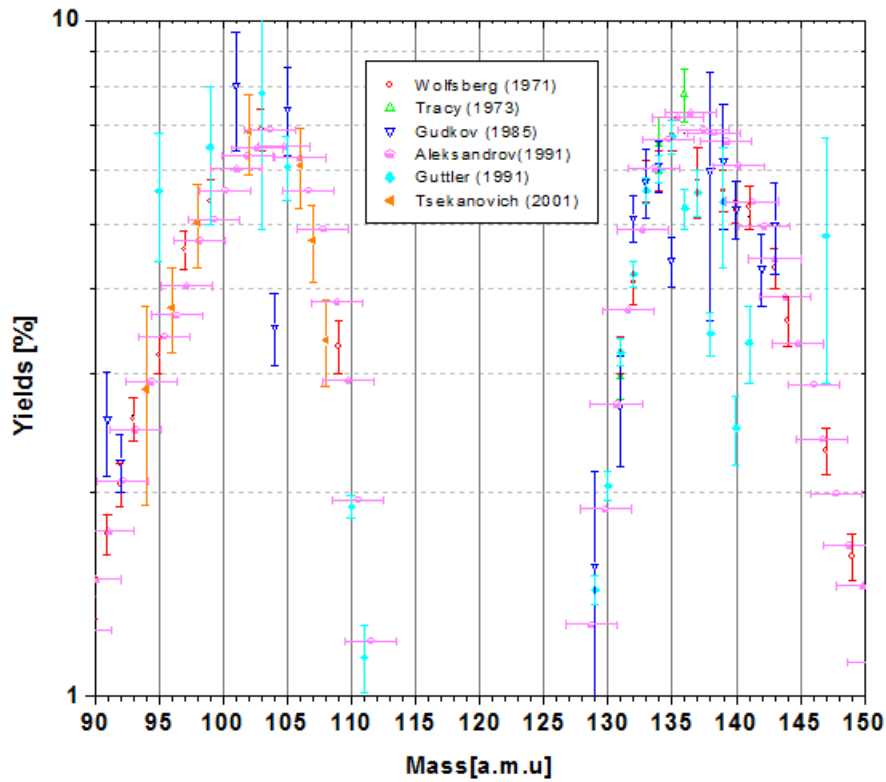
FIGURE 1.25 – Sections efficaces de l' ^{242m}Am et $^{242\text{gs}}\text{Am}$

Les rendements et les distributions en énergie des fragments sont quant à eux les principales observables de la voie de sortie du processus. A ce jour aucun rendement issu de la fission de l'état fondamental n'a été mesuré compte tenu de sa faible durée de vie qui ne permet pas la fabrication de cible de $^{242\text{mgs}}\text{Am}$. On ne peut donc pas réaliser de comparaison entre les rendements issus de la fission des deux différents états.

1.3.2 Etat de l'art des rendements de l' ^{242m}Am

Le paragraphe qui suit va dresser l'état de l'art de la connaissance des rendements de l' ^{242m}Am . Les rendements mesurés sont présentés figure 1.26. La mesure la plus ancienne mais aussi la plus précise a été réalisée par Wolfsberg en 1971. Les rendements ont été déterminés par spectroscopie gamma après séparation radiochimique. Le second jeu a été obtenu par Tracy en 1973 par spectrométrie en masse. Ces deux jeux de données sont ceux utilisés par les évaluations de JEFF et ENDF. Gudkov a obtenu des rendements par spectroscopie gamma cependant certaines masses comme la 104 et la 135 sont incompatibles avec la forme générale des rendements. L'expérience présentée dans cette thèse n'est pas la première réalisée à Lohengrin. Guttler en 1991 et Tsekanovich en 2001 ont obtenu des résultats cependant ces derniers présentent de grandes incertitudes et sont incompatibles avec les précédents. Des pistes d'explication de ces différences seront données dans la partie 6.2.1. La seule mesure par temps de vol a été réalisée par Aleksandrov en 1991 cependant la région de masse 135-140 présente une tendance différente de celle obtenue par Wolfsberg.

Les rendements isotopiques ne sont connus que pour dix noyaux. Comme indiqué dans [MIL90] « il serait souhaitable d'avoir des mesures des rendements cumulés du ^{140}Ba , ^{97}Zr , ^{132}Te et ^{135}I afin de lever les incohérences. Plus de rendements isotopiques sont nécessaires afin de contraindre les paramètres des distributions en charge ». Ces recommandations ont orienté le choix des rendements mesurés dans le cadre de cette thèse.

FIGURE 1.26 – Rendements en masse de l' ^{242m}Am

Intéressons-nous à présent aux différentes évaluations. Seules JEFF 3.1.1 et ENDF/B-VII présentent des rendements pour l' ^{242m}Am comme indiqué figure 1.27. Bien que basées sur les mêmes données, les évaluations donnent des résultats très différents sur la région des masses légères. La mesure réalisée dans le cadre cette thèse devra permettre de discriminer. La comparaison a également été effectuée avec le modèle GEF auquel le chapitre suivant a été consacré. Comme on peut le voir ce dernier reproduit très bien les données.

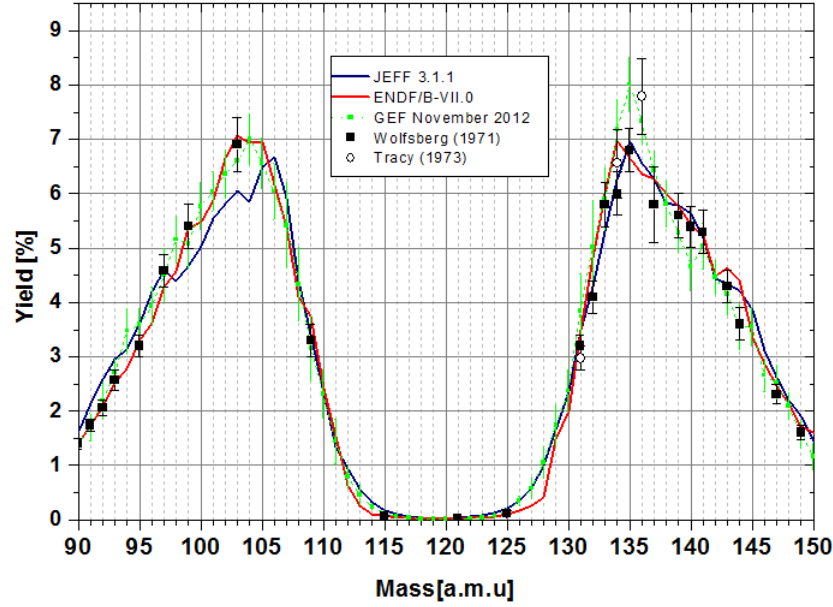


FIGURE 1.27 – Rendements en masse de ^{242m}Am . Les données expérimentales utilisées pour l'évaluation sont indiquées par les symboles. Les traits rouge et bleu correspondent aux évaluations et le trait vert correspond aux prédictions du code semi-empirique GEF

Ainsi la mesure de ^{242}Am est motivée par trois raisons principales :

- compléter nos connaissances des rendements et discriminer les deux évaluations sur le pic léger.
- étudier l'influence du spin sur la voie de sortie. Le chapitre 7 sera consacré à cette étude et aux mesures réalisées dans le cadre de cette thèse pour observer une éventuelle différence entre les rendements du fondamental et de l'isomère.
- Mesurer l'effet pair-impair d'un noyau à charge impaire. Comme indiqué §1.1.2.6, les noyaux composés à charge impaire devraient présenter sur le pic lourd un effet pair-impair négatif. La mesure des rendements isotopiques avait également pour but de mesurer cet effet.

Chapitre 2

Le code de fission GEF

Comme indiqué dans le chapitre précédent les modèles actuels de fission ne permettent pas de prédire les rendements de fission avec la précision requise par l'industrie nucléaire. Le recours à des modèles semi-empiriques est donc souvent privilégié par la communauté. La précision atteinte de nos jours par le code présenté dans ce chapitre lui permet de prétendre à devenir un outil d'évaluation [SCH14]. Dans la section 2.1 je vais expliquer le principe, les principales hypothèses et les modèles inclus dans ce code. L'étude sera plus approfondie sur les observations mesurables à Lohengrin i.e, les rendements $Y(A, Z, I)$ et les énergies cinétiques et moins de détails seront donnés sur les particules émises. Ces précisions peuvent être trouvées dans [SCH14]. La validation du code sur un grand jeu d'observables (rendement, énergie cinétique, rapport isomérique, puissance résiduelle ...) sera présentée section 2.2. Ce chapitre aura pour dernière section l'extension du code au domaine $E_n = 6MeV - 20MeV$ ainsi que la validation, à ces énergies, des rendements prédits .

2.1 Principe

Le code GEF développé par K-H Schmidt et B. Jurado est un modèle de fission semi-empirique ayant pour but de reproduire voire prédire les observables de la fission (rendements de fission, neutrons évaporés,...) avec précision en se basant sur des principes physiques. Le modèle est basé sur les modes de brosa [BRO90]. Les principaux modes utilisés dans GEF sont présentés table 2.1.

Le premier mode standard I (SI) correspond à un mode centré autour de la fermeture de couche ($Z \sim 52$). Le fragment lourds est sphérique donc l'énergie cinétique est élevée. Ce mode a une contribution très variable mais toujours minoritaire. Le mode majoritaire est le mode standard II (SII) centré sur $Z=54-55$ [Boe08], il correspond à des fragments déformés. La déformation à la scission, qui est beaucoup plus importante que la déformation des fragments dans leur fondamental, y est représentée de manière très simplifiée par $\beta = aZ + b$ où a et b sont ajustés sur le nombre de neutrons évaporés en fonction de la masse. a et b sont différents pour chaque pic avec une grande discontinuité vers $Z=50$ où la déformation est très faible. Le chemin symétrique correspond à des fragments très déformés. Pour les actinides lourds, le poids de ce mode est très faible et augmente avec l'énergie d'excitation du noyau composé.

Nom du mode	SL	SI	SII
Point central du mode	symétrie	Z=52 (A~134)	Z=55 (A~140)
Déformation des fragments	Grande	Faible	Moyenne $\beta = aZ + b$
Energie cinétique	Faible	Très grande	Moyenne
Poids relatifs des modes [%] (ex : $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$; $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$)	0.2 ; 0.2	0.8 ; 7.9	99 ; 90.7

TABLE 2.1 – Les différents modes et leurs principales caractéristiques

Une étude temporelle du phénomène a révélé que l'asymétrie en masse était fixée proche du point selle [RUS97, KAR01] alors que le rapport N/Z était déterminé plus tard i.e. au point de scission [MYE81, KAR02].

2.1.1 Asymétrie en masse

Le point de départ de ce code Monte Carlo est la détermination de l'asymétrie de la distribution en masse au point selle. Le potentiel macroscopique en fonction de l'asymétrie est calculé via le modèle de la goutte liquide équation 1.3 et 1.4. Il est à noter que la goutte liquide favorise une certaine déformation à cause de la compétition entre la force coulombienne et la tension surfacique. On obtient ainsi un potentiel en a^2 où a est l'asymétrie. Pour chaque mode, on creuse le potentiel macroscopique par un puits caractérisé par sa profondeur δU et son Z moyen $\bar{Z}$ qui traduit les effets de structure du mode.

Les puits sont centrés comme suit :

$$\bar{Z}_{s1} = 51.5 + 25.0 * \left(\frac{Z_{CN}^{1.3}}{A_{CN}} - 1.5 \right)$$

$$\bar{Z}_{s2} = 53.4 + 21.67 * \left(\frac{Z_{CN}^{1.3}}{A_{CN}} - 1.5 \right)$$

Le mode S1 étant dû à un noyau doublement magique en Z et en N, son effet diminue lorsque le rapport N/Z s'éloigne de celui de ^{132}Sn . Ainsi

$$\delta U_{eff, S1} = -1.8 * \left| 1 - 4.5 * \left(\frac{82}{50} - \frac{N_{cn}}{Z_{cn}} \right) \right|$$

La valeur de 1.8 correspond à la somme de l'effet de couche $\delta U = -4.6 \text{ MeV}$ et de la différence entre le potentiel de la goutte liquide qui favorise une déformation non nulle et celui d'une déformation nulle (^{132}Sn est sphérique) : $\Delta U_{mac} = 2.8 \text{ MeV}$.

Les corrections de couches dues aux autres modes sont indépendantes du noyau fissionnant.

$$\delta U_{S2} = -4.0 \text{ MeV}$$

$$\delta U_{SL} = 0.0 \text{ MeV} \text{ puisque ce mode n'est pas dû à des effets de couches.}$$

La largeur des différents modes est modélisée par une parabole pour S1 de courbure 0.3. Le mode S2 est paramétré par la convolution d'une porte de largeur $\Delta Z = 5.6$ avec une parabole à gauche de courbure 0.174 et une parabole à droite de courbure 0.095. Cette forme est cohérente avec les calculs réalisés par [WIL76].

L'énergie potentielle U obtenue pour différents noyaux est présentée figure 2.1 pour le mode standard II. Les corrections de couches sont identiques pour tous les noyaux fissionnants d'après le principe de séparabilité puisqu'elles

resultent d'effets de structures des fragments de fission [MOS71]. Cependant, l'énergie macroscopique (goutte liquide déformée) varie significativement en fonction du Z du noyau composé. On observe ainsi $U_{\text{symétrie}} < U_{\text{asymétrie}}$ pour les noyaux légers alors que pour les noyaux à Z plus élevés $U_{\text{symétrie}} > U_{\text{asymétrie}}$. Ces calculs sont en accord avec une fission symétrique pour les Z faibles et une fission asymétrique pour les noyaux à Z plus élevés.

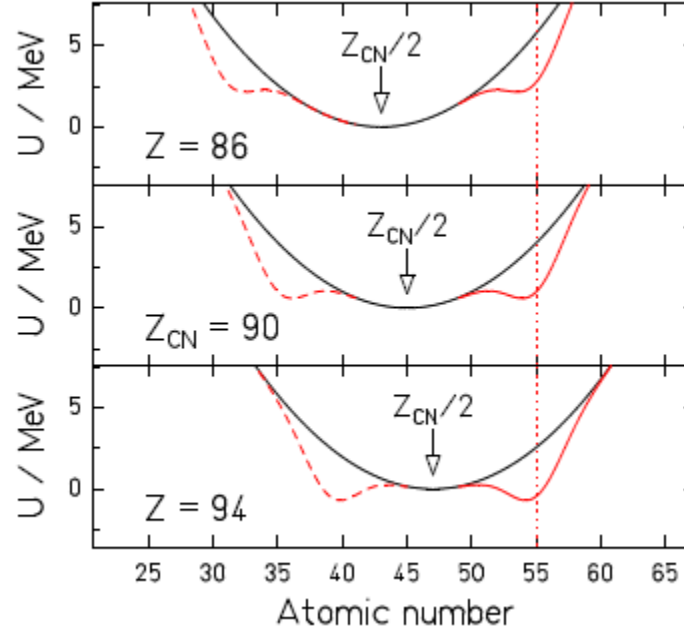


FIGURE 2.1 – Energie potentielle du mode standard II en fonction du Z du fragment pour différents noyaux pères. Les traits noirs correspondent au potentiel macroscopique et les lignes rouges à la somme du potentiel macroscopique et des effets de couches [SCH14] d'après une idée de [ITK85]

De plus, les effets de couches diminuent avec l'énergie d'excitation. Cela se traduit par un décalage des minima de la somme du potentiel macroscopique et des puits dus aux effets de couche, donc des pics, comme illustré de manière très schématique figure 2.2.

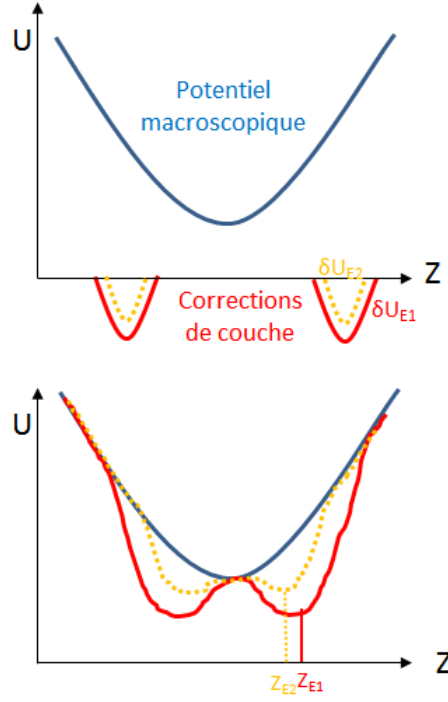


FIGURE 2.2 – Energie potentielle macroscopique et effets de couches (δU) (haut) et leur somme pour deux énergies d'excitation E_1, E_2 telles que $E_2 > E_1$

2.1.2 Conversion de Z en A

Les modes sont décrits en Z ainsi il est nécessaire de « convertir » en masse afin de déterminer les distributions en masse. La conversion est réalisée au moyen de UCD (unchanged charged density) polarisé.

En effet figure 2.3, on observe que le fragment léger a tendance à avoir un demi-proton supplémentaire par rapport à Z_{UCD} . Il a été noté que l'énergie macroscopique pour des fragments déformés est minimale pour une charge Z_{GL}^- tel que $Z_{GL}^- > Z_{UCD}$ pour les fragments légers et $Z_{GL}^- < Z_{UCD}$ pour les fragments lourds. Toutefois la polarisation entraînée par la minimisation du potentiel macroscopique ($Z_{GL}^- - Z_{UCD}$) est inférieure à celle observée expérimentalement ($Z_{exp}^- - Z_{UCD}$); une polarisation supplémentaire est donc introduite.

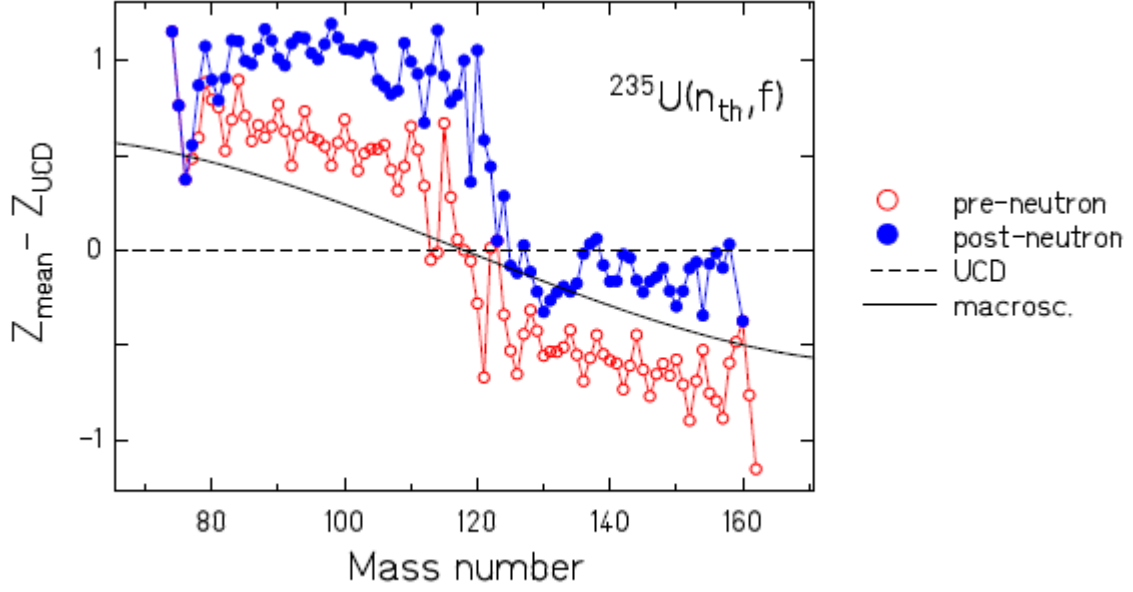


FIGURE 2.3 – Charge moyenne en fonction de la masse du fragment pour le système $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$. Les tirés correspondent à UCD, la ligne en trait plein à $Z_{\text{GL}} - Z_{\text{UCD}}$. Les symboles correspondent aux valeurs expérimentales avant évaporation (symboles ouverts) et après évaporation (symboles fermés)

2.1.3 Répartition de l'énergie

2.1.3.1 Energie d'excitation et énergie cinétique

Le bilan en énergie déterminant les propriétés des fragments est réalisé au point de scission. Le code GEF calcule l'énergie d'excitation intrinsèque E_{intr}^* , l'énergie de déformation des fragments $E_{\text{deformation}}$. L'énergie cinétique totale des fragments TKE est extraite par conversion de l'énergie totale à partir du calcul de l'énergie d'excitation et de l'énergie de déformation.

L'énergie d'excitation intrinsèque E_{intr}^* est calculée au point de scission et est obtenue en sommant trois énergies :

- L'énergie d'excitation initiale E_B^* définie comme la différence entre l'énergie d'excitation du noyau composé et la barrière extérieure. En effet comme mentionné §1.1.2.5, l'énergie cinétique n'étant pas ou peu affectée par l'augmentation d'énergie d'excitation du noyau composé on peut émettre l'hypothèse que le supplément d'énergie donné au noyau composé est inclus dans sa totalité dans l'énergie d'excitation E_{intr}^* .
- L'énergie intrinsèque acquise grâce à la dissipation entre le point selle et le point de scission. Cette énergie a été évaluée [ASG84] à 35% (paramètre dans GEF) de l'énergie potentielle entre le point selle et le point de scission. Cette dernière est modélisée comme suit :

$$\Delta E_{\text{pot}} = 0.08(Z_{\text{CN}}^2/A_{\text{CN}}^{1/3} - 1358) + 11 \quad (2.1)$$

- L'énergie collective $E_{\text{coll}} = 0.065 * \Delta E_{\text{coll}}$

$$\Delta E_{coll} = 0.08(Z_{CN}^2/A_{CN}^{1/3} - 1390) + 11$$

A titre d'exemple pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ nous avons :

- $E_B^* = 0.6$ MeV
- $E_{dis} = 4.2$ MeV
- $E_{coll} = 0.6$ MeV

donc $E_{intr}^* = 5.4$ MeV.

La détermination de la répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments va influencer la détermination de l'effet pair-impair. Cette dernière notée $E_{deformation}$ est obtenue directement à partir de la formule de la goutte liquide.

2.1.3.2 Répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments

Comme détaillé §1.1.2.5, les particules évaporées nous renseignent sur l'énergie d'excitation totale des fragments $E^*_{fragments}$

$$E^*_{fragments} = E^*_{intr} + E_{deformation}$$

On a également :

$$E^*_{fragments} = \nu_n * (\bar{\varepsilon}_n + S_n) + M_\gamma * \bar{E}_\gamma$$

De plus, le noyau favorisant lors de la désexcitation l'émission de neutrons à celle de gamma on obtient :

$$\nu_n * \varepsilon_n > M_\gamma * E_\gamma$$

L'énergie des neutrons émis ne dépend pas de l'énergie d'excitation (hypothèse de thermalisation du noyau). Ainsi le nombre de neutrons nous renseigne directement sur $E^*_{fragments}$.

Cependant $E_{deformation} \gg E^*_{intr}$, il est donc difficile d'observer expérimentalement la répartition de E^*_{intr} via $\nu_n(A)$.

L' énergie de déformation est reliée de manière directe à la déformation des fragments qui est elle-même reliée directement à TKE. La très faible (moins de 1%) variation de l'énergie cinétique totale avec l'énergie incidente du neutron nous indique une déformation des fragments indépendante de l'énergie d'excitation $E^*_{fragments}$. Ainsi la mesure de $\nu_n(A)$ pour des énergies de neutrons incidents différentes nous permet d'obtenir par différence la répartition de E^*_{intr} entre les fragments en fonction de A.

Les mesures réalisées par Naqvi [NAQ86] (cf figure 2.4) ont fait apparaitre que le nombre moyen de neutrons évaporés $\bar{\nu}_n$ par le fragment léger était très peu influencé par l'augmentation de $E^*_{fragments}$ ce qui n'est pas le cas pour le fragment lourd. On conclut donc que ce dernier s'approprie l'essentiel de E^*_{intr} .

Les développeurs de GEF ont essayé de trouver l'origine de ce phénomène [SCH10b]. Au point de scission, les deux noyaux sont en contact thermique. Si on se place dans le modèle d'un gaz de Fermi où la température est reliée en première approximation de manière quadratique à l'énergie d'excitation alors $E^*_{intr} \sim \bar{a}T^2$ avec $\bar{a} = A/13$. Une égalité des températures se traduit donc par $E_1^* = \frac{A_1}{13} * T^2$ et $E_2^* = \frac{A_2}{13} * T^2$ avec $A_1 + A_2 = A_{cn}$ on obtient

$$E^*_{1,intr} = (A_1/A_{cn}) * E^*_{intr}$$

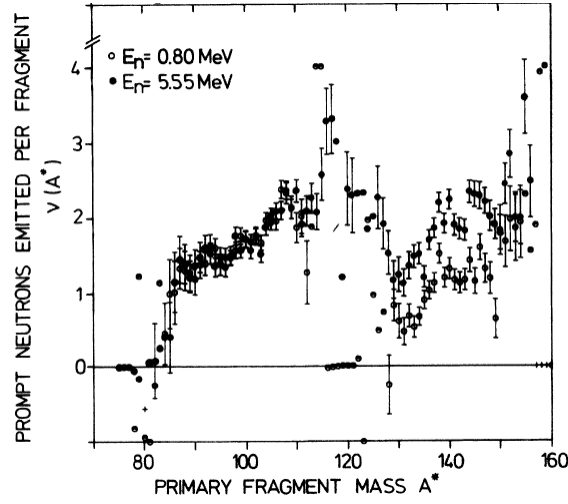


FIGURE 2.4 – Nombre moyen de neutrons évaporés en fonction de la masse du fragment [NAQ86]

et

$$E_{1,intr}^* / E_{2,intr}^* = A_1 / A_2$$

La répartition entre le lourd et le léger est donc indépendante de l'énergie d'excitation initiale; ce qui est en contradiction avec l'expérience.

Il a été observé expérimentalement que les densités de niveaux issues du modèle du gaz de Fermi étaient dans l'incapacité de reproduire les densités expérimentales à faible énergie d'excitation à cause d'interactions résiduelles entre les particules (e.g le pairing). Gilbert et Cameron [GIL65] ont donc développé un modèle où la température des densités de niveaux est constante. Egidy et al [EGI08] ont obtenu la dépendance suivante de T avec le A du fragment et la correction de couche S

$$T = A^{-2/3}(17.45 - 0.51S + 0.051S^2) \quad (2.2)$$

Comme T ne dépend pas de E^* , deux fragments ne peuvent donc pas avoir la même température. L'équilibre thermique n'est donc pas réalisé en égalisant les températures. Il est réalisé en accumulant toute l'énergie d'excitation dans le fragment lourd puisque la dépendance en $A^{-2/3}$ confère à ce dernier une température inférieure. Ceci est en accord avec les données expérimentales [NAQ86].

Dans le cas de noyaux magiques comme pour l' ^{132}Sn (mode S1), les corrections de couches sont très importantes, le fragment lourd a donc une température inférieure à celle du léger et l'énergie d'excitation se retrouve au niveau du fragment léger. Toutefois, le rendement de ce mode est très petit et on ne voit pas dans les données.

Si on se place dans l'hypothèse d'un équilibre statistique i.e. tous les états disponibles sont peuplés avec la même probabilité alors :

$$\langle E_1 \rangle = \frac{\int E_{1,intr}^* \rho_1(E_{1,intr}^*) \rho_2(E_{fragments,intr}^* - E_{1,intr}^*)}{\int \rho_1(E_{1,intr}^*) \rho_2(E_{fragments,intr}^* - E_{1,intr}^*)}$$

où E_1 est l'énergie d'excitation intrinsèque du fragment 1.

2.1.4 Largeurs

Un des problèmes récurrents des différents modèles de fission sont les largeurs des différentes distributions. La modélisation de la valeur de la largeur dans GEF reprend la dépendance de la largeur d'une coordonnée collective caractérisée par un potentiel de forme parabolique

$$U = \frac{1}{2}Cq^2$$

Dans l'hypothèse du modèle microcanonique statistique avec considération quantique [SCH14] on obtient :

$$\sigma_q^2 = \frac{\hbar\omega}{2C} \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2T}\right) \quad (2.3)$$

où $\hbar\omega$ correspond à l'écart entre deux niveaux d'énergie et T à la température du système.

A haute température (i.e haute énergie d'excitation dans le cadre du modèle de fermi) σ_q^2 devient

$$\sigma_q^2 = \frac{\sqrt{E/a}}{C}$$

Cette largeur est en accord avec les observations expérimentales à haute énergie d'excitation pour le mode symétrique. De plus les calculs théoriques [RUS99] montrent une dépendance de C avec Z^2/A comme observé expérimentalement.

Cependant cette approximation est fautive dans le cas de la fission thermique (i.e à faible énergie d'excitation). En effet, l'équation 2.1.4 devient dans le cas où $T \ll \hbar\omega$

$$\sigma_q^2 = \frac{\hbar\omega}{2C} \quad (2.4)$$

Cette largeur est associée au «zéro point motion». Les calculs théoriques ont révélé que pour la fission symétrique en thermique $T \sim \hbar\omega$, l'approximation du zéro point motion s'applique [SCH14].

A titre d'exemple, l'ordre de grandeur, dans le cas de la fission asymétrique est $T \sim 0.5 \text{ MeV}$ et $\hbar\omega \sim 3 \text{ MeV}$ pour S1 et $\hbar\omega \sim 9 \text{ MeV}$ pour S2. Bien que ces valeurs diffèrent d'un modèle à l'autre, on peut postuler raisonnablement que les largeurs ne dépendent donc pas de l'énergie d'excitation. Ceci est cependant en contradiction avec les expériences où une faible augmentation est observée (voir figure 2.5).

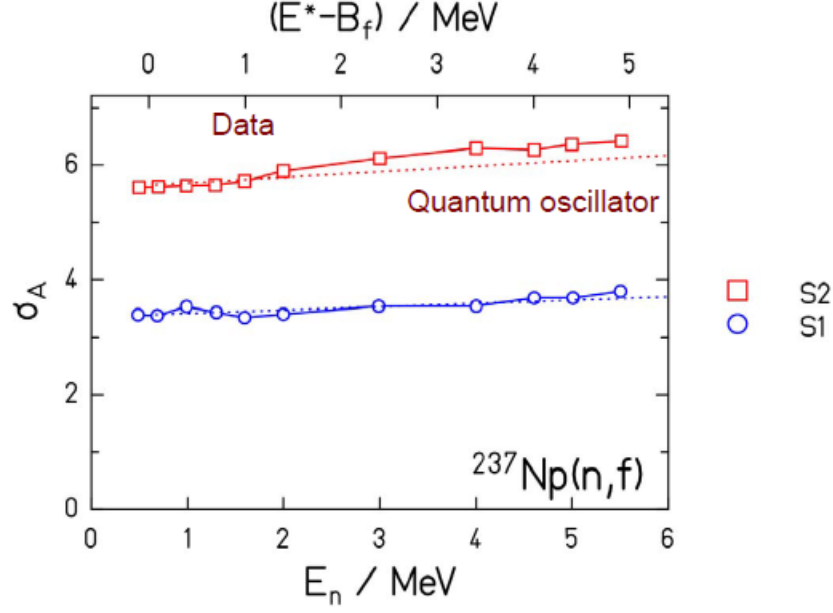


Figure 2.5 – Largeur des distributions en masse du $^{237}\text{Np}(n,f)$. Les données expérimentales sont extraites de [HAM00]. Les pointillés correspondent au calcul de l’oscillateur harmonique [SCH14]

Toutefois dans le cas d’un effet de couche on peut réécrire C tel que $C = d^2U/dx^2$. Ainsi lorsque l’énergie d’excitation augmente l’effet de couche diminue donc C diminue légèrement et d’après l’équation 2.4 σ_q^2 augmente. Il existe donc bien une faible augmentation de la largeur avec l’énergie d’excitation. Ces deux régimes sont inclus dans GEF pour décrire la largeur des distributions en masse en fonction de l’énergie d’excitation initiale.

2.1.5 Effet pair impair proton

Comme indiqué §1.1.2.6, l’effet pair impair est caractérisé par une diminution de son amplitude avec le paramètre coulombien du noyau composé et une augmentation avec l’asymétrie entre les fragments. La diminution de son amplitude avec le paramètre coulombien est incluse dans le calcul de l’ E_{*intr} au travers de l’énergie de dissipation (equation 2.1). En effet si ΔE_{pot} augmente (eq.2.1) avec $Z_{CN}^2/A_{CN}^{1/3}$ alors l’énergie intrinsèque augmente également. Il y aura donc davantage d’énergie disponible pour briser des paires de protons, diminuant ainsi l’effet pair-impair.

La dépendance avec l’asymétrie entre les fragments prend pour les développeurs du code son origine dans l’« energy sorting » [SCH10b] déjà présenté §2.1.3.2. Dans le modèle statistique où chaque état est peuplé avec la même probabilité, la probabilité d’avoir un fragment 1 et un fragment 2 est égale à :

$$p(F1, F2) = \frac{1}{p_{tot}} \int_0^{E_{*intr}} \rho_1(E1) \rho_2(E_{*intr} - E1) dE1$$

où p_{tot} est la probabilité de fissionner et ρ_i les densités de niveaux des noyaux.

Les densités de niveaux à haute énergie d’excitation doivent être identiques pour un noyau à Z pair et Z impair (avec des charges proches) quand on soustrait l’énergie d’appariement qui fluctue systématiquement de ΔE . Les densités sont donc considérées shiftées dans le modèle GEF (cf figure 2.6).

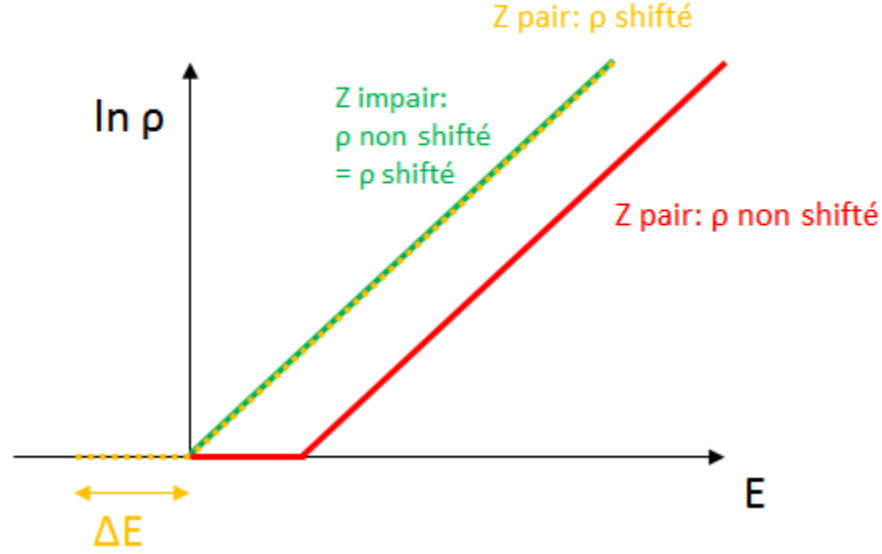


FIGURE 2.6 – Densités de niveaux pour deux fragments Z pair et Z impair ayant la même masse. Afin d’obtenir la même densité de niveaux à haute énergie d’excitation les densités des noyaux pairs sont shiftées

Les densités de niveaux $\rho = \rho_0 \exp(-E^*/T)$ présentent une pente plus élevée pour les noyaux lourds à cause de la dépendance en $A^{2/3}$ au niveau de l’exponentielle. Ainsi le transfert d’une même quantité d’énergie correspond à un nombre plus grand d’états dans le noyau lourd ; or la probabilité d’avoir un fragment est d’autant plus grande que le nombre de niveaux est élevé, on a donc tendance à avoir $E_{léger} \rightarrow 0$ et $E_{lourd} \rightarrow E_{intr}^*$

Deux noyaux pairs et impairs qui ont la même masse ont quasiment le même nombre d’états peuplés. Contrairement au noyau impair, le noyau pair possède des niveaux dans le shift en énergie ΔE (voir figure 2.7). La population de cette zone en énergie correspond à l’effet pair-impair.

Pour une même énergie E_{intr}^* , les fragments impairs ont un plus grand nombre d’états peuplés comme illustré figure 2.7. Un fragment lourd impair est donc privilégié. Le surplus d’états peuplés (par rapport à un noyau pair) est d’autant plus grand que la masse est élevée. L’effet pair-impair augmente donc avec l’asymétrie du système.

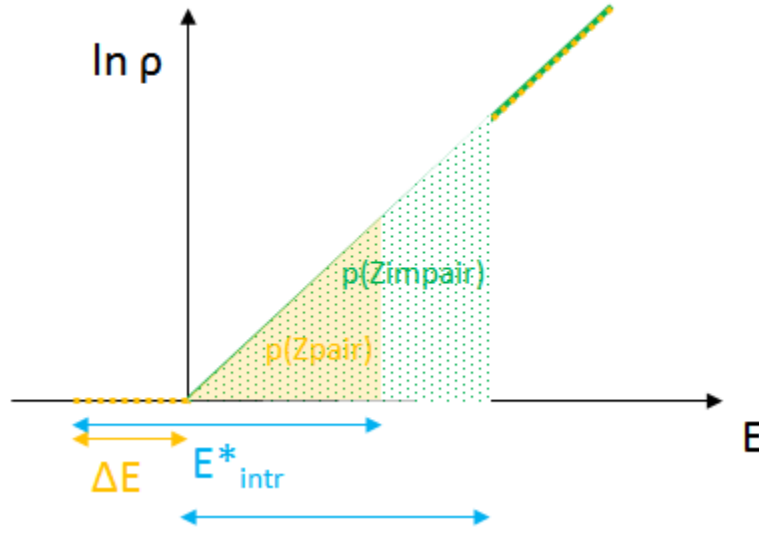


FIGURE 2.7 – Densités de niveaux shiftées pour deux fragments de même masse, l'un ayant une charge paire (orange) et l'autre une charge impaire (vert). Les aires colorées orange et verte correspondent à la probabilité d'obtenir respectivement le noyau Z pair et le noyau Z impaire pour une même énergie d'excitation intrinsèque

2.1.6 Evaporation des neutrons et effet pair-impair neutron

La différence de densité de niveaux à basse énergie induit également un effet pair-impair en neutron cependant l'effet pair impair neutrons mesuré correspond à celui généré par l'évaporation. On observe que l'effet pair-impair en neutrons n'est pas plus important que celui en protons pour la fission thermique mais qu'il persiste aux énergies plus élevées. Dans le code GEF, seul l'effet pair-impair neutron dû à l'évaporation des neutrons prompts est considéré.

L'énergie des neutrons émis par un fragment se répartit selon une distribution maxwelienne ayant pour paramètre la température du noyau. Cette dernière est quasiment identique pour un noyau pair et un noyau impaire avec la même masse (voire eq 2.2).

L'émission d'un neutron requiert donc au minimum une énergie d'excitation $E^* = S_n + \varepsilon_n$ où l'énergie de séparation S_n est plus élevée pour un noyau à N pair. Supposons un noyau à N impaire avec une énergie d'excitation E_a (voir figure 2.8) telle que $E_a > S_n(N) + \varepsilon_n$ mais $E_a < (S_n(N) + \varepsilon_n + S_n(N-1) + \varepsilon_n)$. Le fragment après évaporation aura donc un nombre de neutrons $N-1$ pair. Si maintenant le fragment a une énergie d'excitation E_b (comme indiquée figure 2.8) alors il y a émission de deux neutrons et le fragment final a un N impaire. Puisque $S_n(pair) > S_n(impair)$, les fragments à N pair (aires vertes) sont plus produits que les fragments à N impaire (aires bleues)

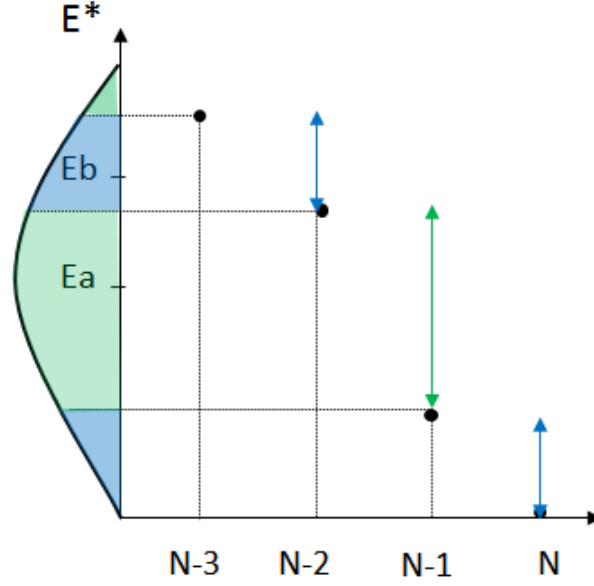


FIGURE 2.8 – Distribution en énergie d’excitation (gauche de l’axe des ordonnées) et nombre de neutrons du noyau (abscisse). La différence d’énergie d’excitation entre deux noyaux correspond en première approximation à S_n . $S_n(N_{Pair}) > S_n(N_{impair})$. La figure présente le cas pour un noyau à N impair

L’effet pair impair neutron ainsi obtenu est cependant trop élevé par rapport à l’effet pair impair neutron observé.

Dans le cas d’un noyau à N pair, on doit cependant considérer un S_n effectif qui est inférieur à S_n mesuré. En effet les premiers niveaux sont très espacés et peu nombreux. Cette diminution de S_n (qui est de l’ordre de 30%) pour les noyaux pairs est implémentée dans GEF de manière artificielle et permet de réduire les effets pairs-impairs. Une description plus précise des effets d’appariement dans les masses et des densités de niveaux devrait permettre de déterminer de manière plus correcte cette diminution. La compétition entre l’évaporation des gamma et celle des neutrons contribue également à modifier cet effet.

Il est à noter que si l’effet pair impair proton diminue avec l’énergie d’excitation, ce n’est pas le cas de l’effet pair impair neutron qui est déterminé par l’évaporation neutron.

2.1.7 Moment angulaire

Il n’existe pas de mesure permettant de déterminer directement le moment angulaire et aucun modèle actuel n’assure la conservation du moment angulaire lors du processus de fission. Les modèles disponibles ont pour point de départ les fragments primaires. L’essentiel des modèles et le modèle GEF ne fait pas exception considère que la distribution en moment angulaire d’un fragment est identique avant et après évaporation. Toutefois dans certains modèles Monte Carlo la desexcitation des fragments primaires utilisant le modèle de Hauser Feshbach tient compte du moment angulaire de l’état initial et final. Il y a donc avec cette dernière approche une différence dans la distribution de spin avant et après émission des neutrons prompts.

L’origine du moment angulaire des fragments a fait l’objet d’un grand nombre de débats. Nix [NIX65] postule que le changement de forme du noyau vers la scission excite des oscillations qui entraînent une rotation des fragments. Cependant cette hypothèse requiert une température des fragments trop élevée et n’explique pas le moment angulaire

non nul des noyaux sphériques. L'idée reprise dans GEF et développée par Kadmsky [KAD08] postule que le principe d'incertitude sur les axes des trajectoires des deux fragments est à l'origine du moment angulaire des fragments. La répartition du moment entre les fragments 1 et 2 est déterminée par la minimisation du coût énergétique de la rotation.

$$E_{rot} = \frac{J_1^2}{2 * I_1} + \frac{J_2^2}{2 * I_2}$$

où I_1 et I_2 correspondent aux moments d'inertie des fragments.

La répartition des moments a été paramétrée comme suit

$$P(J) = (2J + 1) \exp\left(\frac{-J(J + 1)}{2b^2}\right)$$

où b est le paramètre de cut-off et est relié à la largeur de la distribution J_{RMS} via $J_{RMS} = b/\sqrt{2}$

et $J_{RMS} = \sqrt{2I_{eff} * T_{eff}}$ avec $T_{eff} = \sqrt{T_{nuc}^2 + T_{zpm}^2}$ avec T_{nuc} qui correspond à la température reliée à la densité de niveaux nucléaires et T_{zpm} qui correspond à la température du zéro point motion et est ajustée à 0.8 MeV.

Le moment d'inertie I_{eff} correspond au moment d'inertie rigide I_{rigid} d'un noyau déformé pondéré par une dépendance avec l'énergie d'excitation.

$$I_{eff} = I_{rigid} \cdot (1 - 0.8 \cdot \exp(-0.693 * E_{exc}/5 \text{ MeV})),$$

avec pour un fragment de masse A_f et de déformation α à la scission [HAS88]:

$$I_{rigid} = (1.16/\text{fm})^2 \cdot A_f^{5/3} / (103.8415 \text{ MeV}/\hbar^2) \cdot (1 + 1/2 \cdot \alpha + 9/7 \cdot \alpha^2).$$

La dépendance du moment angulaire avec le spin et l'énergie d'excitation du noyau composé a été observée par Naik et est modélisée par

$$J_{rms} = \sqrt{2I_{eff}T_{eff} + J_{CN}^2}$$

avec

$$J_{CN} = \sqrt{J_0^2 + (1/2)^2 + (0.1699A^{1/3}\sqrt{E_{cm}/\text{MeV}})^2}$$

où J_0 est le spin du noyau cible. Le calcul de J_{rms} est une des principales différences entre le modèle de GEF et le modèle de Madland [MAD77]-Rustam [RUD92] utilisé dans les bases de données où la forme de distribution en spin est identique mais où la valeur J_{RMS} , ajustée sur les données est constante, avec la masse du fragment mais varie avec l'énergie incidente du neutron dans le centre de masse E_{cm} .

Le rapport isomérique est déterminé en considérant que les états de spin proches du spin de l'isomère J_m décroissent sur l'isomère et ceux proches du spin du fondamental J_g décroissent sur le fondamental. On considère ainsi si $J_m > J_g$

$$\frac{Y_m}{Y_m + Y_g} = \frac{\int_{J_c}^{\infty} P(J)dJ}{\int_0^{\infty} P(J)dJ}$$

Dans le modèle développé par Madland and England J_c est une fonction de J_m et J_g avec $J_c \approx (J_m + J_g)/2$

Dans le cas du modèle implémenté dans GEF, les développeurs ont voulu prendre en compte la différence d'énergie entre les deux niveaux ainsi

$$J_C = J_1 + \Delta J * (0.5 + 0.5 * \frac{\Delta E / \Delta J}{|\Delta E / \Delta J| + 0.05})$$

On observe ainsi que contrairement au modèle de Madland la gamme en J entre le fondamental et l'isomère peuple principalement l'état avec l'énergie la plus basse.

Prenons deux exemples illustrés figure 2.9 afin d'expliciter cette méthode. L'indice 1 (resp. 2) correspond au spin du noyau à bas (resp. haut) spin.

Exemple A (le fondamental est le niveau de plus faible spin): $J_1 = 2.5$, $E_1 = 0 \text{ MeV}$, $J_2 = 5.5$, $E_2 = 0.13 \text{ MeV}$

$$\Delta J = J_2 - J_1 = 5.5 - 2.5 = 3$$

$$\Delta E = E_2 - E_1 = 0.13 - 0 = 0.13 \text{ MeV}$$

$$J_C = J_1 + \Delta J * (0.5 + 0.5 * \frac{\Delta E / \Delta J}{|\Delta E / \Delta J| + 0.05}) = 2.5 + 3 * (0.5 + 0.5 * \frac{0.13/3}{|0.13/3| + 0.05}) = 4.696$$

$$(J_1 + J_2)/2 = 4.0$$

Exemple B (le fondamental est le niveau de plus haut spin): $J_1 = 0.5$, $E_1 = 0.38 \text{ MeV}$, $J_2 = 4.5$, $E_2 = 0.0 \text{ MeV}$

$$\Delta J = 0$$

$$\Delta E = -0.38 \text{ MeV}$$

$$J_C = 1.189; (J_1 + J_2)/2 = 2.5$$

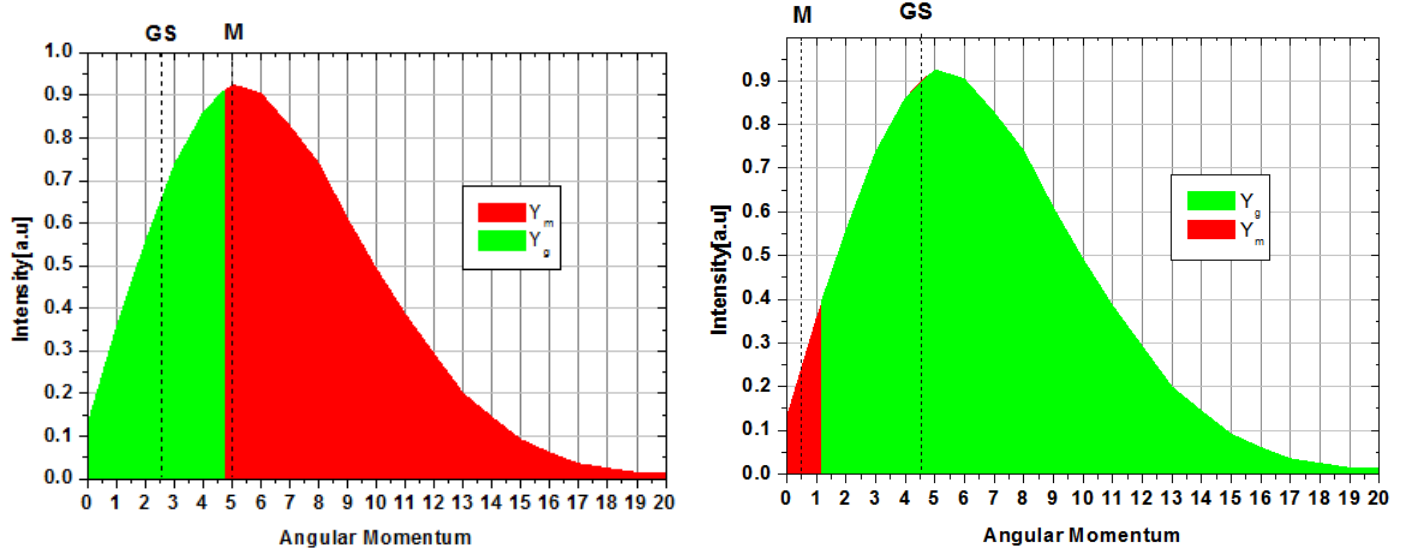


FIGURE 2.9 – Vue schématique de la répartition du moment angulaire entre l'isomère (rouge) et le fondamental (vert). Le rapport de ces deux aires correspond au rapport isomérique

Les deux modèles sont purement statistiques et ne tiennent pas compte du schéma de niveau des fragments. Des modèles plus récents ont essayé de prendre en compte ce dernier sans pour autant améliorer les prédictions de rapports isomériques. Cependant, les rapports isomériques mesurés concernent des états à grande différence de spin où le modèle statistique peut raisonnablement s'appliquer, la mesure de rapports isomériques pour des noyaux avec une faible différence de spin entre les deux états du noyau devrait mettre en exergue les limites des modèles statistiques. Une faible différence de spin est souvent associée à une faible durée de vie de l'état isomère, les méthodes radiochimiques qui sont à l'origine de la grande majorité des rapports isomériques ne sont donc plus les mieux adaptées pour vérifier la pertinence du modèle statistique.

2.2 Validation du code GEF

A l'heure où le domaine d'énergie des neutrons incidents se tourne vers le MeV voire la dizaine de MeV, il est intéressant de noter notre absence totale de prédiction des rendements dans ce domaine en énergie. Actuellement les rendements de fission sont disponibles au maximum pour trois énergies (thermique, 500 keV et 14 MeV) et pour quelques actinides. Comme on peut le voir le domaine 1-14 MeV est laissé à l'interpolation or ce domaine ne permet pas une interpolation linéaire ni exponentielle des rendements comme le montre la figure 2.10 qui donne l'évolution des rendements mesurés de la masse 140 et 115 pour l' ^{235}U et l' ^{238}U .

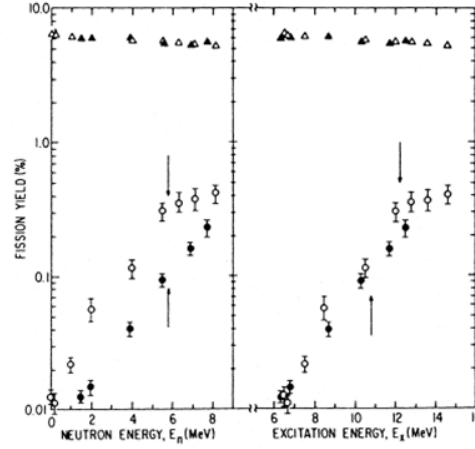


FIG. 5.1.5. The yield of ^{140}Ba and ^{115}Cd as a function of incident neutron energy and excitation energy of compound nucleus.

Δ ^{140}Ba , ^{238}U fission $\circ$ ^{115}Cd , ^{235}U fission
 $\blacktriangle$ ^{140}Ba , ^{238}U fission $\bullet$ ^{115}Cd , ^{238}U fission

FIGURE 2.10 – Rendement du ^{140}Ba et du ^{115}Cd en fonction de l'énergie du neutron incident (gauche) et de l'énergie d'excitation (droite) [GLE82]

En effet la fission de multi-chance i.e la fission après évaporation d'un ou plusieurs neutrons par le noyau composé joue un rôle très important dans le domaine $E_n > 6$ MeV. Les données expérimentales actuellement disponibles sont limitées en nombre. De plus elles sont pour la plupart extraites de manière radiochimique où la seule observable mesurable est le rendement cumulé. Des mesures E-E et V-V sont disponibles, cependant comme expliqué §1.2.1 leur faible résolution en masse (autour de 2) ne permet d'extraire que des comportements généraux.

Avant de prédire avec fiabilité le domaine à haute énergie, il est nécessaire de valider au préalable le modèle utilisé sur le domaine thermique où un plus grand nombre de données expérimentales est disponible.

2.2.1 Les données expérimentales utilisées pour la validation

La validation fiable d'un code nécessite au préalable une connaissance des limites des données expérimentales. Les bases de données évaluées se limitent souvent aux rendements en thermique or le modèle décrit un nombre plus élevé d'observables. Dans cette section les variables suivies d'une étoile caractérisent les variables avant évaporation et celles sans étoile les variables après évaporation. Les indices 1 et 2 se rapportent aux fragments et CN au noyau composé.

2.2.1.1 Les rendements de fission

Les rendements de fission sont obtenus de 3 manières, chacune présentant des biais qui lui sont propres.

Méthode 2E La détermination de la masse des fragments après évaporation avec la méthode 2E s'obtient via la formule suivante :

$$E1 = \frac{A1}{A1 + \nu(A1*)} E1*$$

$$\frac{E1*}{E2*} = \frac{A1*}{A2*} = \frac{A1 + \nu(A1*)}{ACN - [A1 + \nu(A1*)]}$$

La résolution en énergie actuelle se situe autour de 1 MeV soit environ 1%. Elle conduit à une résolution sur la masse de 2 unités si on considère que l'on connaît parfaitement la courbe $\nu(A)$ [BOH73].

Comme illustré figure 2.11, la résolution en masse obtenue lisse la distribution : les effets locaux de 10% n'apparaissent plus et les pics sont élargis. Le rapport pic sur vallée est également modifié.

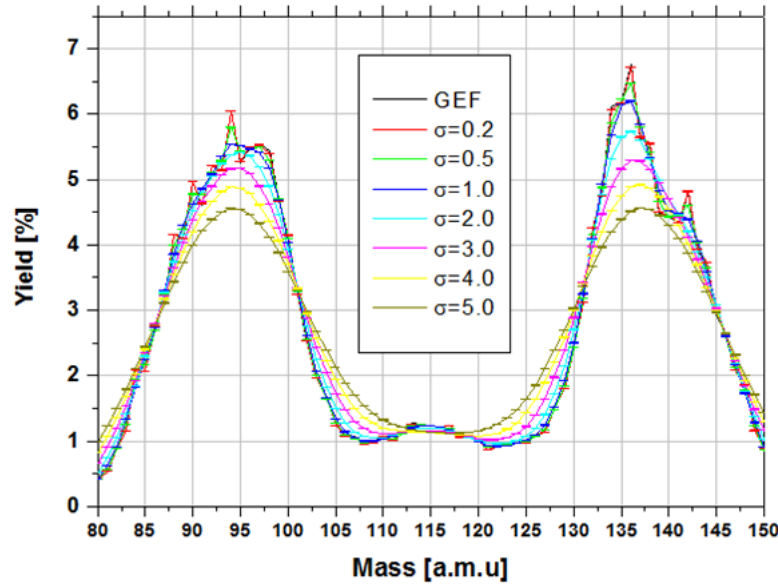


FIGURE 2.11 – Rendement en masse de l' ^{235}U à 14 MeV pour différentes résolutions en masse. Les rendements initiaux correspondent aux résultats obtenus avec le code GEF. Calculs réalisés par Th. Materna [MAT13].

Méthode 2v Les rendements obtenus avec la méthode 2v sont également impactés par la résolution en vitesse. La résolution sur les vitesses est de 1% environ. La masse du fragment est extraite en utilisant la conservation du moment (cf equation 2.5). Les vitesses mesurées sont celles des fragments après évaporation cependant elles sont considérées comme égales à celles des fragments avant évaporation. Cette hypothèse n'est vraie que si l'émission des neutrons prompts est isotrope dans le centre de masse des fragments. Cela implique l'absence d'émission de neutrons à la scission ou pendant la phase d'accélération des fragments. De plus cette hypothèse ne concerne que les valeurs moyennes. La résolution en masse peut ainsi être légèrement affectée par l'élargissement des distributions des vitesses due à l'évaporation neutron.

$$\frac{v1}{v2} = \frac{A2*}{A1*} \quad (2.5)$$

Une résolution de 1% conduit à des écarts plus faibles que la méthode 2E (voir figure 2.12). Ces effets sont de l'ordre de 10%. Le passage entre symétrie et asymétrie montre cependant localement des écarts de l'ordre de 60% .

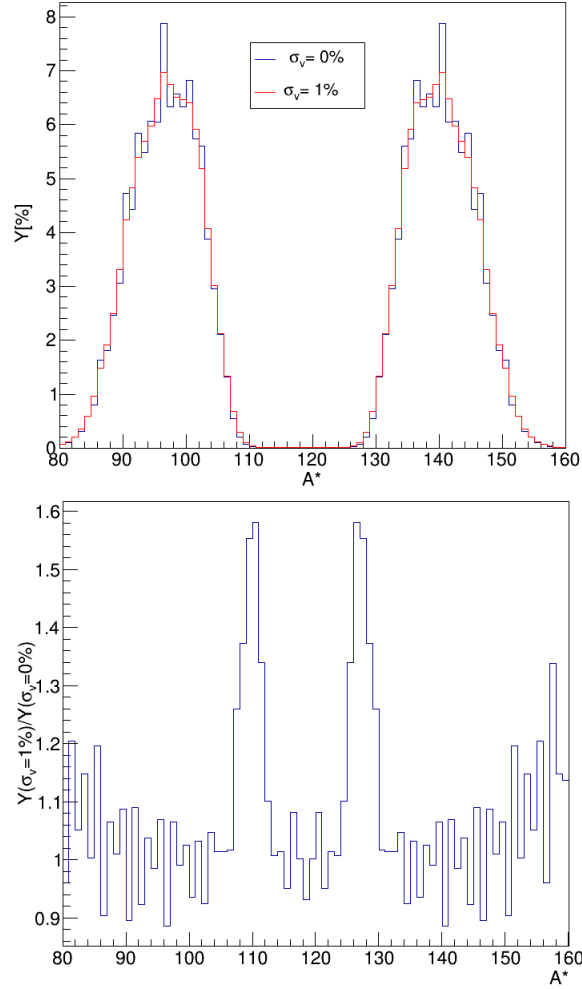


FIGURE 2.12 – Rendement en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ pour différentes résolutions en vitesse. Les rendements initiaux correspondent aux résultats obtenus avec le code GEF.

Méthode par mesure radiochimique Les rendements mesurés par radiochimie ne concernent qu'un nombre restreint de masses qui se situe autour de 20. Les noyaux décroissants par décroissance β ont des rendements en masse cumulés et indépendants identiques. Certaines masses peuvent être très légèrement affectées par l'émission de neutrons retardés mais l'effet est très nettement inférieur ($<1\%$) à l'incertitude sur les rendements (5-7%) [GIA05, GLE81].

Les rendements en masse sont déduits du rendement cumulé, mesuré par spectrométrie gamma, du dernier élément de la chaîne. Un élément stable dans une chaîne rend cette hypothèse fautive. La masse 136 en est le parfait exemple (voir figure 2.13).

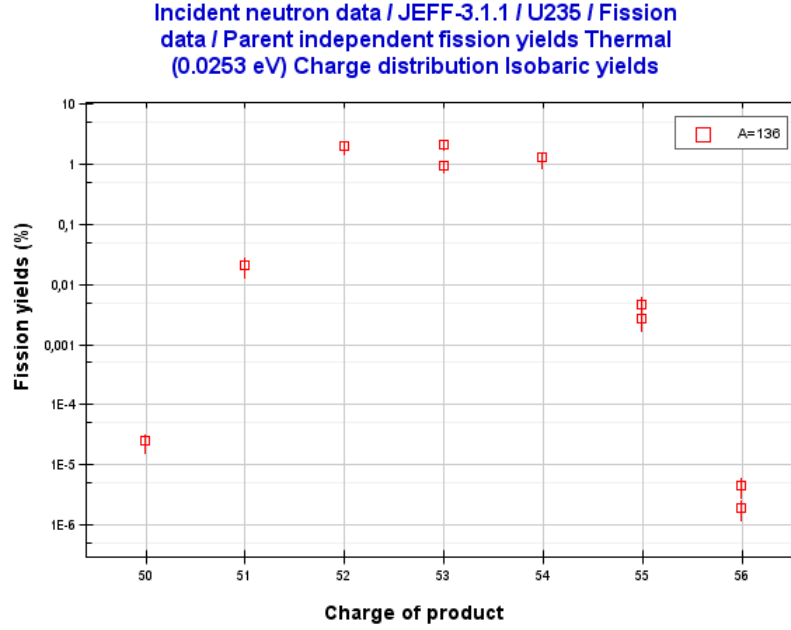


FIGURE 2.13 – Rendements indépendants des éléments A=136

Le $^{136}\text{Xe}(Z = 54)$ est stable donc tous les éléments avec $Z \leq 54$ ne contribuent pas au rendement cumulé du $^{136}\text{Cs}(Z = 55)$ qui est considéré comme le dernier élément de la chaîne.

Certaines masses présentent donc un rendement mesuré inférieur au rendement en masse.

Mesures réalisées auprès du spectromètre Lohengrin Les mesures réalisées auprès du spectromètre Lohengrin peuvent être affectées par trois éléments :

- la mesure incomplète des charges ioniques conduit à ignorer la contribution des nanosecondes isomères ce qui a conduit à des sous-estimations d’une partie des masses notamment dans les lourds (e.g. Guttler[GUT91] §6.2.1)
- la mesure incomplète des distributions en énergie cinétique a rendu certains rendements faux (e.g [TSE99])
- les rendements de la partie symétrique sont affectés par la qualité du vide : un changement de charge ionique à l’intérieur du spectromètre conduit à surestimer le nombre de fragments détectés [CHE14].

Les mesures des rendement isotopiques obtenus par spectrométrie gamma, que ce soit à Lohengrin ou lors de mesures radiochimiques, sont très dépendantes des données de décroissance utilisées. Il existe donc des erreurs sur les rendements dues à ces données.

2.2.1.2 Les énergies cinétiques

Quelle que soit la méthode de mesure utilisée, la distribution en énergie cinétique des produits de fissions est très affectée par la matière traversée : la cible, son support dans le cas d’une mesure avec les deux fragments et la fenêtre d’entrée de la chambre d’ionisation.

Les corrections en énergie sont très dépendantes des bases de données utilisées [DOR10]. Cette correction souffre donc d’une incertitude de l’ordre de 1-2 MeV.

La largeur de la distribution en énergie après correction est également souvent problématique : des écarts de 15% sont souvent observés [WAG91].

Methode 2E La correction de la perte de l'énergie nécessite la connaissance du fragment or dans cette méthode, la connaissance de la masse du fragment dépend de l'énergie mesurée. La dépendance en Z , pour un même A , de la perte d'énergie qui peut aller jusqu'à 1 MeV n'est pas prise en compte. Ainsi l'énergie cinétique totale obtenue a une précision dans le meilleur des cas de 1-2MeV.

L'incertitude sur la masse entraine également des biais dans la courbe $KE(A)$ qui donne l'énergie cinétique du fragment en fonction de sa masse. Ce biais est important dans la zone de SL-SI (120-130) comme indiqué figure 2.14.

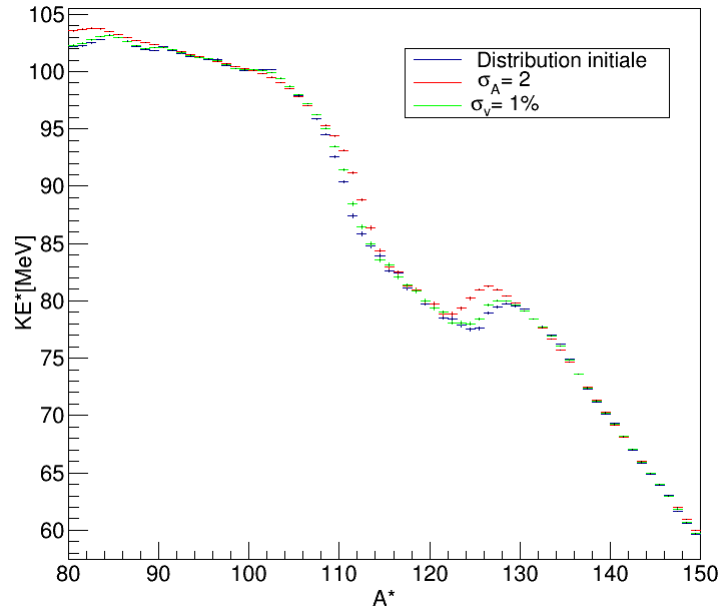


FIGURE 2.14 – Distribution en énergie cinétique pour $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. La distribution initiale (bleue) est le résultat du calcul de GEF. Les courbes rouge et verte correspondent respectivement à une résolution en masse de 2 et une résolution en vitesse de 1%.

Methode 2V De même que la méthode 2E, la méthode 2v présente un biais, cependant ce dernier est plus faible.

Lohengrin Les données Lohengrin ne souffrent pas d'une incertitude sur la masse cependant seules les mesures réalisées avec une cible fine peuvent être utilisées pour extraire l'énergie absolue. De plus, la contamination des rendements symétriques dans le cas d'un mauvais vide peuvent entrainer une modification des distributions en énergie.

2.2.2 Les rendements en masse

2.2.2.1 En thermique

Les rendements en thermiques ont été mesurés par un grand nombre d'expériences et l'évaluation des données a déjà été réalisée afin d'obtenir les bases évaluées JEFF 3.1.1 et ENDF/B-VII.1. Les rendements évalués constituent

donc la référence expérimentale pour les rendements en thermique.

La comparaison réalisée par K-H Schmidt entre les rendements calculés par GEF et ceux évalués par ENDF/B-VII.1 révèlent des χ^2_{reduit} très proches de 1 sauf pour l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. Cet écart en χ^2_{reduit} s'explique par des incertitudes plus faibles que pour les autres noyaux comme indiqué figure 2.15 et tableau 2.2.

Nucleus	χ^2_{reduit}
$^{233}\text{U}(n_{th}, f)$	1.2
$^{235}\text{U}(n_{th}, f)$	7.4
$^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$	1.2
$^{237}\text{Np}(n_{th}, f)$	1.1
$^{242m}\text{Am}(n_{th}, f)$	0.9

TABLE 2.2 – χ^2_{reduit} entre l'expérience (évaluation) et les calculs (GEF sans incertitude) pour les principaux systèmes fissionnants en thermique

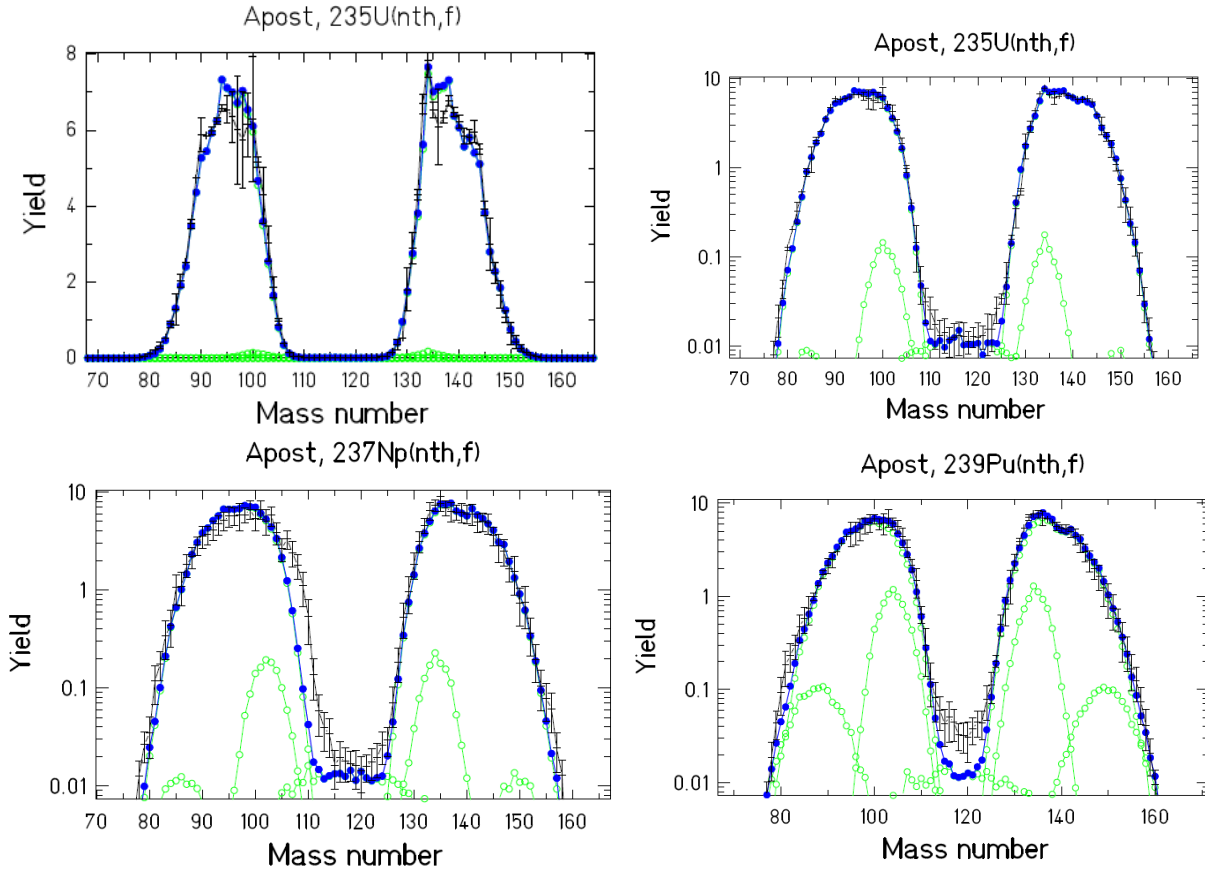


FIGURE 2.15 – Distributions en masse après émission de neutrons prompts pour les principaux systèmes fissionnants. les points noirs correspondent aux données évaluées et les points verts correspondent aux différents modes de GEF

Bien que les données évaluées constituent la référence expérimentale la plus fiable, il faut noter que des différences significatives entre elles peuvent demeurer notamment au niveau de la partie symétrique. Cela rend difficile le paramétrage du code GEF. De plus, la mesure du ^{237}Np semble avoir été contaminée par le ^{239}Pu présent dans la

cible.

La symétrie est souvent une source de divergence entre les bases évaluées car les rendements symétriques sont très faibles ($<0.01\%$) et peu intéressants pour les applications. De plus, cette zone symétrique ne peut pas contraindre significativement la normalisation.

2.2.2.2 Influence de l'énergie d'excitation jusqu'à $E_n = 6 \text{ MeV}$

La validation du code GEF jusqu'à 6 MeV a été réalisée via l'étude de 3 rendements de fission. Comme suggéré dans [IAE00], les masses 111, 115 et 140 ont été choisies afin d'illustrer la symétrie, le passage entre la symétrie et l'asymétrie et les pics.

Comme illustré figure 2.16, le nombre de données expérimentales est très limité en dehors du domaine thermique. Il est d'ailleurs souvent impossible de disposer de 2 jeux de données expérimentales. Les jeux de données sont considérés comme cohérents lorsque le rendement s'inscrit dans l'évolution du rendement de la masse avec l'énergie d'excitation du noyau obtenu avec d'autres mesures. Certaines données comme celles de Chapman ont ainsi été exclues [IAE00].

Les premiers résultats obtenus avec la version GEF de février 2014 ont révélé que le code GEF était capable de reproduire l'allure globale du rapport pic sur vallée, représenté par le rapport $Y(A = 140)/Y(A = 115)$ pour 4 noyaux (voir figure 2.17). Une sur-estimation sur tout le domaine en énergie du rapport pic sur vallée pour le ^{239}Pu doit être notée. L'évolution de chaque masse semble bien reproduite également comme illustré figure 2.18 pour l' ^{235}U et figure 2.19 pour le ^{239}Pu . De légères différences s'observent cependant sur la masse 140. Le rapport pic sur vallée du ^{232}Th qui suit une allure différente due à une fission à trois bosses n'a pas été reproduite par le code GEF. De manière générale le code GEF n'arrive pas à reproduire les rendements de fission du ^{232}Th [SCH14].

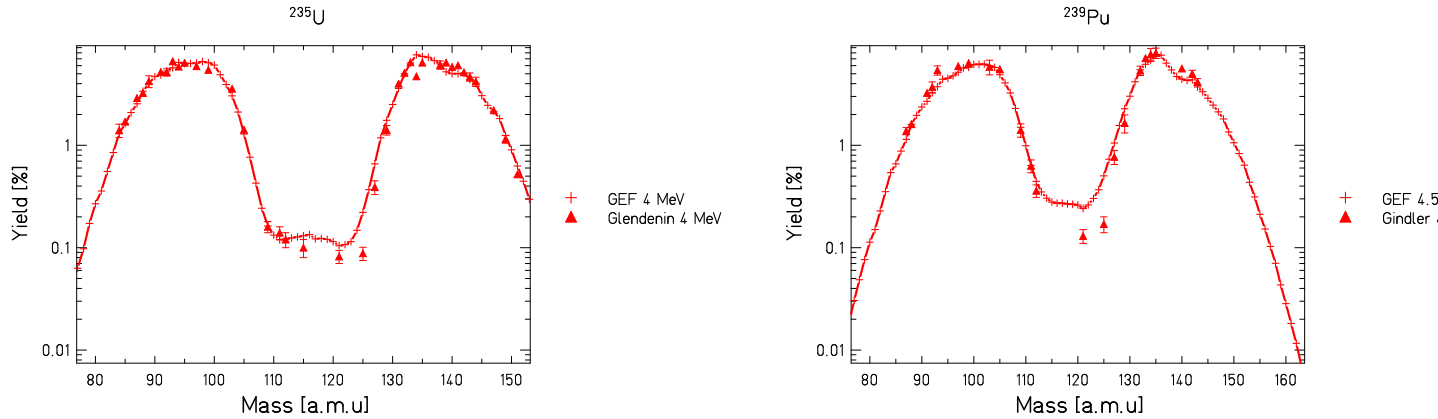


FIGURE 2.16 – Rendement de fission de l' $^{235}\text{U}(n, f)$ (gauche) et du $^{239}\text{Pu}(n, f)$ (droite) pour $E_n = 4 \text{ MeV}$ et $E_n = 4.5 \text{ MeV}$ respectivement. Les données expérimentales sont issues de [GLE81, GIN83].

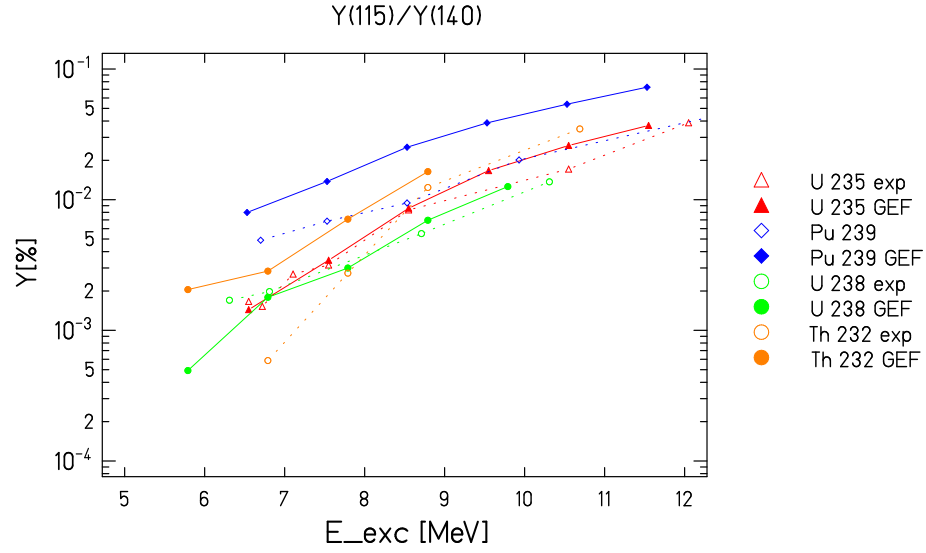


FIGURE 2.17 – Rapport Pic sur Vallée représenté par le rapport $Y(A=115)/Y(A=140)$ pour 4 noyaux fissionnants en fonction de l'énergie d'excitation [GLE81, GIN83, NAG68, GLE80]

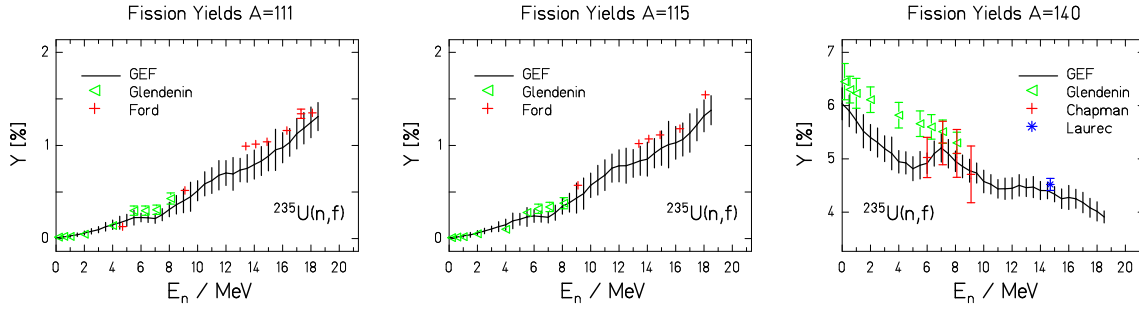


FIGURE 2.18 – Rendements de fission pour $A = 111$ (gauche), $A = 115$ (milieu) et $A = 140$ (droite) pour $^{235}\text{U}(n, f)$ en fonction de E_n [GLE81, FOR65, LAU10]

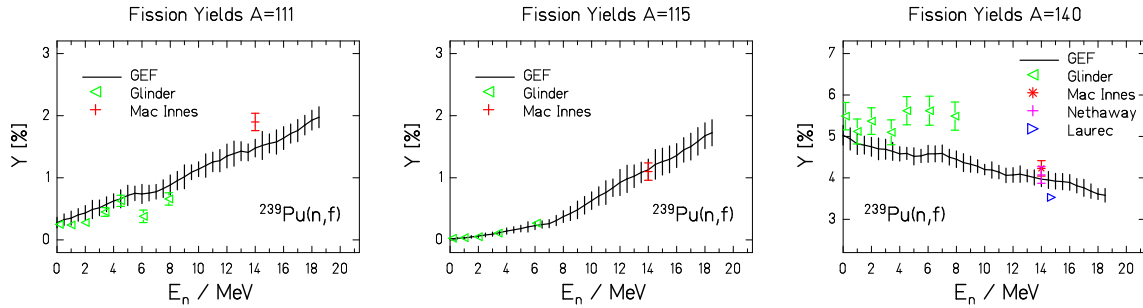


FIGURE 2.19 – Rendements de fission pour $A = 111$ (gauche), $A = 115$ (milieu) et $A = 140$ (droite) pour $^{239}\text{Pu}(n, f)$ en fonction de E_n [SCH14]

Afin de d'éviter les conclusions basées sur des effets locaux, la distribution en masse calculée par GEF a été comparée à celle mesurée par [GLE81, GIN83] figure 2.16. Ces distributions sont en accord avec les données expérimentales.

2.2.3 Les énergies cinétiques

La seconde observable principale de la fission est l'énergie cinétique. La forme globale de l'énergie cinétique en fonction de la masse du fragment ($KE(A)$ et $KE^*(A^*)$) est facilement reproductible. En effet comme indiqué §1.1.2.5, l'énergie cinétique est estimée via la répulsion coulombienne entre deux fragments déformés. Décrire l'énergie cinétique avec précision se révèle être plus difficile car cela requiert la connaissance de la déformation des fragments et la distance les séparant à la scission. Elle doit également tenir compte de la méconnaissance de l'énergie de pré-scission.

Les figures 2.20 à 2.24 montrent les énergies cinétiques moyennes en fonction de la masse du fragment avant et après émission des neutrons prompts pour différents noyaux fissionnants : l'accord entre les prédictions de GEF et les données expérimentales est bon pour la fission thermique de $^{233}U(n_{th}, f)$, $^{235}U(n_{th}, f)$ et le $^{239}Pu(n_{th}, f)$. De légers écarts sont toutefois observés au niveau de la frontière SL-SI : ces écarts peuvent venir de la technique expérimentale et/ou des caractéristiques des modes SL-SI.

Les valeurs totales moyennes $T\bar{K}E^*$ des principaux noyaux fissionnants sont comparées aux valeurs recommandées par les évaluations table 2.3. Les valeurs obtenues sont très légèrement sur-estimées pour les Uraniums. Le $^{252}Cf(sf)$ montre une surestimation de l'énergie cinétique de 4 MeV. Le $^{252}Cf(sf)$ est le système le plus étudié, bien qu'il existe quelques légères différences entre les données, les données les plus récentes s'accordent à 1 MeV près.

Noyau	$^{233}U(n_{th}, f)$	$^{235}U(n_{th}, f)$	$^{239}Pu(n_{th}, f)$	$^{252}Cf(sf)$
Valeur Recommandée	170.1 ± 0.5	170.5 ± 0.5	177.9 ± 0.5	184.1 ± 1.3
GEF	172.32	172.04	178.85	188.14

TABLE 2.3 – Énergie cinétique totale moyenne avant évaporation pour les principaux systèmes fissionnants. Les valeurs recommandées proviennent de [WAG91] p321

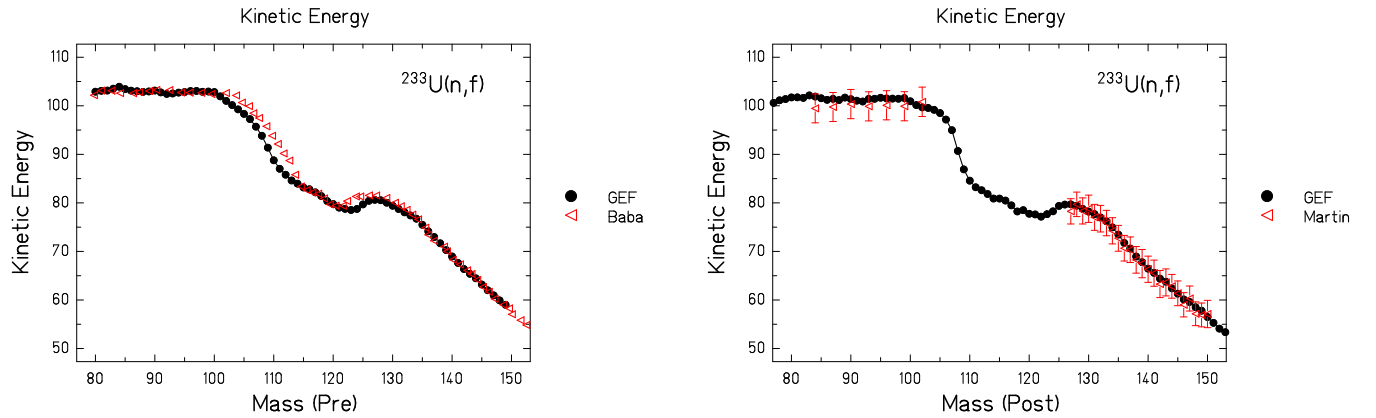


FIGURE 2.20 – Énergie cinétique moyenne du $^{233}U(n_{th}, f)$ avant évaporation (gauche) [BAB97] et après évaporation (droite) [MAR13] en fonction de la masse du fragment

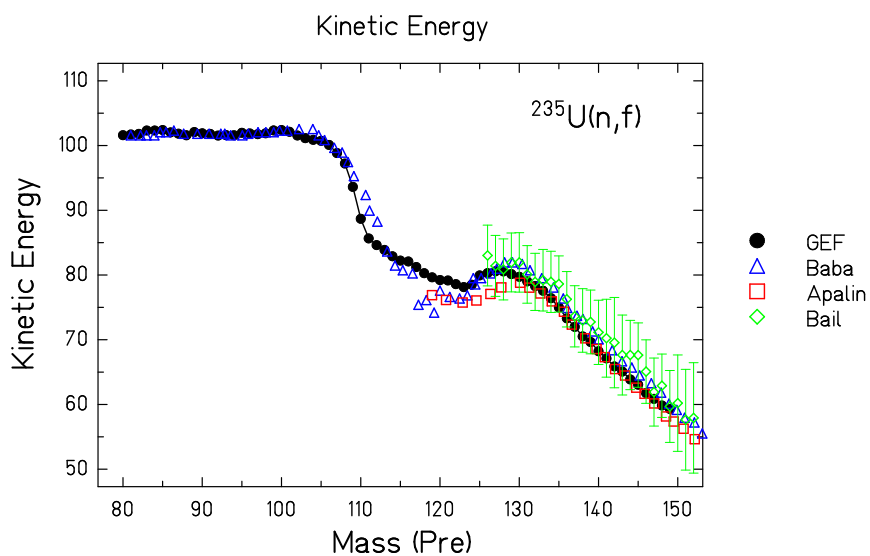


FIGURE 2.21 – Énergie cinétique moyenne avant évaporation du $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ en fonction de la masse du fragment [BAB97, APA65, BAI09]

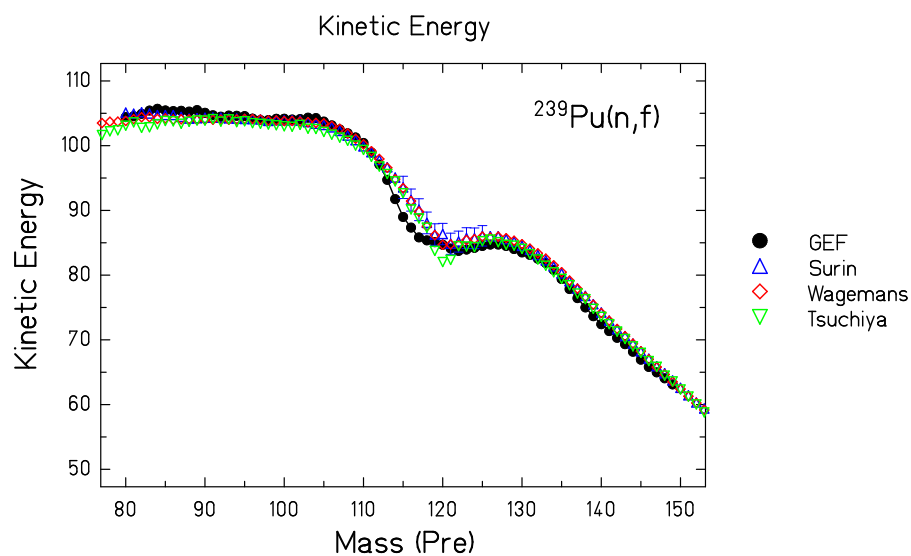


FIGURE 2.22 – Énergie cinétique moyenne avant évaporation du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ en fonction de la masse du fragment [SUR71, TSU00, WAG84]

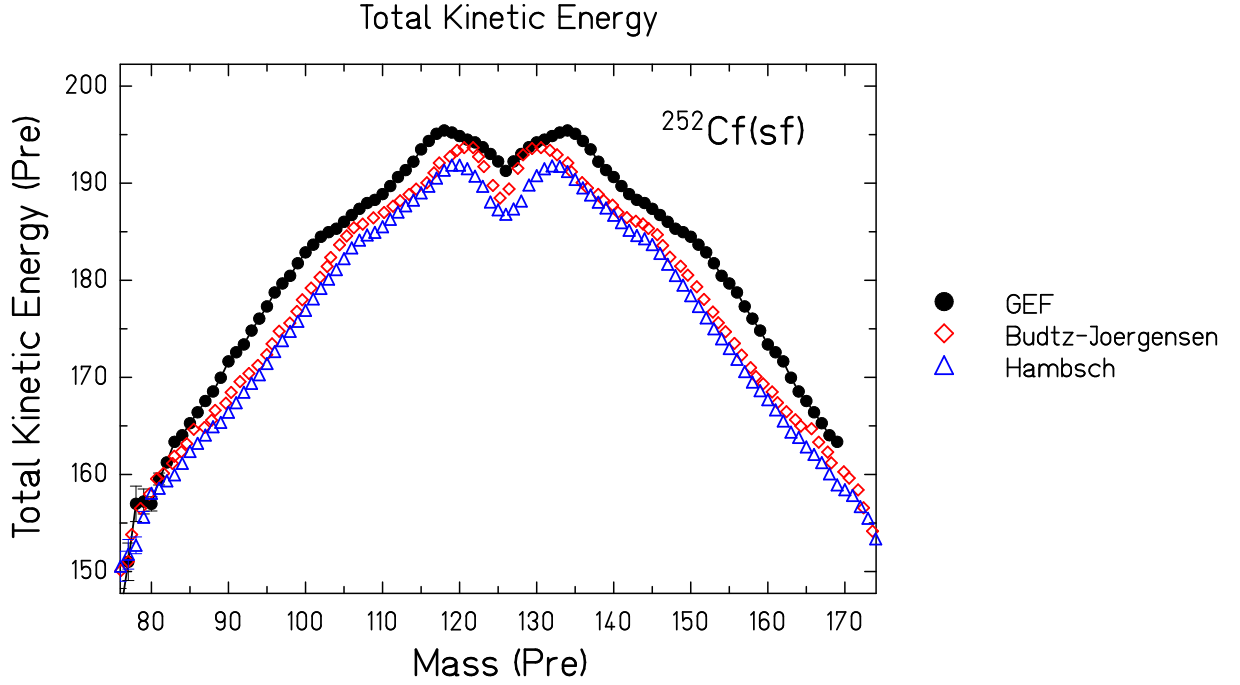


FIGURE 2.23 – Énergie cinétique moyenne avant évaporation du $^{252}\text{Cf}(sf)$ en fonction de la masse du fragment [HAM97, BUD88]

L'énergie cinétique totale est obtenue par différence entre le Q de la réaction et l'énergie d'excitation intrinsèque et de déformation des fragments. Cette dernière est reliée au nombre de neutrons et de gamma évaporés. Le nombre de neutrons évaporés est en parfait accord avec le nombre de neutrons mesurés. Les légères différences entre les évaluations (cf table 2.4) ne pourraient expliquer que 1 MeV d'écart en énergie cinétique. Le spectre en énergie des neutrons correspond également aux données expérimentales. Compte tenu de la remarque précédente et de l'accord déjà observé pour les autres systèmes, la différence de 4 MeV observée pour l'énergie cinétique du $^{252}\text{Cf}(sf)$ reste un mystère.

Modèle GEF	JEFF 3.1.1 ([MIL95])	[MAL85]	ENDF/B-VII.1([CHA11])
3.75	3.759 ± 0.0048	3.755	3.78

TABLE 2.4 – Multiplicité moyenne des neutrons prompts pour le $^{252}\text{Cf}(sf)$ calculée par le code GEF et comparée à différentes évaluations.

Un autre noyau pathologique est le ^{232}Th où une grande différence en énergie cinétique entre les prédictions de GEF et les données expérimentales est observée dans la région $A=120-130$ i.e la frontière entre le mode SL et S1 (voir figure 2.24). L'emplacement de la « bosse » est mal reproduit avec le code GEF. Les résultats ayant été obtenus via la méthode 2E avec $1.7 \text{ a.m.u} < \sigma_A < 2.2 \text{ a.m.u}$ [HOL71], la comparaison avec une résolution de 2 a.m.u sur les résultats du code GEF a été réalisée. Les résultats ainsi obtenus présentent un meilleur accord avec les données expérimentales même si des différences persistent. Ces différences pourraient être dues à des problèmes expérimentaux [SCH14].

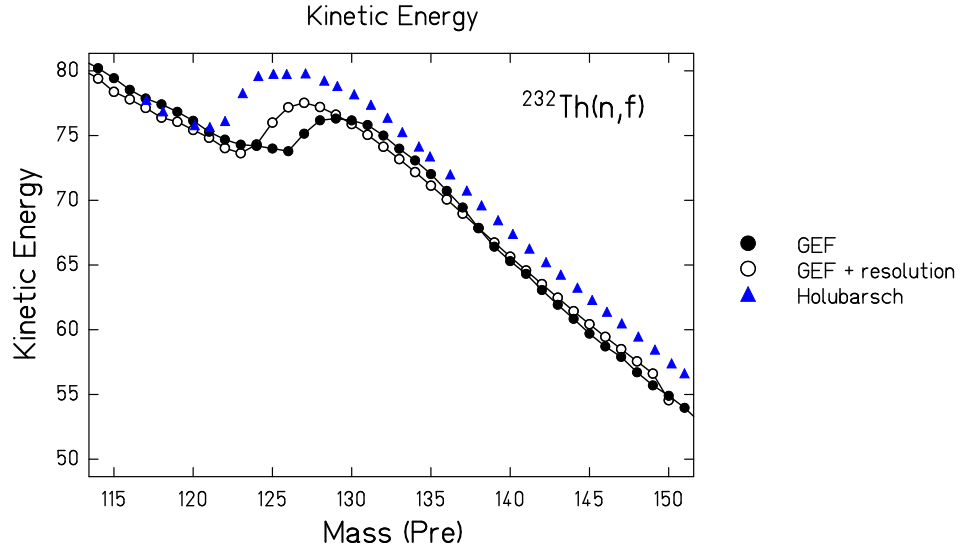


FIGURE 2.24 – Énergie cinétique avant évaporation moyenne du $^{232}\text{Th}(n, f)$ ($E_n = 2\text{MeV}$) : expérimentale [HOL71] en bleue, calculée par GEF (symboles pleins noirs), calculée par GEF et dégradée d'une résolution en masse de 2 a.m.u (symboles ouverts noirs)

Si l'énergie cinétique moyenne est de manière générale très bien décrite par le code GEF, la largeur de la distribution est très souvent sous-estimée de 25% comme illustré figure 2.25. Les largeurs des distributions en énergies sont très dépendantes de la cible utilisée, [WAG91] p 325 a ainsi réalisé un travail d'évaluation des largeurs expérimentales. Les largeurs retenues doivent être cohérentes entre elles à 15% près.

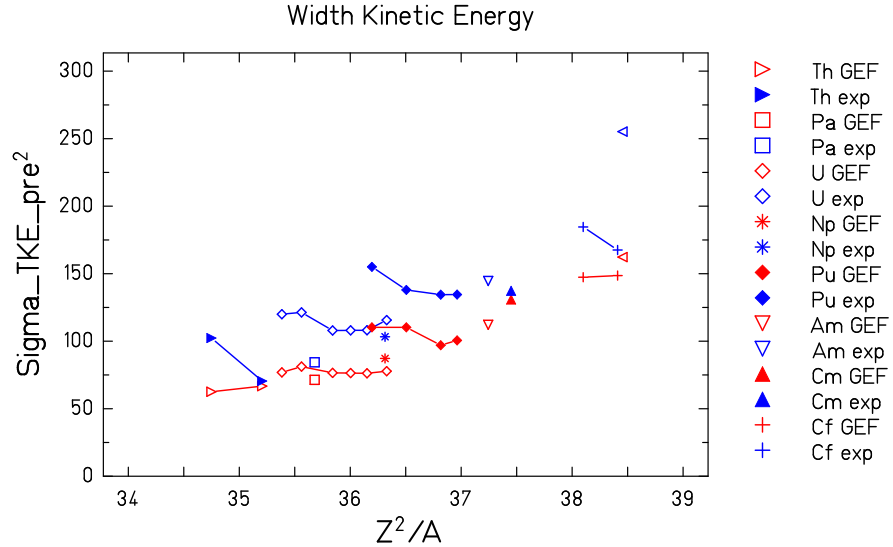


FIGURE 2.25 – Largeur des distributions de l'énergie cinétique totale avant évaporation en fonction de la fissilité du noyau fissionnant. Les symboles bleus correspondent aux données expérimentales ([WAG91] p.325) et les symboles rouges aux valeurs calculées par GEF

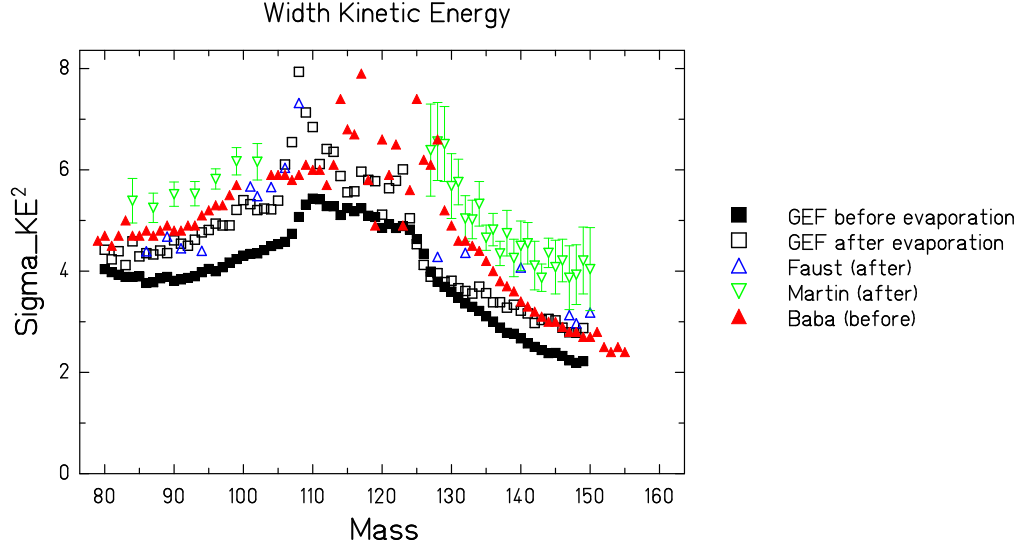


FIGURE 2.26 – Largeurs des distributions en énergie cinétique en fonction de la masse du fragment avant (symboles fermés) et après évaporation (symboles ouverts) pour la réaction $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ [MAR13]

La sous-estimation de la largeur de la distribution en énergie cinétique totale concerne tous les modes comme en témoignent les largeurs des distributions en énergie cinétique en fonction de la masse du fragment avant et après évaporation de l' ^{233}U présentées figure 2.26. Les largeurs avant évaporation sont comparées aux données de Baba [BAB97] qui révèlent une surestimation de 25%. Ces données semblent en meilleur accord avec les résultats de GEF après évaporation, ce qui pourrait laisser penser à un problème expérimental. Toutefois la méthode expérimentale utilisée est une mesure 2v donc il n'y a pas de correction de l'évaporation de neutrons $\nu(A)$. Les données expérimentales après évaporation mesurées à Lohengrin où la masse est clairement définie confirment cette sous-estimation de la largeur par le code GEF. Il doit être noté que les différentes données expérimentales [MAR13] présentent des différences non négligeables alors que les largeurs des cibles sont très similaires et que la méthode expérimentale est identique. La zone symétrique est très mal connue expérimentalement, les conclusions sur SL doivent être considérées avec la plus grande précaution.

Les largeurs calculées par le modèle GEF pour le ^{252}Cf sont également inférieures à celles mesurées .

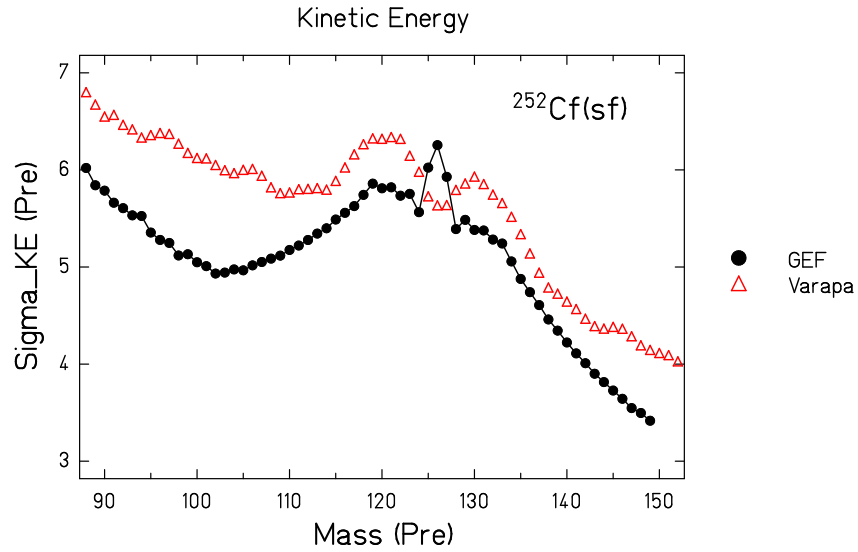
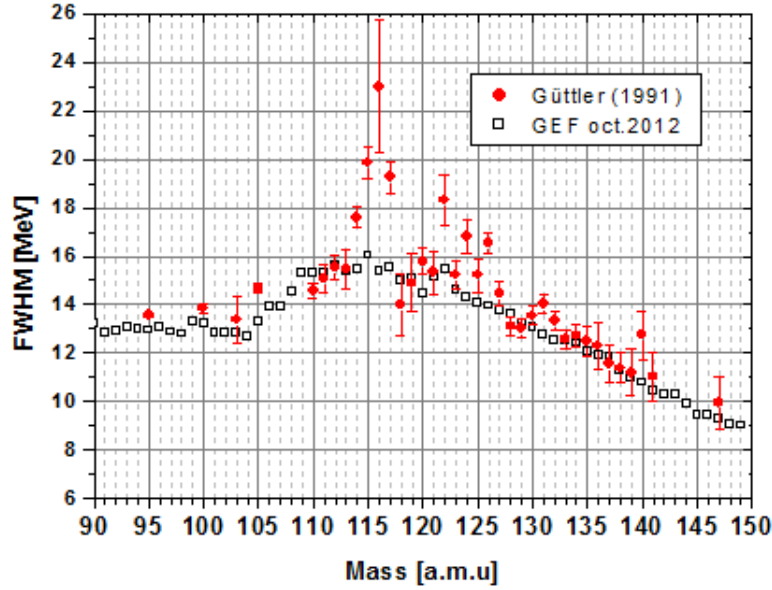


FIGURE 2.27 – Largeurs des distributions en énergie cinétique en fonction de la masse du fragment avant évaporation pour la réaction $^{252}\text{Cf}(sf)$ [VAR05]

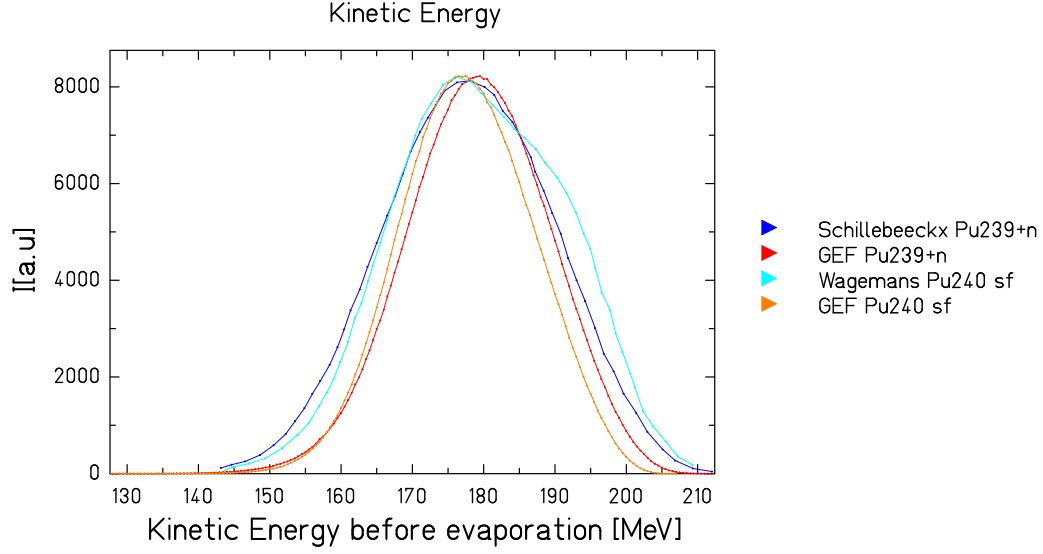
Si la largeur de la distribution en énergie cinétique est de manière générale sous-estimée, il me semble important de mentionner que dans le cas de l' ^{242}Am (voir figure 2.28), les largeurs après évaporation calculées par GEF correspondent à celles mesurées sur Lohengrin par U. Guttler [GUT91]. Dans [GUT91], les mesures ont été réalisées avec des cibles fines. De plus afin de s'affranchir de l'élargissement des distributions en énergie dû à la cible, la largeur liée à la fission a été prise comme la plus faible largeur mesurée pour une masse, cette largeur n'a pas évolué avec le temps.

FIGURE 2.28 – Largeur à mi-hauteur des distributions en énergie cinétique de l' ^{242m}Am après évaporation [GUT91]

Bien que souvent considérées comme de forme purement gaussienne les distributions en énergie cinétique totale TKE présentent deux types de formes. Les distributions les plus fréquentes et qui concernent une grande partie des noyaux (voir figure 2.29 : $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$) sont gaussiennes avec une très légère skewness autour de -0.3. D'autres formes ont été notées pour la fission spontanée des plutoniums [DEM97]. La distribution en TKE semble être composée de deux gaussiennes. Chacune d'elle correspond à un mode; c'est la contribution très importante de SI pour $^{240}\text{Pu}(sf)$ par rapport à $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ (voir table 2.5) qui permet de distinguer la contribution de ce mode. Les caractéristiques de SI sont souvent difficiles à extraire du fait de sa faible contribution aux données globales, la fission spontanée des plutoniums permet donc de les mettre en exergue. Les résultats de GEF avant les conclusions de la validation réalisée dans le cadre de cette thèse et présentée dans ce chapitre ne permettaient pas de les mettre en évidence (voir figure 2.29).

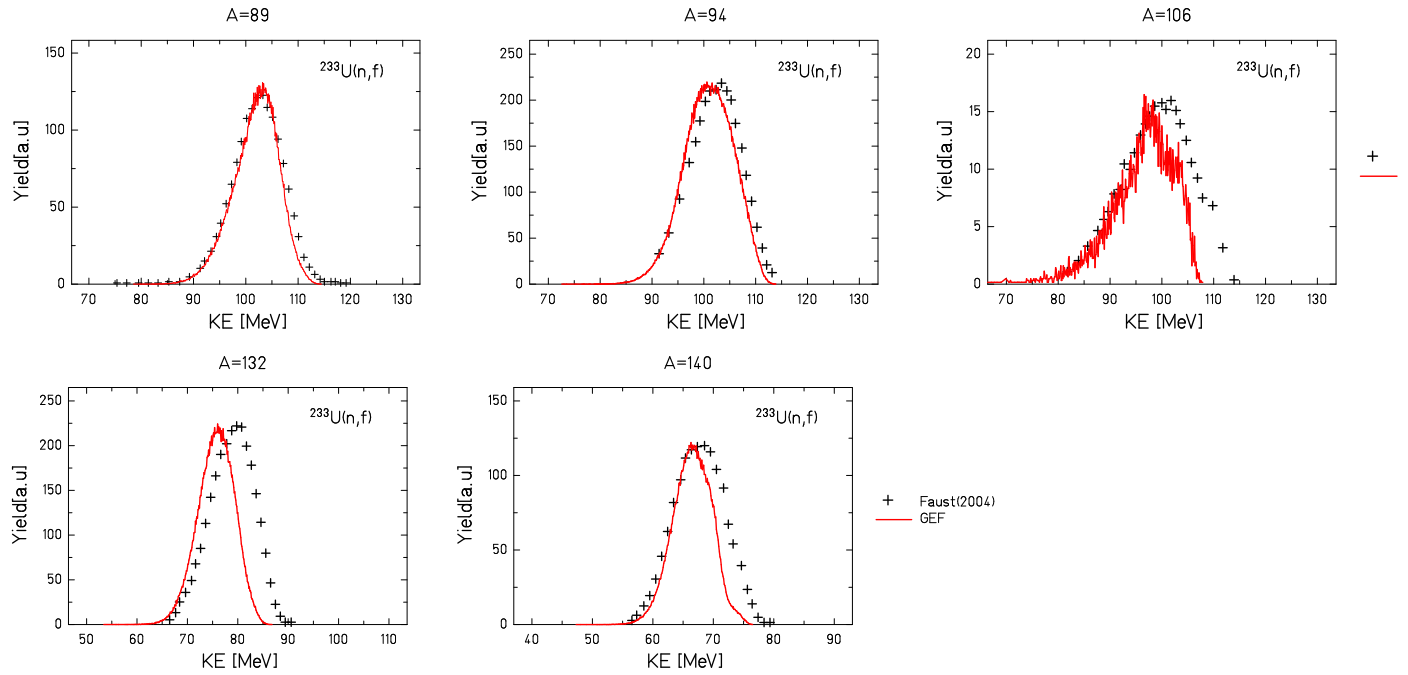
	SI	SII
$^{240}\text{Pu}(sf)$	16.2%	83.2%
$^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$	7.7%	88.9%

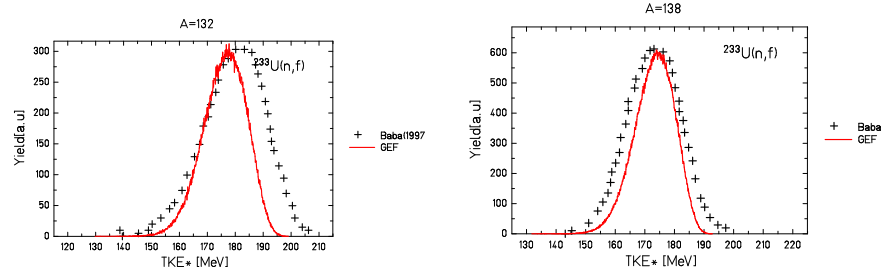
TABLE 2.5 – Contribution des différents modes SI et S2 lors de la fission du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ et du $^{240}\text{Pu}(sf)$ selon GEF

FIGURE 2.29 – Distribution en énergie cinétique totale pour le système fissionnant $^{240}\text{Pu}^*$ [SCH92] [WAG91]

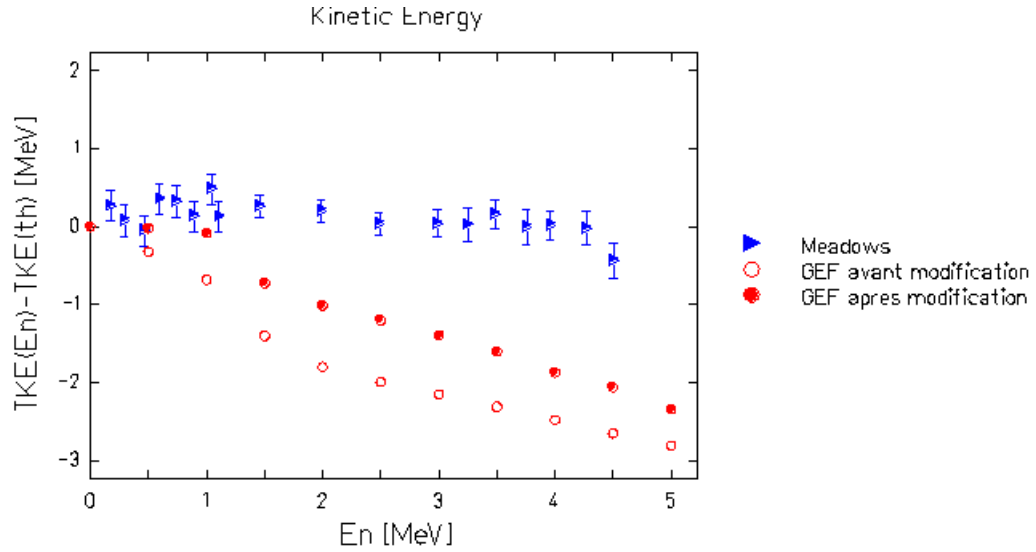
Ainsi la déformation des fragments de SI a été réduite avant d'augmenter l'énergie cinétique de ce mode.

La forme des distributions en énergie cinétique pour différentes masses des fragments a également été étudiée, elle diffère légèrement d'un fragment à l'autre. Ces différences sont souvent interprétées via la contribution des modes aux différentes masses. Les distributions calculées par GEF présentent la bonne forme que ce soit avant ou après évaporation comme illustré figure 2.30 et 2.31 pour l' ^{233}U . Cependant la largeur est trop faible.

FIGURE 2.30 – Distribution en énergie cinétique après évaporation pour l' ^{233}U pour différentes masses [FAU04]

FIGURE 2.31 – Distribution en énergie cinétique avant évaporation pour l' ^{233}U pour différentes masses [BAB97]

L'énergie cinétique étant déterminée par la forme des fragments et la distance les séparant, l'évolution de l'énergie cinétique totale moyenne avec l'énergie du neutron incident n'est influencée que par les rendements. Elle varie de 0.5-1 MeV pour des énergies de neutrons incidents allant de 0 à 5 MeV [MEA63]. La pente décrite avec le code GEF étant avant cette validation trop élevée (voir figure 2.32) elle a été réduite grâce à la prise en compte d'une hauteur de point selle différente pour chaque mode comme l'indiquent les surfaces d'énergies potentielles.

FIGURE 2.32 – Différence entre l'énergie cinétique totale : $T\bar{K}E(E_n) - T\bar{K}E(E_n = 0\text{MeV})$. Les résultats de GEF sont donnés avant modification et après modification [MEA63]

2.2.4 Le moment angulaire

La distribution en moment angulaire des fragments de fission ne peut pas être mesurée directement et est souvent extraite des rapports isomériques. Afin de réduire le biais dû au modèle utilisé pour l'extraction du moment angulaire J , la seule validation sur la prédiction du moment angulaire présentée ici portera sur les rapports isomériques.

La compilation réalisée par Naik [NAI95, NAI05] constituera la référence expérimentale.

Les rapports isomériques sont majoritairement extraits de spectroscopie γ couplée à des méthodes radiochimiques. Les résultats obtenus sont très dépendants des intensités I_γ qui sont souvent connues avec une incertitude de 5-10%. De plus, les noyaux étudiés ont des durées de vie longues (> 1 minute) et se situent sur le pic lourd.

La mesure des rendements isotopiques et isomériques mise en place sur Lohengrin a permis d'accéder à des noyaux ayant des durées de vie plus courtes [BAI09, MAR13].

Le moment angulaire étant très dépendant de la masse du fragment, un plus grand nombre de mesures sur le pic léger serait le bienvenu.

Le rapport isomérique prédit par le code GEF dépend de :

- la masse du fragment
- la parité du Z du fragment
- l'énergie d'excitation du noyau composé
- le spin du noyau composé
- les spins des états fondamental et isomère

Masse et parité de la charge nucléaire du fragment La figure 2.33 représente le rapport entre le rendement isomérique (Y_m) sur la somme du rendement de l'état isomère et du rendement de l'état fondamental ($Y_m + Y_{gs}$) pour le $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$. Les rapports présentés figure 2.33 sont issus de deux techniques expérimentales différentes : radiochimie pour Imanishi et Lohengrin pour Bail.

Les prédictions du code GEF s'accordent avec les données expérimentales à 1σ dans la majorité des cas. L'accord ne dépend pas de la parité du Z : les rapports isomériques des éléments impairs (Sb, I, Cs, La) sont prédits avec la même qualité que ceux des éléments pairs (Te, Xe).

De plus, la qualité n'est pas influencée par la masse du fragment du moins sur le pic lourd.

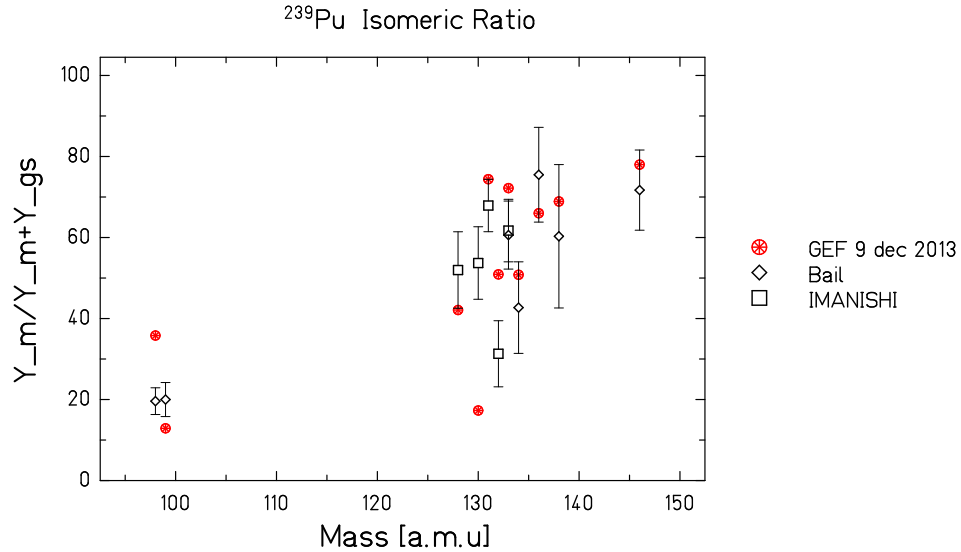


FIGURE 2.33 – Rapports isomériques pour le $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ [BAI09]

Les spins des états fondamental et isomère La différence de spin définie comme $Spin(isomer) - Spin(groundstate)$ est souvent la même pour les fragments mesurés (4 unités). L'influence de cette différence n'a pas pu être étudiée. On s'attend cependant à ce qu'une faible différence de spin rende la prédiction du rapport isomérique plus complexe.

Une différence de spin négative, e.g. chaîne des Sb, ne semble pas dégrader l'accord entre la prédiction de GEF et les données expérimentales.

Influence du noyau composé Afin de systématiser les conclusions des paragraphes précédents, les rapports du rendement à haut-spin (Y_h) sur la somme des rendements à bas-spin et haut-spin ($Y_l + Y_h$) ont été étudiés pour 6 noyaux composés différents :

^{237}Np (5/2+) (n,f), ^{241}Am (5/2-) (n,f), ^{243}Am (5/2+) (n,f), ^{232}Th (0+) (n,f), ^{235}U (7/2-) (n,f), ^{252}Cf (0+) (sf)

. Les conclusions sont identiques à celles données précédemment sur le ^{239}Pu (n_{th},f).

Les figures 2.34 et 2.35 nous permettent également de conclure que l'accord entre les données expérimentales et les prédictions de GEF ne dépendent ni de la parité ni du spin du noyau composé.

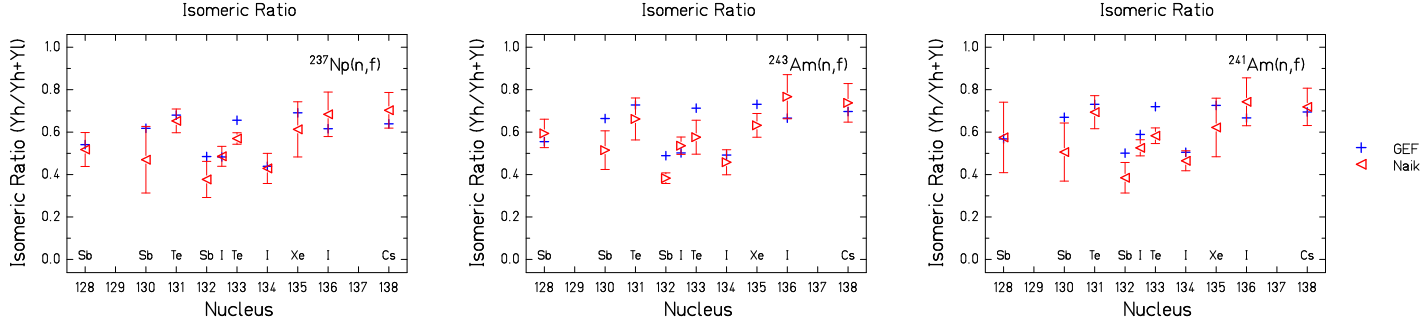


FIGURE 2.34 – Rapport isomérique $Y_h/(Y_l + Y_h)$ d'une dizaine de fragments lourds pour 3 noyaux composés à Z impairs : ^{237}Np (5/2+) (n,f), ^{241}Am (5/2-) (n,f) et ^{243}Am (5/2+) [Nai00]

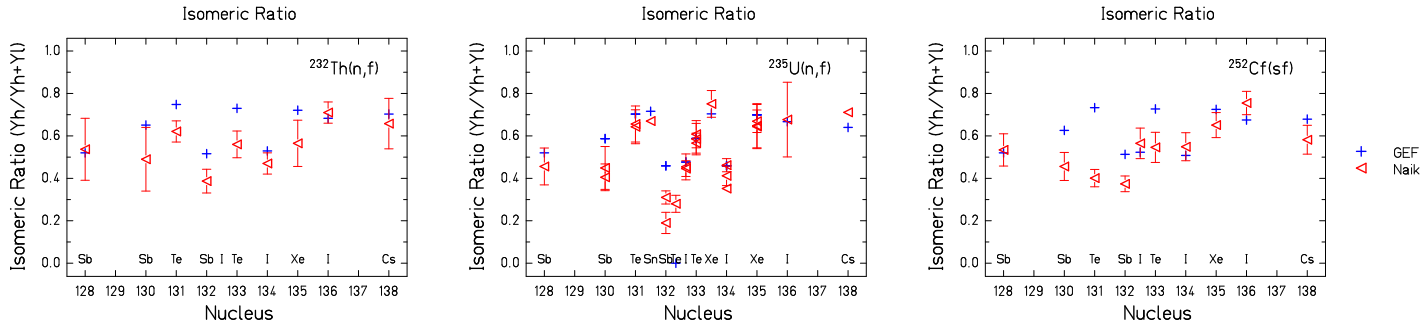
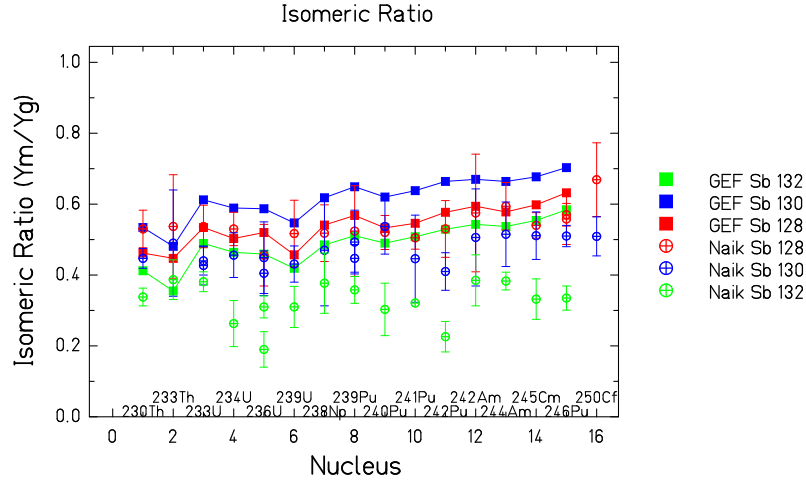
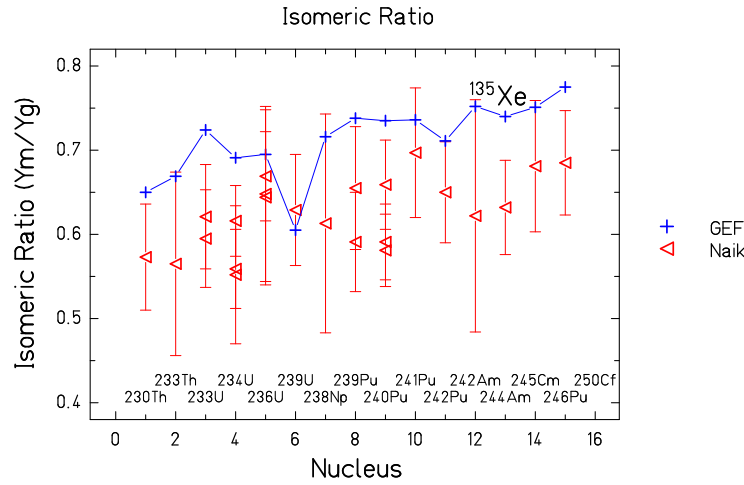


FIGURE 2.35 – Rapport isomérique $Y_h/(Y_l + Y_h)$ d'une dizaine de fragments lourds pour 3 noyaux composés à Z pairs : ^{232}Th (0+) (n,f), ^{235}U (7/2-) (n,f), et ^{252}Cf (0+) (sf) [NAI95]

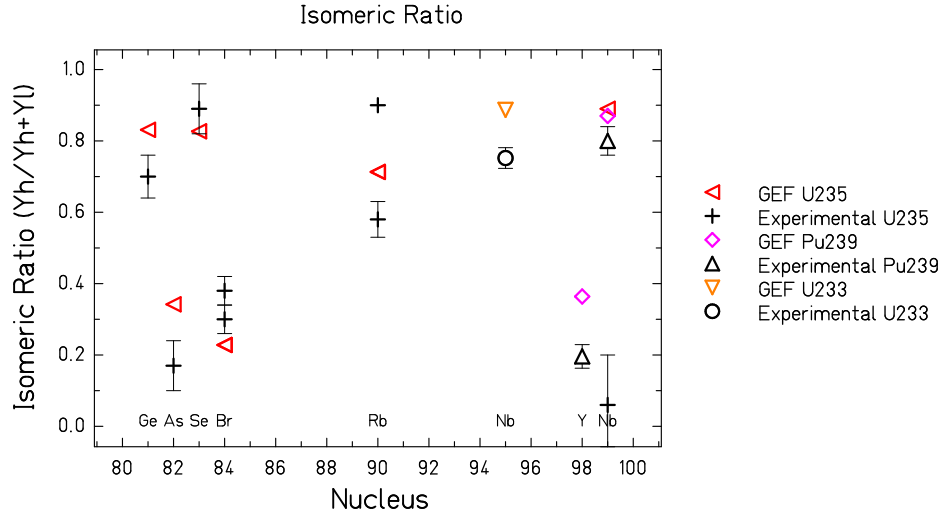
Toutefois, il est à noter une surestimation systématique de certains rapports isomériques : ^{133}Te et ^{132}Sb .

Afin d'extraire une plus grande systématique, 4 rapports isomériques (chaîne des Sb et ^{135}Xe) ont été comparés pour 15 noyaux fissionnants différents (voir figure 2.36 et 2.37). Les rapports isomériques du ^{132}Sb sont clairement surestimés alors que les rapports du ^{128}Sb sont sous-estimés. Les rapports du ^{130}Sb sont également surestimés ; cela peut être dû à la méconnaissance du spin de l'état fondamental. Les rendements du ^{135}Xe sont bien reproduits. Dans tous les cas la tendance liée à la variation du noyau composé est bonne.

FIGURE 2.36 – Rapport isomérique $Y_h/(Y_l+Y_h)$ pour les noyaux de Sb en fonction du noyau composé [NAI95, NAI05]FIGURE 2.37 – Rapport isomérique $Y_h/(Y_l + Y_h)$ pour le ^{135}Xe en fonction du noyau composé [NAI95, NAI05]

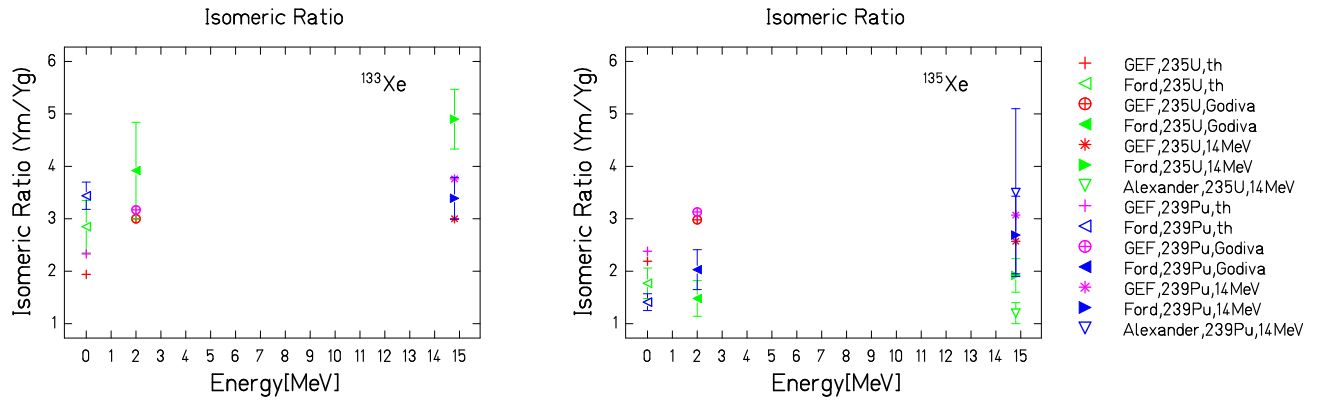
Les rapports isomériques sur le pic léger Comme mentionné précédemment, les données expérimentales sur le pic léger sont très réduites, la figure 2.38 illustre les rapports isomériques mesurés sur le pic léger pour trois principaux noyaux fissionnants. Le code GEF a tendance à surestimer les rares rapports isomériques disponibles.

D'après les données expérimentales sur le pic lourd, l'influence du noyau composé sur le rapport isomérique est faible. La valeur expérimentale du rapport isomérique du ^{99}Nb pour ^{235}U peut être considérée comme fautive car elle correspond à l'opposé de celle obtenue pour le ^{239}Pu . Cette valeur erronée peut être raisonnablement attribuée au rapport $Y_m/Y_{gs} = Y_l/Y_h$ alors que pour la majorité des noyaux $Y_m/Y_{gs} = Y_h/Y_l$. De manière générale, le code GEF a tendance à surestimer les rapports isomériques sur le pic léger.

FIGURE 2.38 – Rapport isomérique $Y_h/(Y_l + Y_h)$ pour les fragments légers [BAI09, DAT82, NIC02]

Influence de l'énergie d'excitation Les mesures des rapports isomériques en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé dans le domaine de validité de GEF ($E_n < 20$ MeV) sont limitées. L'influence de l'énergie d'excitation du noyau composé sur les rapports isomériques a été mesurée par Ford [FOR84] pour le ^{135}Xe et le ^{133}Xe à trois énergies (thermique, 2 MeV, 14 MeV) (voir figure 2.39).

Ford note prudemment une augmentation du rapport Y_m/Y_g pour le ^{133}Xe alors qu'aucune tendance n'est extraite du rapport isomérique du ^{135}Xe . Le code GEF ne reproduit pas cette dernière observation.

FIGURE 2.39 – Rapport isomérique Y_m/Y_g pour le ^{133}Xe et le ^{135}Xe en fonction de l'énergie du neutron incident pour les systèmes $^{235}\text{U}(n,f)$ et $^{239}\text{Pu}(n,f)$ [FOR84]

Un nombre plus élevé de données est cependant nécessaire notamment dans le domaine $E_n = 2 - 14$ MeV pour confirmer ces tendances.

Les mesures de Thierens [THI82] en photo-fission bien que non mono-énergétiques nous donnent quelques indi-

cations : l'énergie d'excitation a une influence très faible sur le rapport isomérique et cette tendance est reproduite par le code GEF. En effet dans le domaine $E^* = 9.7 - 14.1$ MeV équivalent à $E_n = 4 - 8$ MeV, le rapport de ^{134}I pour ^{235}U et ^{238}U est constant. Ainsi, la dépendance en énergie d'excitation du moment angulaire moyen semble être modélisée correctement dans le code GEF comme illustré figure 2.40.

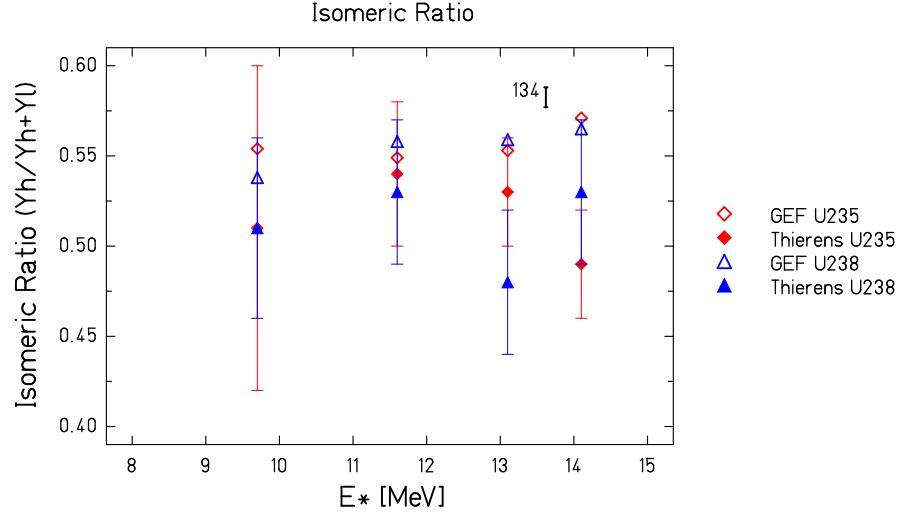


FIGURE 2.40 – Rapport isomérique Y_m/Y_g pour le ^{134}I en fonction de l'énergie d'excitation pour les systèmes $^{235}\text{U}(\gamma, f)$ et $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ [THI82]

En conclusion, le code GEF prédit de manière satisfaisante les rapports isomériques dans une majorité de cas. Certaines surestimations sont cependant observées. L'écart moyen observé est de +5%.

Afin de réduire cette surestimation, le moment moyen obtenu peut être multiplié par un facteur noté J_{scaling} . Comme illustré figure 2.41, la réduction de ce facteur à 0.91 au lieu de 1 permet de réduire cette surestimation. L'influence de ce facteur sur le rapport isomérique varie d'un noyau à l'autre.

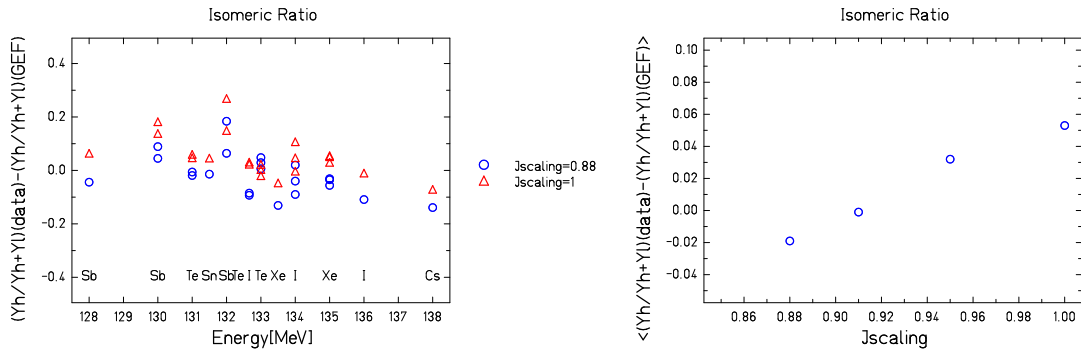


FIGURE 2.41 – Écart entre le rapport isomérique expérimental et celui obtenu via le code GEF en fonction du fragment (gauche) et écart moyen en fonction du J_{scaling} (droite)

2.2.5 Applications industrielles

La précision atteinte par les prédictions du code GEF lui permet de prétendre à devenir un outil d'évaluation. Les bases évaluées ont notamment pour vocation à être utilisées par l'industrie nucléaire. Il m'a donc semblé important de valider le code GEF sur des grandeurs clés de l'industrie nucléaire : puissance résiduelle et neutrons retardés.

Les données globales permettent d'apprécier les exactitudes et sont sensibles aux rendements de certains noyaux clés. En effet l'étude de ces grandeurs sur le pic léger de l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ (voir figure 2.42), relève le nombre limité de noyaux contribuant de manière significative ($>5\%$) à la puissance résiduelle. De plus cette contribution est très dépendante des temps de refroidissement. Ainsi le suivi de la puissance résiduelle en fonction du temps devrait permettre de diagnostiquer un problème sur les rendements spécifiques.

De même l'étude du nombre de neutrons retardés permet de détecter des rendements isotopiques défaillants compte tenu du nombre restreint de précurseurs.

Toutefois les quantités étudiées : chaleur résiduelle et neutrons retardés sont dépendantes des données de décroissance et des probabilités d'émission d'un neutron retardé P_n . Si on peut considérer que les données de décroissance commencent à être connues (bien que des différences entre bases de données subsistent), les P_n sont souvent très différents d'une base à l'autre. Revenons plus en détail sur les études réalisées avec ces deux grandeurs.

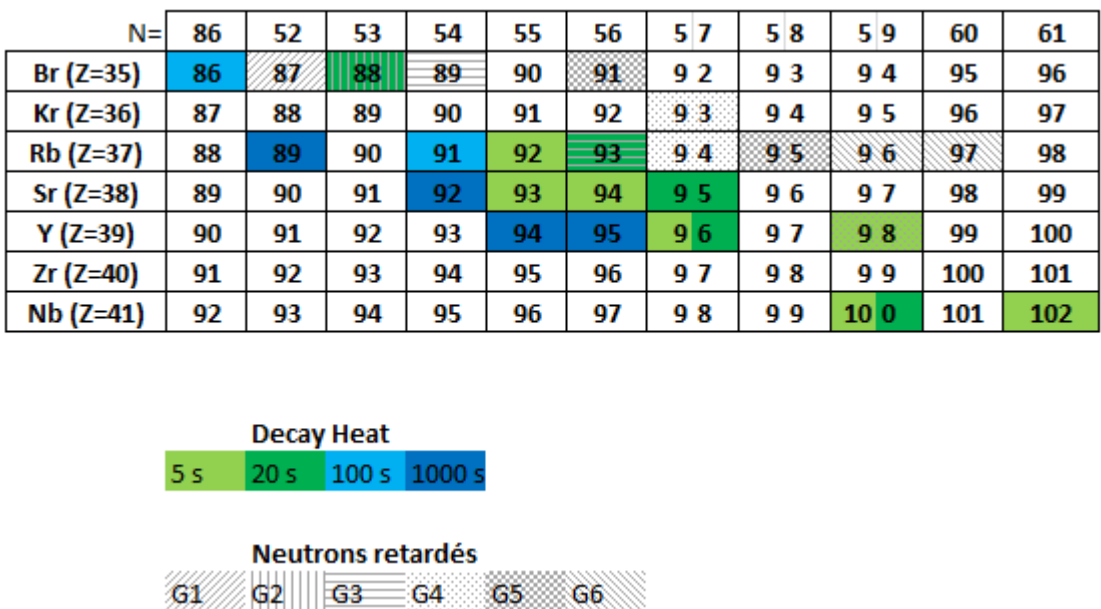


FIGURE 2.42 – Principaux contributeurs à la puissance résiduelle en fonction du temps (cases colorées). Les principaux précurseurs de neutrons retardés sont indiqués par des hachures. Les groupes sont ceux définis par [KEE57] avec $T_{1/2}(G_i) > T_{1/2}(G_{i+1})$

2.2.5.1 Puissance résiduelle

L'impact des incertitudes des données nucléaires (rendements de fission, énergie de décroissance, périodes) sur la puissance résiduelle a été étudié par [BEN12]. Il ressort que compte tenu des incertitudes actuelles sur ces différentes données, les incertitudes sur les rendements de fission indépendants constituent la principale cause d'incertitude sur

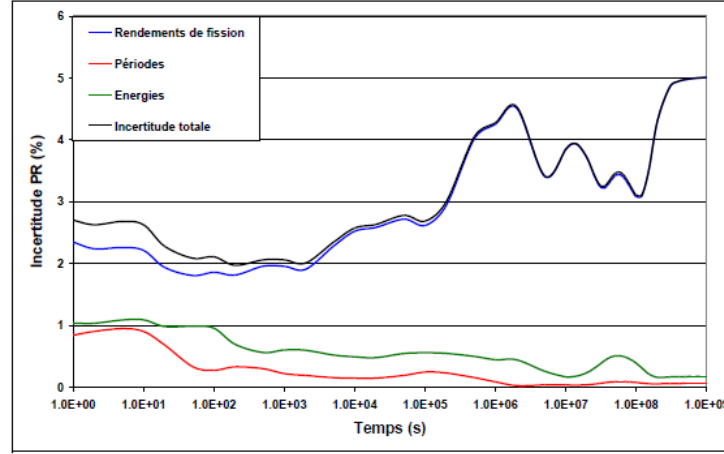


FIGURE 2.43 – Incertitude sur la puissance résiduelle pour une fission de ^{235}U en fonction du temps de refroidissement. La contribution de l’incertitude pour les différentes données nucléaires est indiquée [BEN12]

la puissance résiduelle comme illustré figure 2.43. Il est donc intéressant d’étudier l’impact d’un remplacement des rendements de fission de JEFF 3.1.1 par ceux de GEF dans un calcul de puissance résiduelle.

Les calculs de puissance résiduelle ont été réalisés dans le cadre d’une fission élémentaire à énergie thermique pour $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ (voir figure 2.44) avec le code de décroissance FISPACT 2007 [FOR07] modifié et validé [AMO11]. Les résultats obtenus avec le code GEF s’accordent avec ceux obtenus avec les rendements JEFF 3.1.1.

L’impact du changement de rendements sur la puissance résiduelle reste assez limité alors que les écarts entre les rendements isotopiques de GEF et ceux de JEFF 3.1.1 sont comparables voire supérieurs aux incertitudes sur les rendements de JEFF 3.1.1. Il semble y avoir une contradiction avec l’étude menée précédemment.

Une étude réalisée par Oyamatsu en 1997 [OYA97] basée sur un calcul analytique simplifié (les auteurs ne considèrent que des chaînes de 3 noyaux maximum) permet d’apporter un élément de réponse. S’il y a plus de 2 prédécesseurs, la chaîne commence au grand-père dont on prend le rendement cumulé. Les rendements de fission, les énergies de décroissance, les constantes de décroissance et leurs incertitudes sont issus de la bibliothèque ENDF/B-VI. Comme dans [BEN12], l’étude met en évidence les sources d’incertitudes sur la puissance résiduelle : données de décroissance, rendements indépendants ou cumulés. Cette étude conclut que la méconnaissance des rendements est autant responsable de l’incertitude sur la puissance résiduelle que la méconnaissance des énergies de décroissance lorsque l’on utilise les rendements cumulés. Ainsi les différences entre les puissances résiduelles calculées par GEF et celles calculées avec les rendements JEFF 3.1.1 traduisent essentiellement les différences entre les rendements cumulés, que l’on sait faibles, et non les différences entre les rendements isotopiques que l’on sait importantes.

Afin d’étudier l’impact des données de décroissance, ne pouvant pas modifier les données de décroissance utilisées par le code FISPACT, nous [AMO11] avons utilisé un code de calcul, appelé Bestiole [MUE10]. Ce dernier a été développé au sein de l’équipe dans le cadre de l’expérience Double Chooz. Le code Bestiole permet de calculer les spectres bêta (et les spectres neutrinos) de tous les noyaux à partir de la connaissance la plus complète des branches de décroissance qui est disponible sur les bases de données mondiales. En particulier, au lieu d’utiliser les énergies de JEFF 3.1.1., le code se sert des énergies de décroissance recalculées à partir des mesures TAGS [MUE10], c’est à dire des mesures les plus précises aujourd’hui disponibles sur un très grand nombre de noyaux exotiques. En pratique, le calcul s’effectue en deux étapes : le code d’évolution FISPACT permet de calculer, pour chaque temps

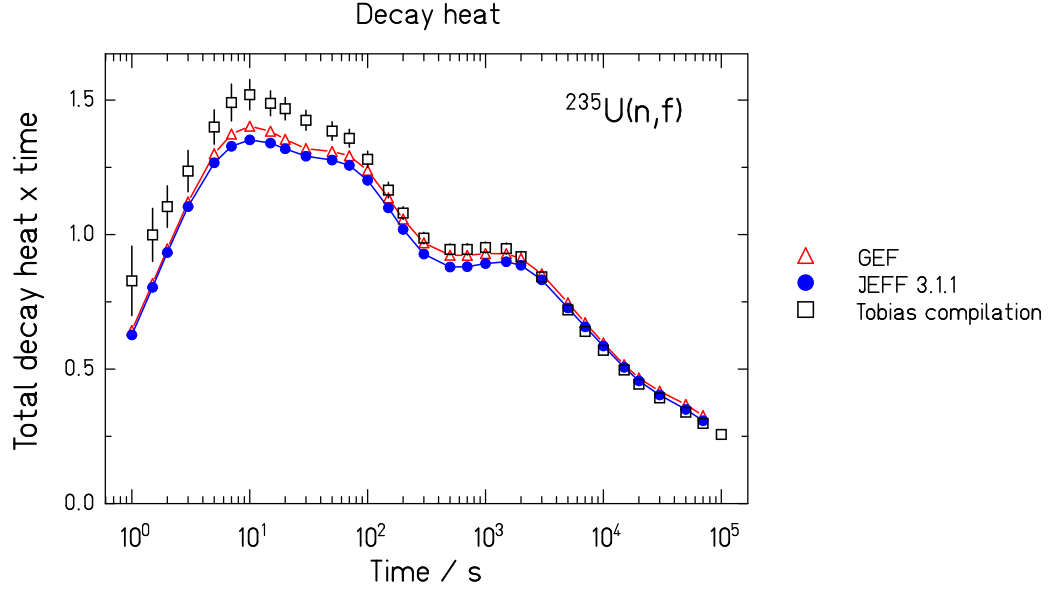


FIGURE 2.44 – Puissance résiduelle totale $\times$ temps en fonction du temps de refroidissement après une fission d' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. Les calculs ont été réalisés avec une version modifiée de FISPACT [AMO11]. Les valeurs expérimentales sont représentées par la compilation de Tobias [TOB89].

de refroidissement, la population des noyaux produits ; ensuite, à partir de cette population, le code Bestiole calcule le spectre bêta de chaque noyau présent, et par conséquent permet d'accéder à la puissance bêta. Comme on peut le constater sur la figure 2.45, l'effet de l'utilisation du code Bestiole est important, de l'ordre de 10% pour des temps compris entre 10 et 100 s, pour l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. Cela découle principalement de l'inclusion des mesures TAGS, ce qui permet de reproduire bien plus fidèlement les courbes élémentaires de fission. On note d'autre part que ces données n'ont pas d'influence sur les courbes élémentaires de fission pour des temps de refroidissement supérieurs à 500 s car les énergies des noyaux contribuant à la chaleur résiduelle pour ces temps-là sont bien connues. Un effort très important est actuellement en cours au niveau mondial pour améliorer la connaissance des énergies de décroissance. Suite à ces mesures, les énergies bêta sont revues à la baisse pour la plupart des noyaux. Il faut noter par ailleurs que, lorsque l'on ne dispose pas de données précises quant à la répartition du Q_β (souvent pour des noyaux à courtes durées de vie), les bibliothèques de données ont tendance à diviser également l'énergie de décroissance entre bêta et gamma.

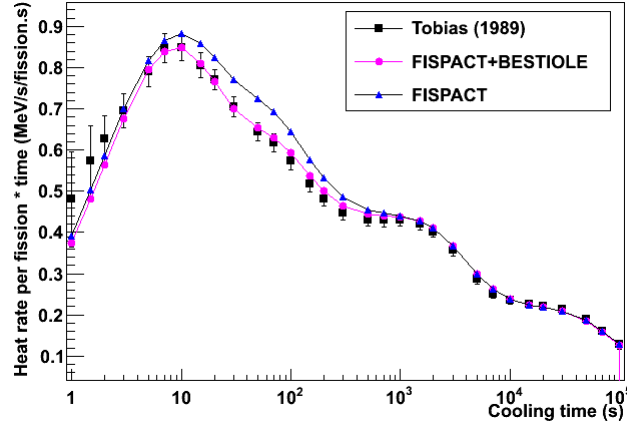


FIGURE 2.45 – Puissance résiduelle beta en fonction du temps de refroidissement après une fission d' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. Les calculs ont été réalisés avec une version modifiée de FISPACT [FOR07] et FISPACT+BESTIOLE [MUE10]. Les valeurs expérimentales sont représentées par la compilation de Tobias [TOB89]

2.2.5.2 Neutrons retardés

Afin de calculer la multiplicité des neutrons retardés ν_d , le code implanté par [GIA05] et les valeurs P_n associées des précurseurs ont été utilisés. La procédure a été validée pour l' ^{235}U thermique où la multiplicité des neutrons retardés obtenue avec les rendements de fission de JEFF 3.1.1 pour 100 fissions est de $\nu_d = 1.61$, la valeur recommandée est de 1.62.

Le nombre de précurseurs est très limité et peut être réparti en 6 groupes selon leur durée de vie (voir table 2.6). Il existe également une répartition en 8 groupes que nous n'avons pas considérée ici.

Modèle à 6 groupes	Modèle de l'iode		Précurseurs	Temps de vie (s)	Modèle du brome	
	Groupe	Période			Groupe	Période
1	1	55.69	^{87}Br	55.69	1	55.69
	2	24.50	^{137}I	24.50	2	24.50
2	3	16.30	^{88}Br	16.30	3	16.30
	4	6.46	^{138}I	6.46	4	6.37
3	5	4.67	^{93}Rb	5.93		
			^{88}Br	4.38	5	4.38
4	6	2.76	^{94}Rb	2.76	6	2.76
	7	2.30	^{139}I	2.30	7	2.09
			^{85}As	2.08		
	8	2.056	^{98m}Y	2.00		
	9	1.116	^{93}Kr	1.289	8	1.289
5			^{144}Cs	1.002	9	0.942
	10	0.860	^{140}I	0.860		
			^{91}Br	0.542	10	0.542
6	11	0.443	^{95}Rb	0.384	11	0.384
			^{96}Rb	0.203	12	0.195
	12	0.195	^{97}Rb	0.170		

TABLE 2.6 – Liste des principaux précurseurs de neutrons retardés pour l' ^{235}U [GIA05]

La multiplicité des neutrons retardés permet donc d’observer des désaccords locaux des rendements de fission que l’on sait être en accord au premier ordre aux données empiriques (données et bases évaluées).

Deux versions différentes de GEF La contribution de chaque précurseur étant expérimentalement très dure à obtenir, les contributions par groupes sont souvent les seules accessibles. La première version à valider (1.03.2013) présentait une surestimation générale comme illustré figure 2.46. La contribution de certains précurseurs a toutefois pu être extraite pour le $^{237}\text{Np}(n, f)$. On observe que les contributions de l’ ^{137}I et du ^{89}Br sont très largement surestimées alors que celle du ^{88}Br est sous-estimée. On remarque que les précurseurs sont des noyaux à Z-impair. Après étude des masses 137 et 140 et des chaînes du Br (voir figure 2.48) et Rb, j’ai constaté que les premières versions de GEF souffraient d’un effet pair-impair local trop faible, ce qui conduisait à surestimer ν_d (voir table 2.7).

	$^{235}\text{U}(n, f)$ thermique	$^{235}\text{U}(n, f)$ rapide	$^{238}\text{U}(n, f)$ rapide	$^{239}\text{Pu}(n, f)$ thermique	$^{239}\text{Pu}(n, f)$ rapide
Valeur recommandée	1.62	1.63	4.65	0.65	0.651
Première version (1.03.2013)	2.22	2.02	4.62	0.82	0.78
Dernière version (25.03.2014)	1.72	1.64	4.40	0.71	0.673

Table 2.7 – ν_d pour les systèmes fissionnants les mieux connus. Les valeurs recommandées sont extraites de [RUD02]. Les lignes 3 et 4 correspondent aux résultats obtenus lors de la validation de deux versions différentes (1.03.2013 et 25.03.2014) du code GEF. La valeur en rapide a été calculée pour $E_n = 2.0 \text{ MeV}$

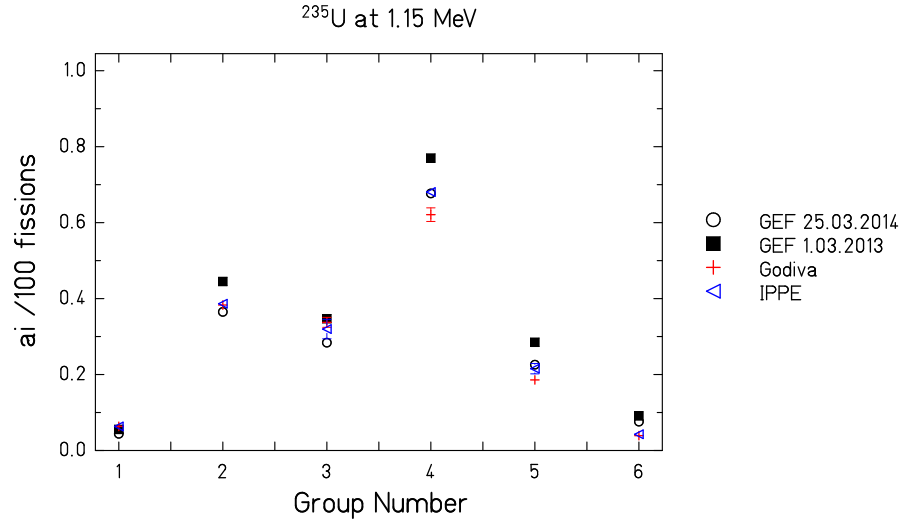


FIGURE 2.46 – Contribution (ai) de chaque groupe de neutrons retardés à ν_d pour le système $^{235}\text{U}(n, f)$ avec $E_n = 1.15 \text{ MeV}$. Les données expérimentales sont extraites de [RUD02]

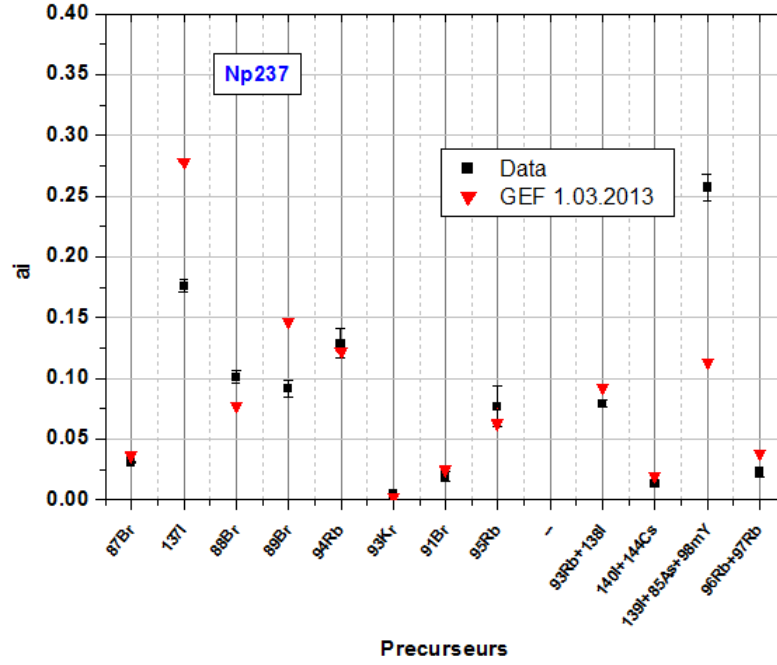


FIGURE 2.47 – Contributions (ai) des précurseurs neutrons retardés au ν_d pour le ^{137}Np . GEF version 1.03.2013

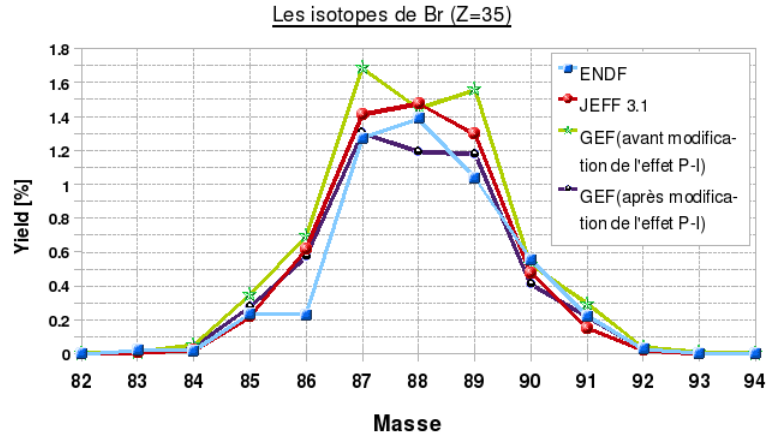


FIGURE 2.48 – Distribution en masse des isotopes du Br pour $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ selon les bases de données évaluées et pour deux versions de GEF (avant et après modification de l'effet pair-impair).

Dans la dernière version de GEF (25.03.2014), l'utilisateur dispose d'un coefficient qui lui permet de réduire de la même quantité pour tous les noyaux l'effet pair impair et ainsi évaluer l'impact de cet effet sur ν_d . Plus l'effet pair-impair est important, plus les fragments impairs sont défavorisés, plus la production de neutrons retardés est faible (voir figure 2.49). Toutefois, les deux versions ne peuvent être comparées seulement en ces termes car c'est la modélisation de l'effet pair-impair qui a été modifiée.

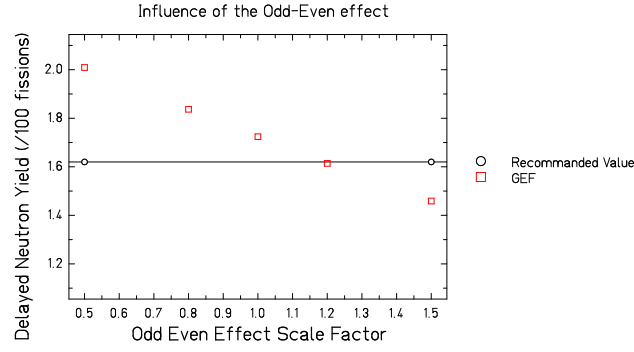


FIGURE 2.49 – ν_d pour différentes valeurs du coefficient de l'effet pair-impair. Le coefficient 1 correspond à la version 25.03.2014.

Dans la suite de cette section seuls les résultats de la version du 25.03.2014 seront présentés.

Influence du rapport isomérique du ^{98}Y Il est intéressant de noter la présence d'un isomère dans la liste des précurseurs principaux de neutrons retardés. Les rapports isomériques sont souvent différents d'une base d'évaluation à l'autre. L'influence du rapport isomérique du ^{98}Y a donc été étudiée (voir figure 2.50). Il existe très peu de différences entre les résultats obtenus avec le rapport isomérique de GEF(47%) et celui par défaut de ENDF/B-VII.0 (50%). Cependant l'utilisation du rapport isomérique donné par JEFF(81%) entraine une augmentation de 1.6 % de ν_d .

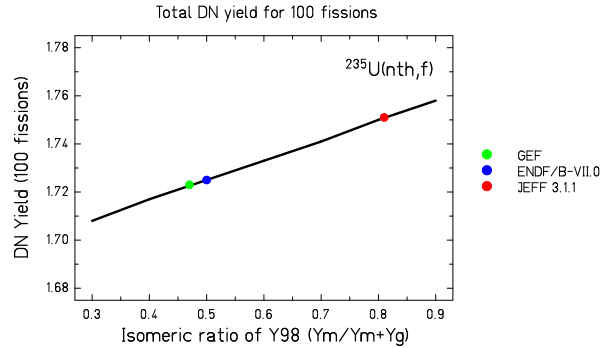


FIGURE 2.50 – ν_d pour l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ en fonction du rapport isomérique de l' ^{98}Y . Les rapports des différentes bases de données sont indiqués par des symboles de couleur différente

Comparaison aux données Les ν_d obtenus avec les rendements de GEF sont en bon accord avec les données évaluées en thermique et à 2 MeV pour les principaux systèmes fissionnants (voir table 2.7). Comme indiqué figure 2.51, les contributions de chaque groupe sont obtenues avec justesse. Le ν_d calculé ne souffre donc pas d'un fort effet de compensation entre les groupes.

L'influence de l'énergie d'excitation sur la production de neutrons retardés a également été étudiée. Les expériences menées à GODIVA et IPPE ont révélé un comportement constant de ν_d jusqu'à $E_n = 4\text{ MeV}$ et une diminution brutale après 4 MeV.

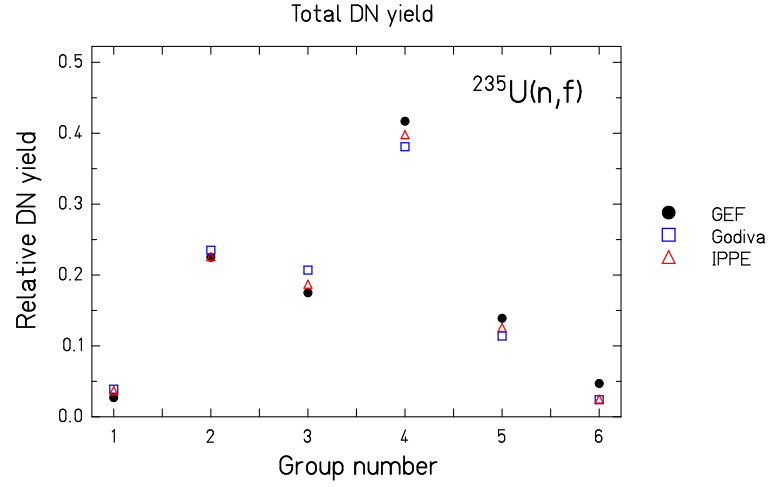


FIGURE 2.51 – Contribution relative des différents groupes de précurseurs au ν_d . Les données expérimentales sont extraites de [RUD02]

Bien que l'effet pair-impair joue un rôle très important, cette diminution ne peut lui être attribuée. En effet, il a été mesuré une diminution de l'effet pair-impair avec l'énergie d'excitation or une diminution de l'effet pair-impair est synonyme d'une augmentation de ν_d .

Les principaux précurseurs de neutrons retardés étant situés sur les pics (voir figure 2.52) c'est la diminution du rapport pic sur vallée qui conduit à une réduction de ν_d . Le comportement constant semble donc traduire la compétition entre la réduction de l'effet pair-impair et la réduction du rapport pic/vallée. Cette idée a été proposée par [ALE77]. Comme indiqué §1.1.2.6, l'effet pair-impair évolue avec l'énergie d'excitation différemment pour les noyaux composés pairs (ex : ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U) par rapport aux noyaux impairs (ex : ^{237}Np), alors que l'évolution du rapport pic sur vallée est identique. On s'attend donc à observer une évolution différente de ν_d pour le ^{237}Np . Les données actuelles bien que restreintes semblent confirmer cette hypothèse (cf figure 2.53).

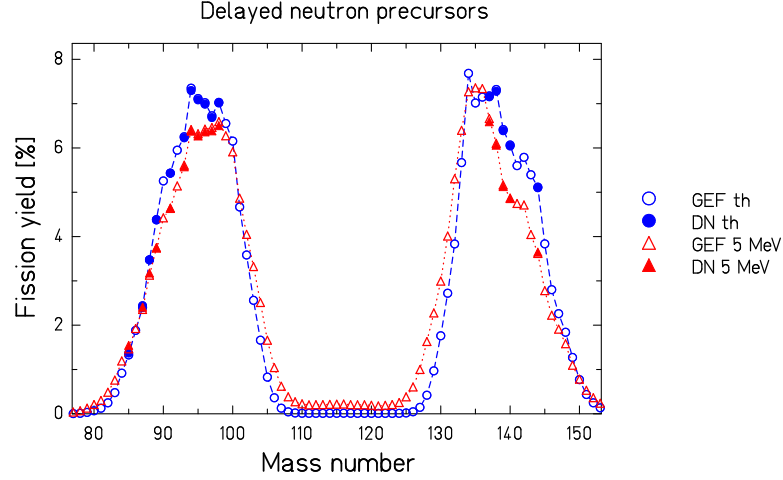


FIGURE 2.52 – Rendements de fission pour l' $^{235}\text{U}(n, f)$ pour $E_n = 25 \text{ meV}$ $E_n = 5 \text{ MeV}$. Les masses avec un précurseur de neutrons sont indiquées par des symboles pleins.

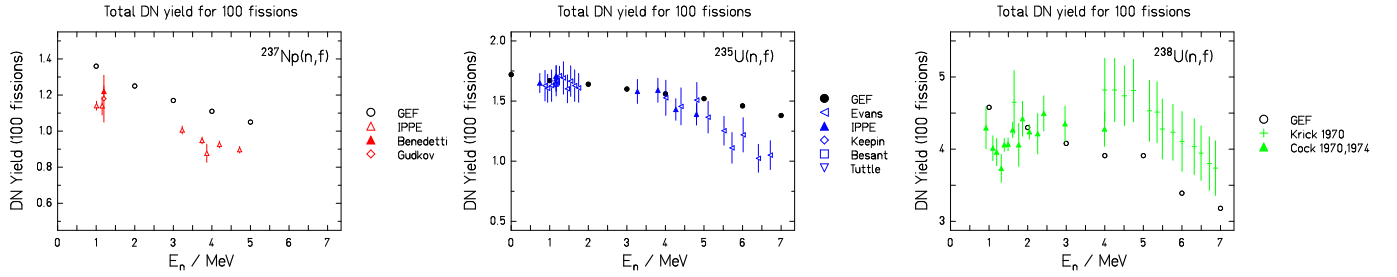


FIGURE 2.53 – ν_d pour $^{235}\text{U}(n, f)$, $^{238}\text{U}(n, f)$ et $^{237}\text{Np}(n, f)$ en fonction de l'énergie du neutron incident

Les prédictions de GEF présentent une pente trop faible pour l' ^{235}U avec l'augmentation de l'énergie d'excitation. On observe cependant que bien que la valeur absolue prédite par GEF pour le ^{237}Np soit sur-estimée l'évolution en fonction de E_n est correcte.

Très peu de données existent au delà de $E_n \approx 6 \text{ MeV}$ (fission multichance), la connaissance de la dépendance de la multiplicité de neutrons retardés en fonction de l'énergie se limite donc aux rares données à 14 MeV (voir figure 2.54). Les données expérimentales à 14 MeV souffrent également de grandes disparités. Certaines données indiquent que $\nu_d(14 \text{ MeV}) > \nu_d(\text{fast})$ ce qui est en contradiction avec le raisonnement tenu précédemment dans l'hypothèse d'une probabilité d'émission de neutrons retardés par fragment P_n invariante avec l'énergie d'excitation puisque $\nu_d = \sum(Y_i \cdot Pn_i)$. Les prédictions de GEF semblent en accord avec les données expérimentales à 14 MeV telles que $\nu_d(14 \text{ MeV}) < \nu_d(\text{fast})$.

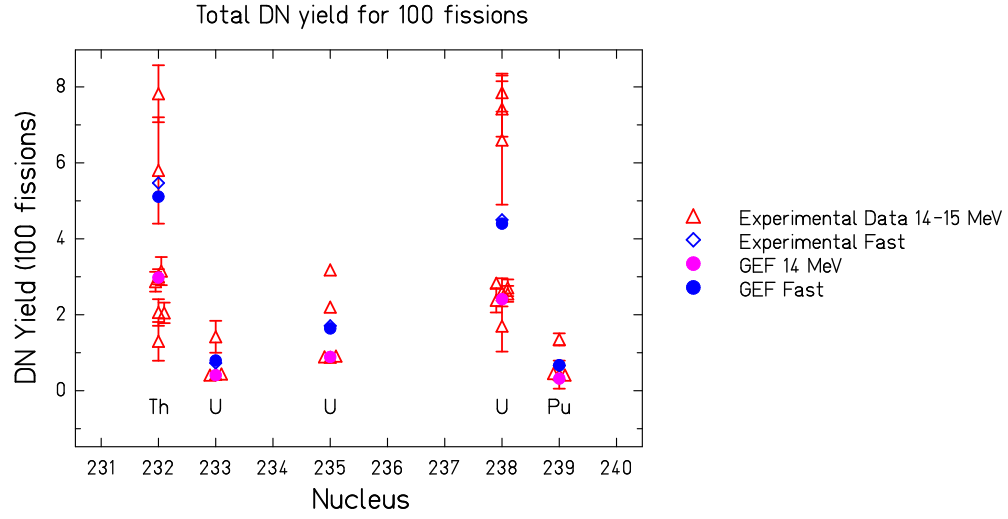


FIGURE 2.54 – ν_d pour différents noyaux à 2 énergies d’excitation différentes. $\nu_d(\text{fast})$ a été calculée pour $E_n=2$ MeV

2.3 Extension du code GEF

La section précédente nous a permis de valider le code GEF dans le domaine thermique qui constitue le domaine de fonctionnement de nos réacteurs actuels. Les mesures de rendement s’orientent vers le domaine rapide. Le manque de modèle à ces énergies ($E_n = 1\text{MeV} - 14\text{MeV}$) nous a conduit à étendre le domaine de validité du modèle GEF.

Si on calcule les rendements de fission avec la version de GEF en vigueur au début de cette étude alors on s’aperçoit que la distribution a tendance à devenir trop symétrique comme en témoigne la très large surestimation du rendement de la masse 111 et celle de la masse 115.

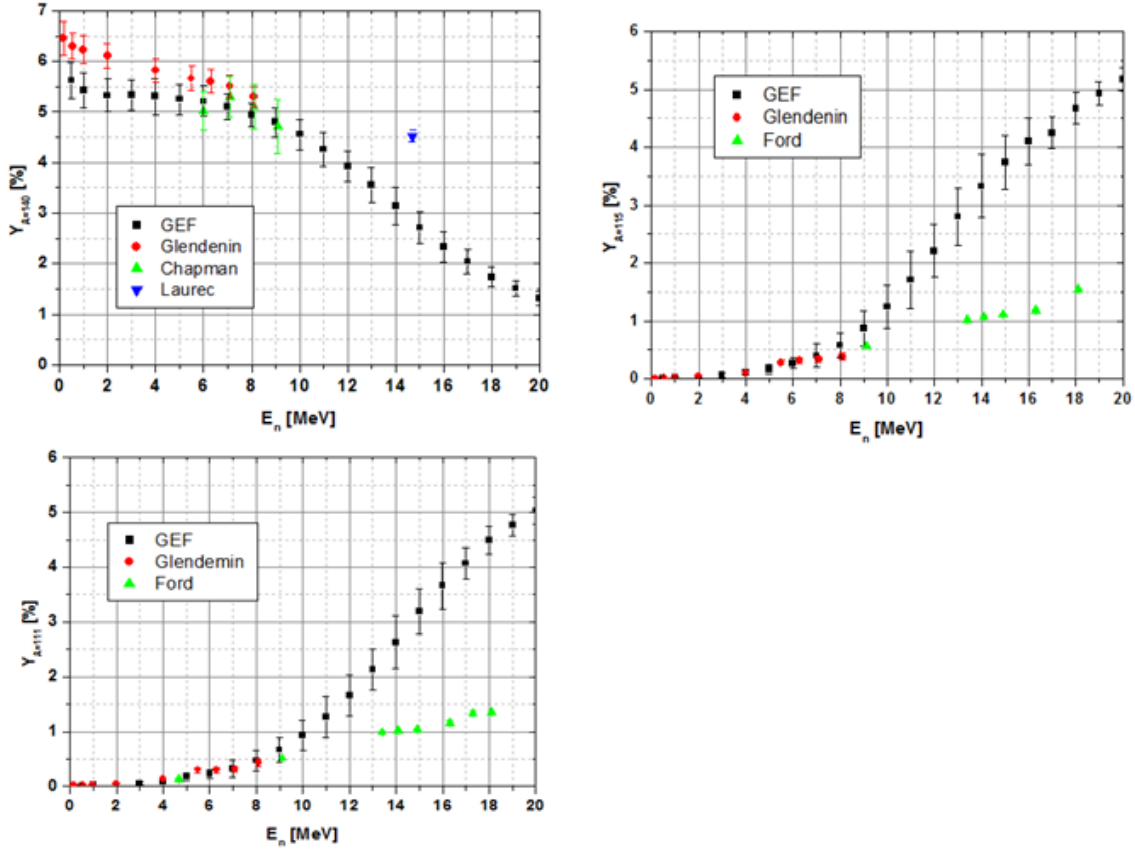


FIGURE 2.55 – Evolution des rendements des masses $A=140$ (en haut à gauche), $A=111$ (en bas à gauche) et $A=115$ (en haut à droite) en fonction de l'énergie du neutron incident pour une fission de $^{235}\text{U}(n, f)$. Les données expérimentales sont indiquées par les symboles en couleur. La version de GEF utilisée est celle de novembre 2012 [GLE81, FOR65, CHA78, LAU10]

En effet, l'effet de l'énergie incidente des neutrons (i.e. $E * +S_n$) intervient dans le poids des différents modes :

$$Poids\ Mode = \exp\left(\frac{E_{rel}}{T_{high}} - \frac{E_{ref}}{0.4}\right) * \frac{1}{1 + \exp\left(-\left(\frac{E_{rel}}{T_{low}} - \frac{E_{rel}}{T_{high}}\right)\right)}$$

où E_{rel} correspond à l'énergie au-dessus de la barrière, T_{high} (resp. T_{low}) à la température effective au-dessus (resp. au dessous) de la barrière et E_{ref} est la hauteur de barrière. Ce qui explique l'allure exponentielle des évolutions des différentes masses, chacune associable à un mode.

L'évolution en fonction de l'énergie du neutron incident est bien reproduite jusqu'à 6-7 MeV environ tant que le noyau qui fissionne est celui de départ ($A+1$). En effet au-delà de 6 MeV on mesure en partie la fission d'un autre noyau : c'est la fission de x ième chance. Cette section s'intéresse à la modélisation simplifiée que j'ai proposée de la fission multi-chance. Une modélisation différente, plus complexe [SCH14] a été faite par K-H Schmidt. Les deux modélisations donnent cependant des résultats très similaires.

2.3.1 La fission de chances multiples

En effet si on considère un noyau de masse A absorbant un neutron d'énergie $E_{n,incident}$, il fissionne (en négligeant la fission par effet tunnel) si $S_n(A+1) + E_n > BF(A+1)$ où BF est la barrière de fission. Le noyau composé peut également réémettre un neutron d'énergie $E_{n,émis}$. L'énergie d'excitation du noyau composé après émission d'un neutron devient $E_{n,incident} - E_{n,émis}$. Si $E_{n,incident} - E_{n,émis} < BF(A)$ on assiste alors à une réaction de diffusion inélastique mais si $E_{n,incident} - E_{n,émis} > BF(A)$ la fission du noyau composé de masse A avec une énergie assimilable à celle d'un neutron incident d'énergie $E_{n,incident} - E_{n,émis} - S_n(A+1)$ devient possible.

Si on considère les temps mis en jeu lors de la fission alors il est impossible de différencier expérimentalement les deux fissions donnant pourtant des rendements très différents. La fission de multi-chance s'observe très bien sur la section efficace de fission qui montre des effets de seuil. Lorsque $E_{n,incident} < BF(A+1)$, le noyau composé peut soit émettre un neutron soit fissionner, si $E_{n,incident} > BF(A+1)$ le noyau dispose d'une voie supplémentaire : émission d'un neutron suivie d'une fission du noyau de masse A d'où une augmentation de la section efficace de fission comme illustré figure 2.56. .

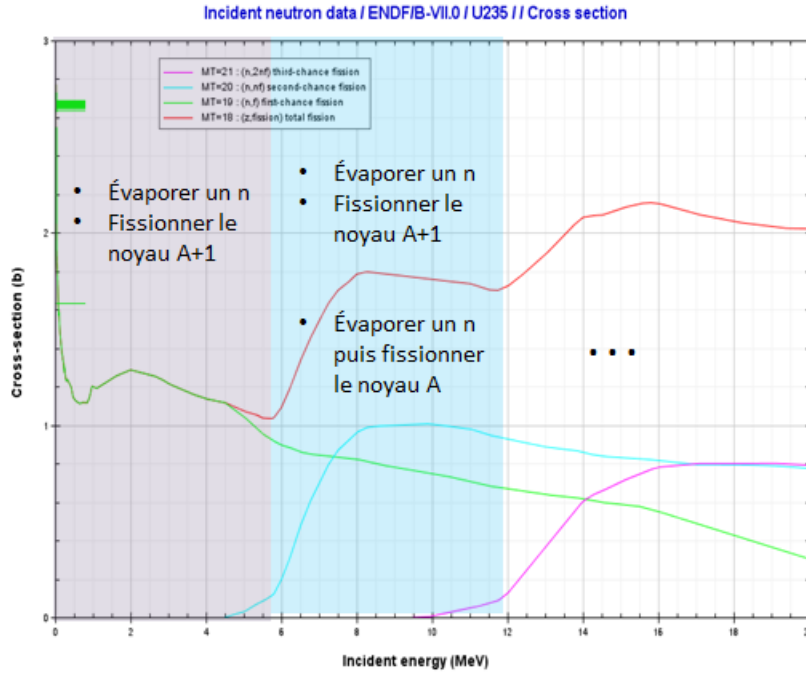


FIGURE 2.56 – Section efficace de l' $^{235}\text{U}(n, f)$ en fonction de l'énergie du neutron incident. Les voies de désexcitation possibles du noyau sont indiquées par des puces. Les sections efficaces liées à chaque chance de fission sont indiquées

Le calcul des rendements de fission requiert donc de prendre en compte les différentes chances de fission et leur poids respectif. Le poids de chaque chance de fission est déterminé pour un noyau A d'énergie d'excitation E^* par la probabilité de fission caractérisée par sa largeur de fission Γ_f par rapport à la probabilité d'émettre un neutron (resp. gamma) caractérisée par la largeur neutronique (resp. radiative) Γ_n (resp. Γ_γ). L'extension de GEF jusqu'à 14 MeV passe donc par le calcul de cette probabilité. La probabilité d'émettre un gamma lorsque l'émission d'un

neutron est possible est pour les fragments de fission très faible donc la largeur radiative Γ_γ est négligée par la suite.

$$P_{fis} = \Gamma_f / (\Gamma_f + \Gamma_n + \Gamma_\gamma)$$

Si on considère une densité de niveau ρ avec une température constante, comme dans le code GEF à basse énergie, alors de manière très simplifiée on a, pour $E^* \approx BF$:

$$\rho(E) = cst * exp(E/T)$$

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \alpha * exp[(Bf - S_n)/T] \quad (2.6)$$

avec α un coefficient d'ajustement [VAN73].

Les deux paramètres déterminant $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ sont donc l'énergie de liaison neutron S_n et la hauteur de la barrière de fission Bf . T étant en général comprise entre 0.3 et 1 MeV on comprend que la précision attendue sur ces deux grandeurs soit importante.

Intéressons nous maintenant plus en détail à l'étude de la barrière de fission. Cette dernière représentée figure 2.57, s'obtient en sommant la barrière macroscopique de Thomas-Fermi [MYE99] (BTF), le défaut de masse dû à un fondamental non sphérique (ΔM) et des effets de couches au niveau des deux barrières (ΔE) (et les effets dus au pairing). Si les corrections de couches sont toujours issues de l'expérience, le défaut de masse peut être déduit de l'expérience ou obtenu par un calcul théorique.

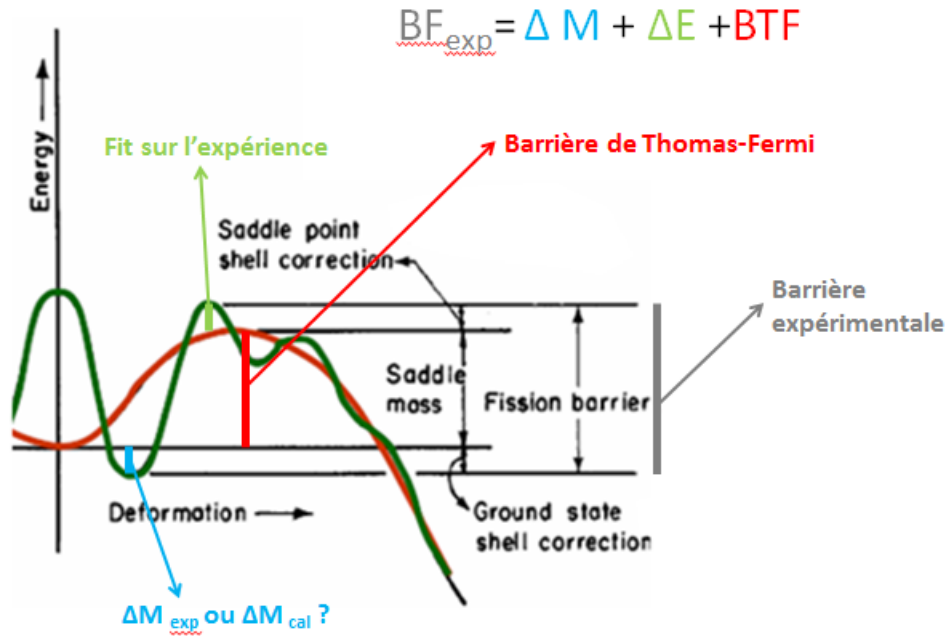


FIGURE 2.57 – Représentation schématique des trois composantes (BTF, ΔM , ΔE) intervenant dans le calcul de la barrière de fission

Dans le cas d'un défaut de masse théorique, les écarts entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites dans GEF sont très grandes dépassant le MeV comme indiqué figure 2.58. Les défauts de masse utilisés seront donc les défauts de masse expérimentaux issus de Myers 2004 [MYE04] qui donnent des barrières de fission plus en accord avec les données expérimentales.

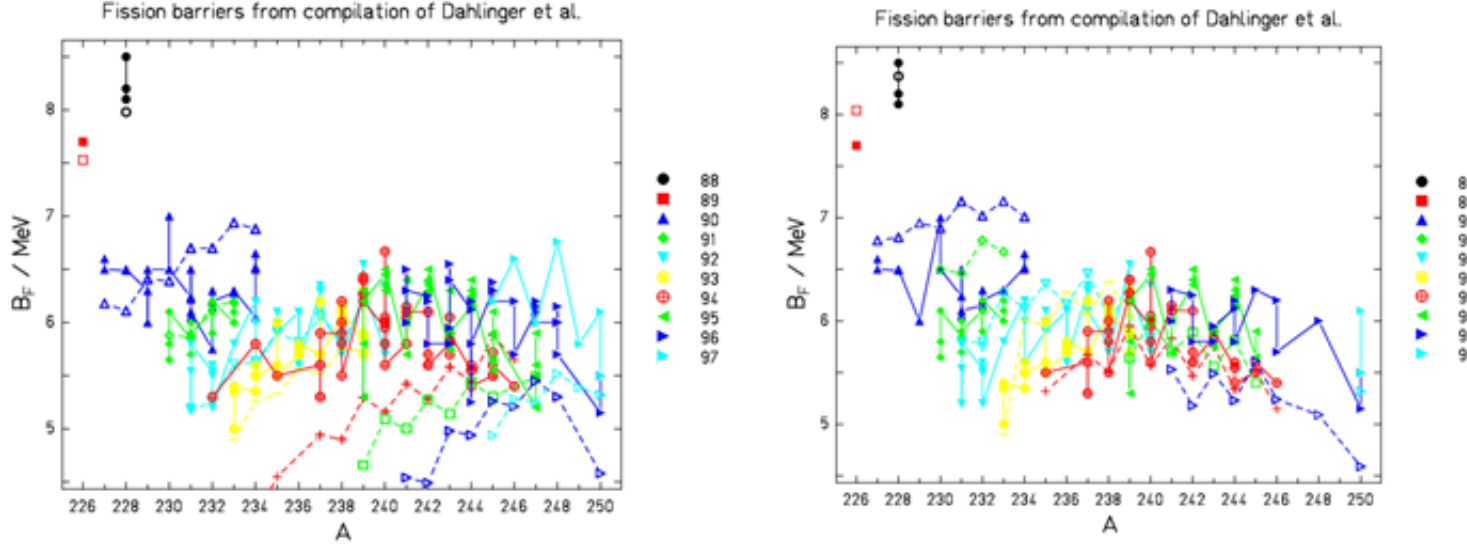


FIGURE 2.58 – Barrières de fission obtenues pour différents défauts de masse : théorique (gauche) et expérimental (droit). Les barrières expérimentales sont extraites de la compilation de Dahlinger [DAH82] Figure réalisée par K-H Schmidt

On observe que l'écart entre les barrières calculées et celles mesurées semble dépendre de Z (voir figure 2.59). Si pour chaque Z on moyenne l'écart entre la barrière calculée et celle mesurée on observe deux comportements. Pour la barrière externe, il y a un décalage constant entre les deux valeurs alors que pour la barrière interne, il existe une dépendance linéaire. On a donc ici réalisé un ajustement indépendant pour chaque barrière.

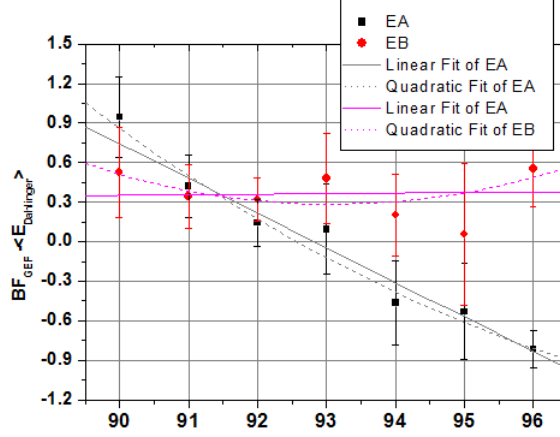


FIGURE 2.59 – Ecart entre les barrières de fission calculées et expérimentales en fonction du Z du noyau composé. EA correspond à la barrière interne et EB à barrière externe[DAH82]

Une autre solution qui est celle actuellement retenue par K-H Schmidt est l'ajustement de la barrière la plus haute avec une dépendance en Z puis un ajustement de l'écart entre les deux barrières issu de [IST79] :

$$E_A - E_B = 5.40101 - 0.00666175 \cdot Z^3/A + 1.52531 \cdot 10^{-6} \cdot (Z^3/A)^2$$

Comme indiqué figure 2.60, les deux méthodes donnent des résultats assez comparables et sont en accord avec les données. Les différences étant sur les noyaux avec les Z les plus élevés où très peu de données expérimentales sont disponibles.

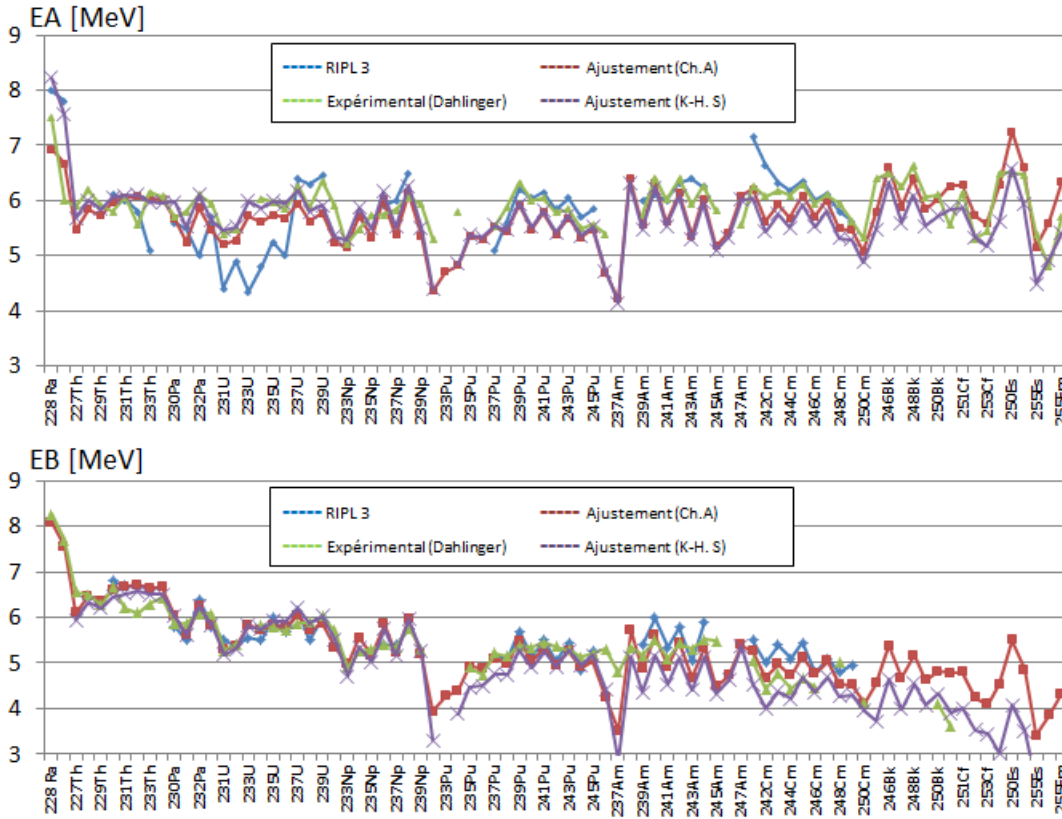


FIGURE 2.60 – Barrière de fission interne EA (haut) et externe EB (bas) pour différents isotopes. Les données expérimentales (ligne verte) sont issues de [DAH82]. Les barrières évaluées (RIPL) sont représentées en bleu. Les barrières calculées dans le cadre de cette thèse et par K-H schmidt sont représentées en rouge et violet

2.3.2 Γ_n/Γ_f proche de Bf

Les $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ expérimentales représentées figure 2.61 semblent confirmer la dépendance linéaire de $\ln(\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f})$ avec la différence $Bf - S_n$ (cf équation 2.6).

Influence de la parité du noyau Dans un premier temps, on note une dépendance du coefficient α avec la parité neutron des noyaux fissionnants. Afin de trouver un unique coefficient α , Kupriyanov [KUP80] propose de « lisser » l'énergie de liaison S_n : l'énergie de liaison est alors moyennée sur les noyaux voisins en utilisant des valeurs expérimentales. Dans le cas d'une énergie de liaison S_n calculée de manière théorique (comme c'est actuellement le

cas dans GEF) cela revient à supprimer le terme de parité de l'énergie de liaison.

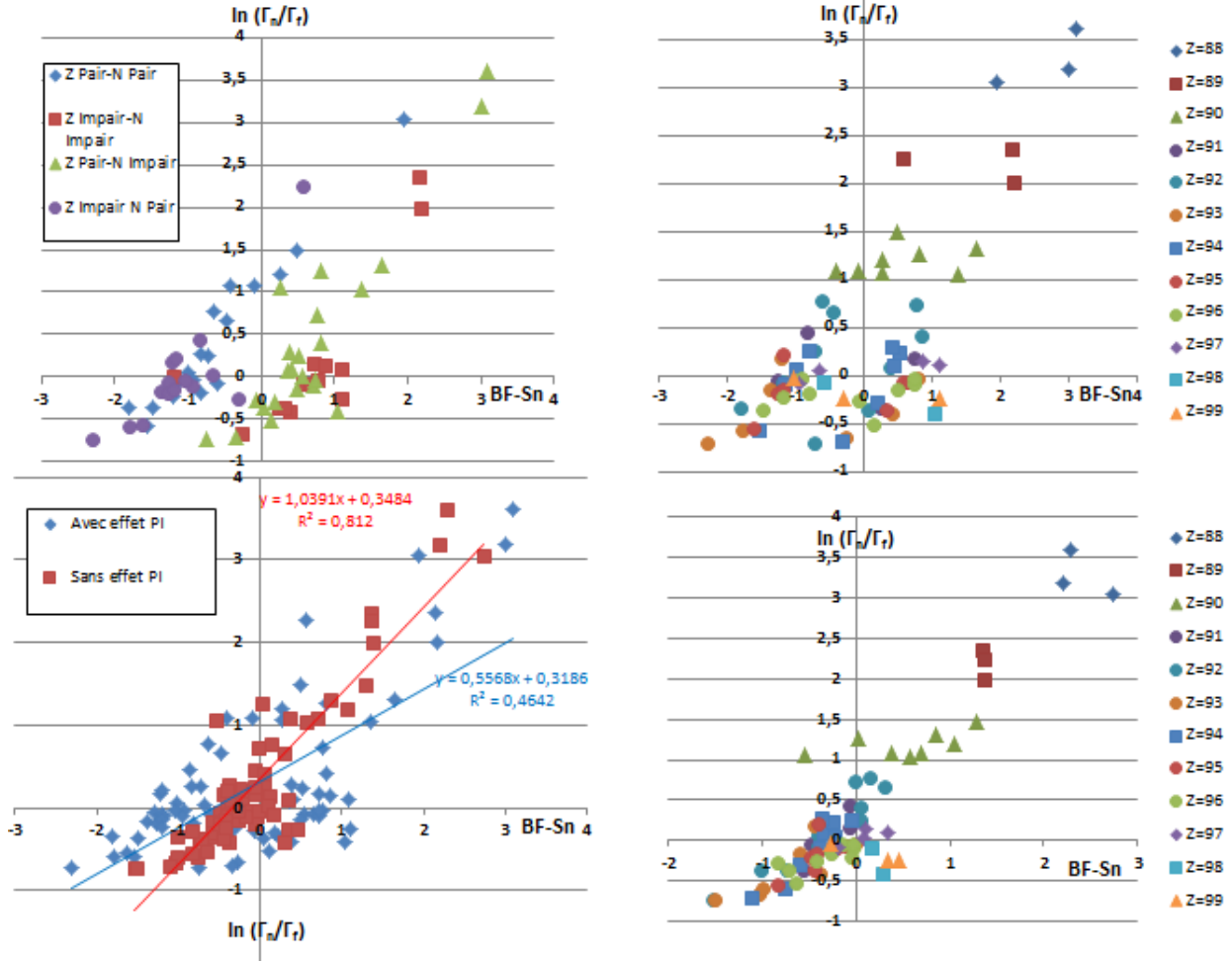


FIGURE 2.61 – $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ (à la barrière) expérimentale en fonction de la différence d'énergie entre la barrière de fission calculée comme indiqué equation 2.6 et l'énergie de liaison du neutron. La figure en haut à gauche représente $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ selon la parité du noyau. La figure en bas à gauche représente $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ pour l'ensemble des noyaux pour S_n avec (bleu) et sans (rouge) terme de parité. La figure en haut à droite représente $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ selon le Z du noyau (S_n avec terme de parité). La figure en bas à droite représente $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ selon le Z du noyau (S_n sans terme de parité) [IST79]

La suppression des effets pairs impairs conduit comme proposé précédemment à l'obtention d'un coefficient α unique comme illustré figure 2.61 en bas à droite.

Influence de la nature de la barrière maximale Le raisonnement présenté précédemment se rapporte à la barrière la plus haute. Or cette barrière correspond à la barrière externe pour les actinides légers ($Z < 92$) et interne pour les actinides à Z plus élevé comme le montre la figure 2.62 et figure 2.59. Les propriétés (déformation, asymétrie de masse correspondante) de ces barrières étant différentes, on peut raisonnablement faire l'hypothèse de deux coefficients α selon la nature de la barrière maximale. Cependant on ne remarque pas figure 2.61 de comportements différents entre les noyaux à $Z < 92$ et les noyaux trans-uraniens. Un coefficient α unique a donc été

ajusté.

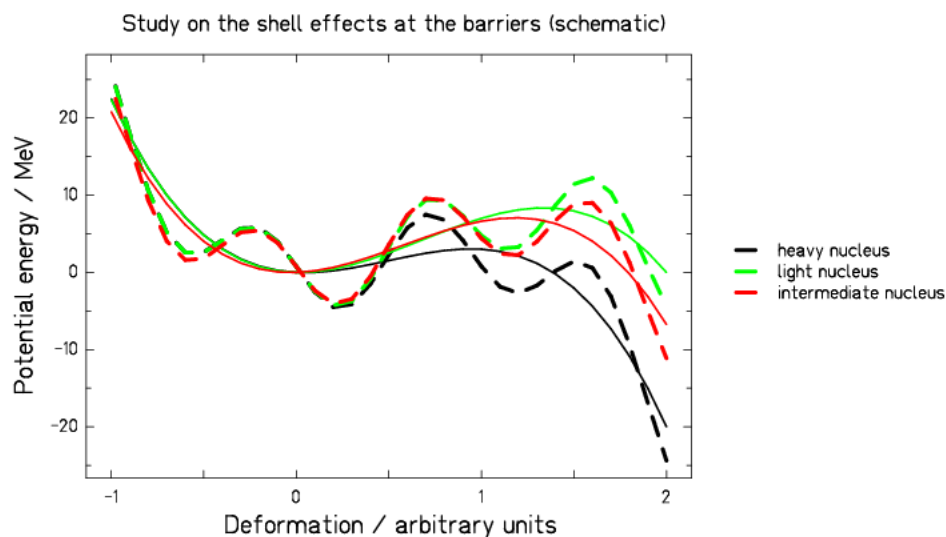


FIGURE 2.62 – Barrière de fission pour différents noyaux composés. Figure réalisée par K-H Schmidt

Les résultats de l'ajustement des barrières de fission et des coefficients α et T sont présentés table 2.8.

Coefficient	Valeur
ΔEA	$-(0.02-0.04*Z)$ MeV
ΔEB	$-(24.4-0.26*Z)$ MeV
α	1.417
T	0.962 MeV

TABLE 2.8 – Résultats des ajustements des hauteurs de barrière de fission et des coefficients α et T de l'équation 2.6

Comparaison avec les données expérimentales Les probabilités de fission calculées avec la formule 2.6 et les coefficients donnés table 2.8 sont représentés par des lignes rouges sur la figure 2.63. Les données expérimentales sont extraites de [BAC74a, BAC74b]. Les probabilités de fission obtenues reproduisent dans l'ensemble les données expérimentales cependant des écarts de 20% sont observés pour certains noyaux. Rappelons que la formule obtenue précédemment n'est valable qu'à proximité de la barrière.

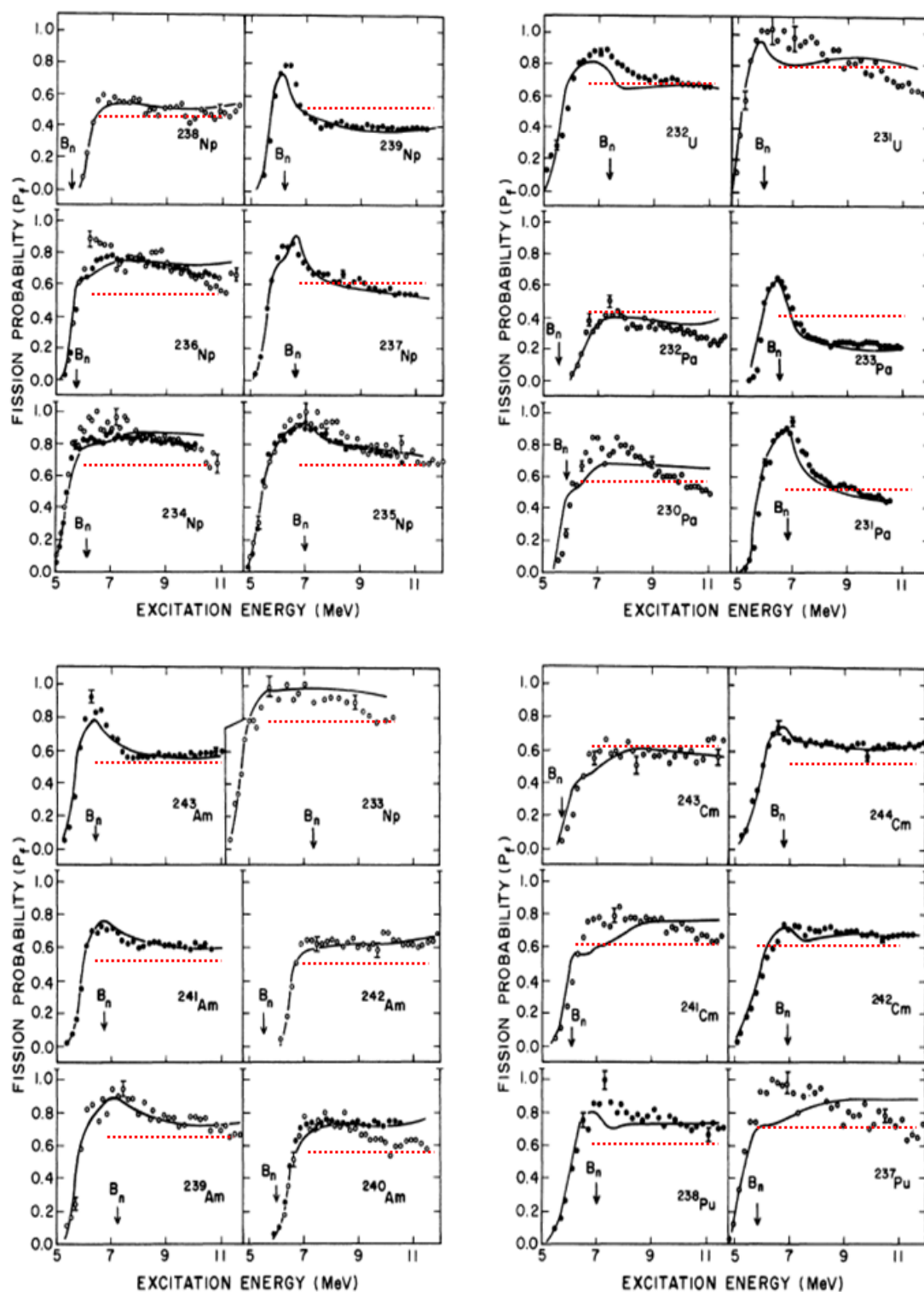


FIGURE 2.63 – Probabilité de fission pour différents noyaux fissionnants, les points noirs correspondent aux points expérimentaux. Les lignes pointillées rouges indiquent la probabilité de fission obtenue comme annoncée précédemment [BAC74a, BAC74b]

Comme illustré pour le ^{232}Pa figure 2.64 la probabilité de fission diminue légèrement avec l'énergie du neutron incident. Cette dépendance avec l'énergie diffère d'un noyau à l'autre, elle ne peut donc pas être modélisée simplement. De plus, la grandeur d'intérêt pour la prédiction de rendements avec l'énergie d'excitation n'est pas la probabilité de fission absolue mais la contribution des différentes chances de fission. Ces dernières ont été comparées pour l' ^{235}U et pour le ^{239}Pu .

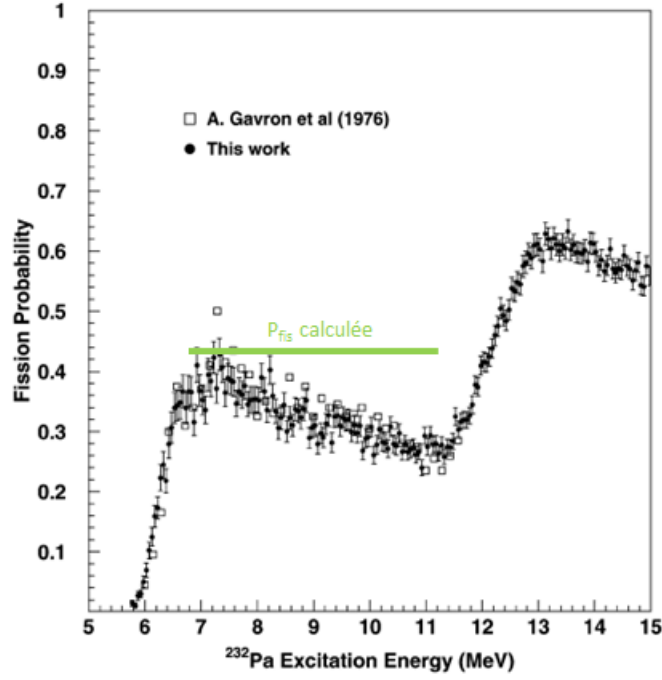


FIGURE 2.64 – Probabilité de fission pour le ^{232}Pa ($S_n = 5.5\text{MeV}$) [PET04]

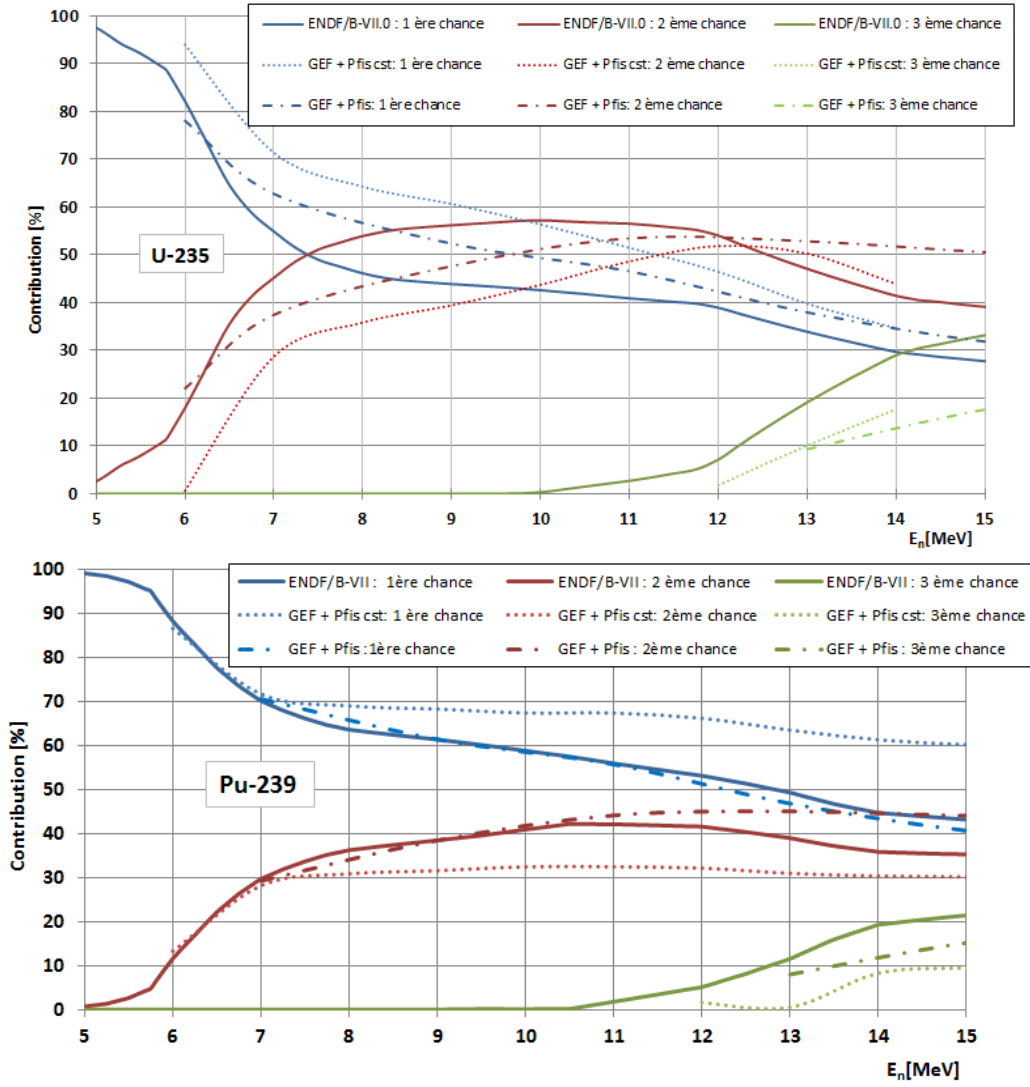


FIGURE 2.65 – Contribution des premières, secondes et troisièmes chances à la section efficace de fission pour l' ^{235}U (haut) et le ^{239}Pu (bas). Les lignes pleines correspondent aux données évaluées. Les lignes en pointillés (traits points) correspondent au calcul via l'équation 2.6 avec un α constant (dépendant de l'énergie)

Dans le cas d'une probabilité de fission qui ne diminue pas avec l'énergie, la contribution de la première chance est trop importante comme observé figure 2.65. Afin de réduire cet effet une légère dépendance de P_{fis} avec l'énergie d'excitation a été appliquée comme suit.

Pour des énergies d'excitation élevées, les densités de Fermi sont préférées au modèle à température constante et le rapport de $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ calculé pour deux énergies E_1 et E_2 peut être approximé par la formule suivante :

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}(E_1)/\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}(E_2) = \frac{T_2}{T_1} * \exp([(Bf - S_n) * (\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1})])$$

Soit : $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = f * \alpha * \exp[(BF_{max} - S_n)/T]$

Après optimisation de cette dépendance sur la zone 9-11 MeV du ^{239}Pu , on obtient

$f = \text{Max}(1, 0.15 * E * -1)$ où E^* correspond à l'énergie d'excitation.

En conclusion, l'introduction de la fission de multi-chance a très largement augmenté la capacité prédictive des rendements à hautes énergies comme en témoigne la figure 2.66.

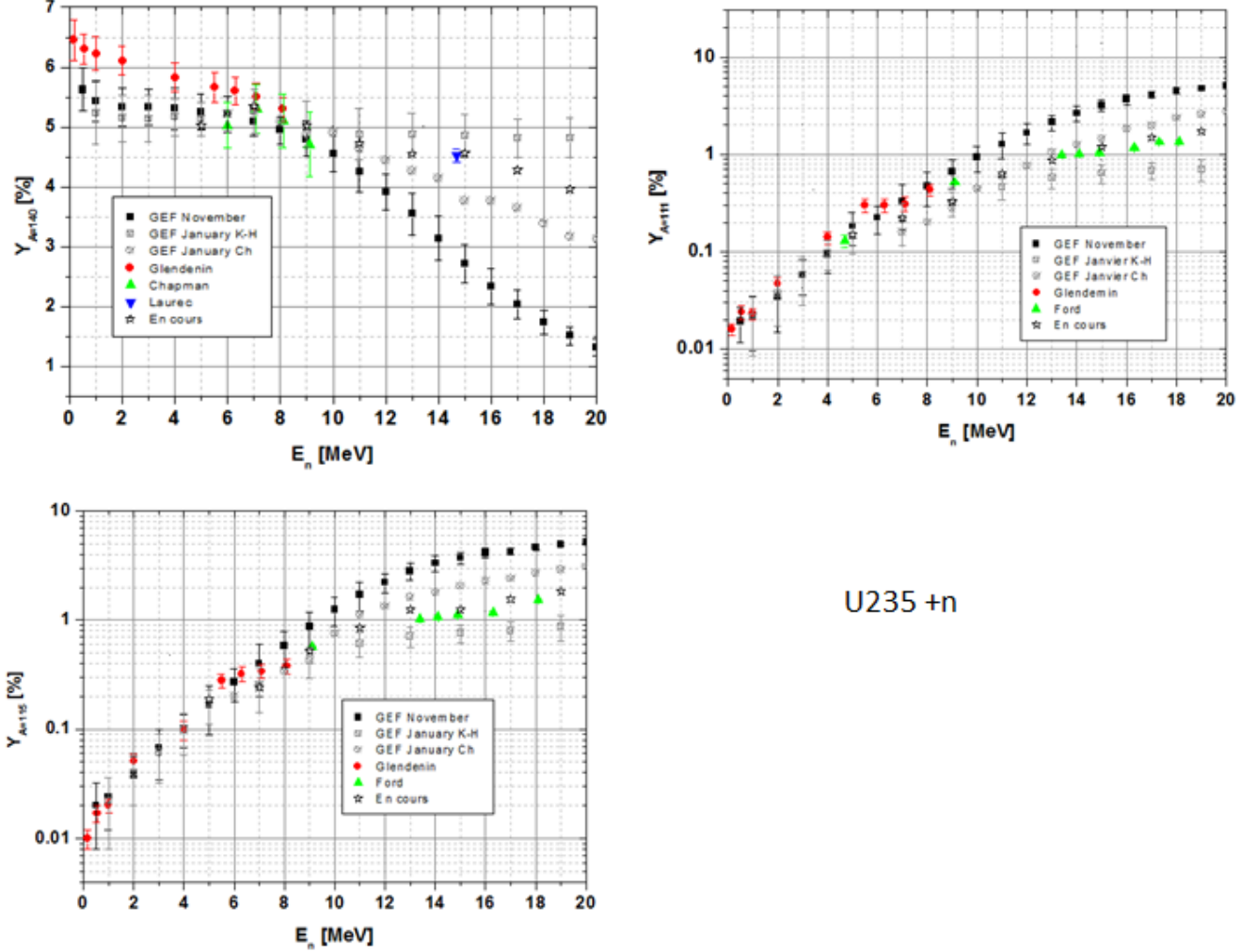


FIGURE 2.66 – Rendements de fission pour $A=140$ (en haut à gauche), $A=111$ (en bas à gauche) et $A=115$ (en haut à droite) en fonction de l'énergie du neutron incident pour une fission de $^{235}\text{U}(n, f)$. Les données expérimentales sont indiquées par les symboles en couleur. Les carrés pleins correspondent aux rendements obtenus avant l'inclusion de la fission multi-chance. Les carrés ouverts correspondent aux rendements obtenus après inclusion de la fission multi-chance avec la modélisation de K-H Schmidt au moment de cette étude. Les cercles ouverts (étoiles) correspondent aux rendements obtenus avant l'inclusion de la fission multi-chance comme décrite dans cette thèse avec un coefficient $f=1$ ($f = \text{Max}(1, 0.15 * E * -1)$). [GLE81, FOR65, CHA78, LAU10]

Les rendements au niveau de la symétrie prédits jusqu'alors avec un facteur 3 d'erreur présentent actuellement un écart par rapport aux mesures de l'ordre de 20-30%. Concernant les pics les rendements étaient jusqu'à présent sous-estimés d'un facteur 2, ils sont maintenant bien reproduits avec une précision de l'ordre de 10-20%.

Il semble également important de revenir un peu plus sur la qualité des données et des évaluations. Comme on peut le voir figure 2.67 sur le ^{239}Pu à 14 MeV les données ne sont pas toujours cohérentes entre elles notamment sur

le pic lourd. Une précision de 10-20% peut donc être considérée comme raisonnable. La comparaison aux données sur l'ensemble des masses a également été réalisée pour l' ^{235}U où JEFF-3.1.1 et ENDF-B/VII.0 présentent des évaluations différentes. Les données n'ont pas permis de discriminer entre les deux bases. Les rendements obtenus dans cette version de GEF ont le bon rapport pic sur vallée, donnée significative de la fission de multi-chance. Cependant on remarque que les pics ne sont pas assez larges, on a donc une sous-estimation des rendements dans les zones $A=100-110$ et $A=120-130$. Ce biais est déjà présent dans le domaine thermique pour cette version.

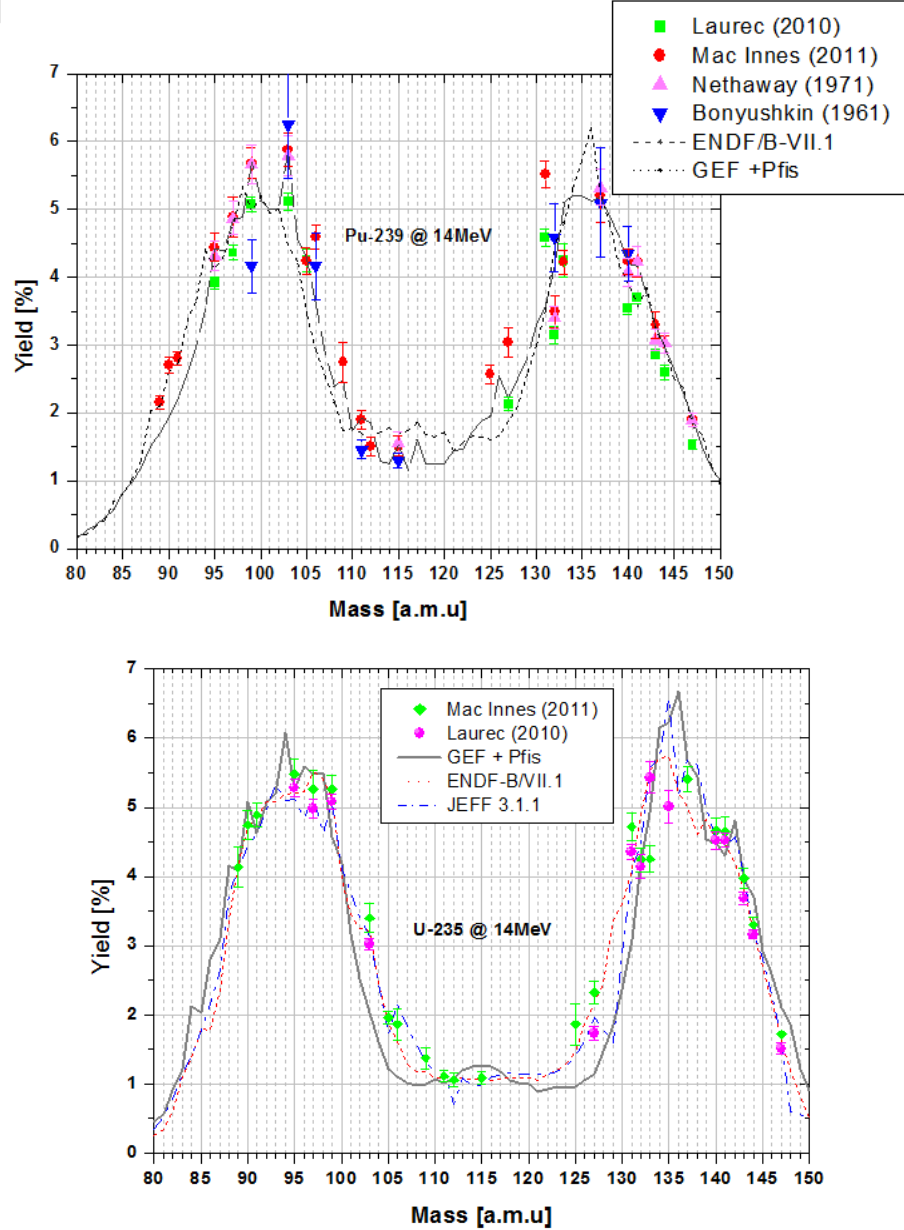


FIGURE 2.67 – Rendements de fission à 14 MeV pour le ^{239}Pu (haut) et le ^{235}U (bas). Le trait continu correspond aux rendements de fission obtenus avec la contribution des différentes fissions présentées dans ce chapitre [MAC11, LAU10]

Conclusion

Après la validation de GEF sur un grand nombre d'observables et l'amélioration qui en a découlé, on peut raisonnablement dire que ce code peut prétendre à devenir un outil d'évaluation [SCH14]. Les prochaines améliorations devraient porter sur la compétition entre l'évaporation neutron et gamma afin d'affiner la prédiction des contributions des différentes chances de fission, une meilleure évaporation neutron pour réduire de manière non artificielle l'effet pair-impair. De nouvelles données expérimentales (SOFIA par exemple) devraient permettre de mieux tester le modèle et de mettre en exergue des mécanismes jusque-là non ou mal modélisés.

Chapitre 3

Mesure des rendements de l' ^{242}Am

Les modèles semi empiriques comme celui présenté dans le chapitre précédent s'appuient très largement sur les données expérimentales. Ce chapitre détaille le dispositif expérimental utilisé lors de la mesure des rendements en masse et isotopiques au spectromètre Lohengrin du réacteur de l'institut Laue Langevin (ILL).

3.1 Réacteur de l'ILL et le spectromètre Lohengrin

3.1.1 Réacteur de l'ILL

L'institut Laue-Langevin situé à Grenoble est un centre international à vocation scientifique construit voilà plus de quarante ans autour d'un réacteur thermique à haut flux. Plus précisément, l'ILL est l'installation qui délivre en sortie de tube ou de guide le plus haut flux de neutrons thermiques au monde pour des activités de recherche. Son réacteur (voir figure 3.1) est composé d'un cœur compact très enrichi en ^{235}U et entouré d'eau lourde qui lui sert de modérateur. Le flux mesuré par les différents instruments est essentiellement thermique, à l'exception des quelques instruments qui ont vue sur les sources chaudes (une sphère de graphite maintenue à 2600 °C) ou froides (sphère de deutérium liquide). La quarantaine d'instruments installés à l'ILL est mise à disposition des chercheurs du monde entier sous condition d'acceptation par des comités scientifiques. Ils permettent d'explorer la matière dans de nombreux domaines : biologie, chimie, physique des matériaux, physique nucléaire. Ces instruments s'articulent soit directement autour du réacteur (niveau C sur la figure 3.1) ou encore sont disposés près de guides à neutrons (ILL7, ILL2 et niveau D) L'instrument utilisé dans le cadre de cette thèse est le spectromètre Lohengrin.

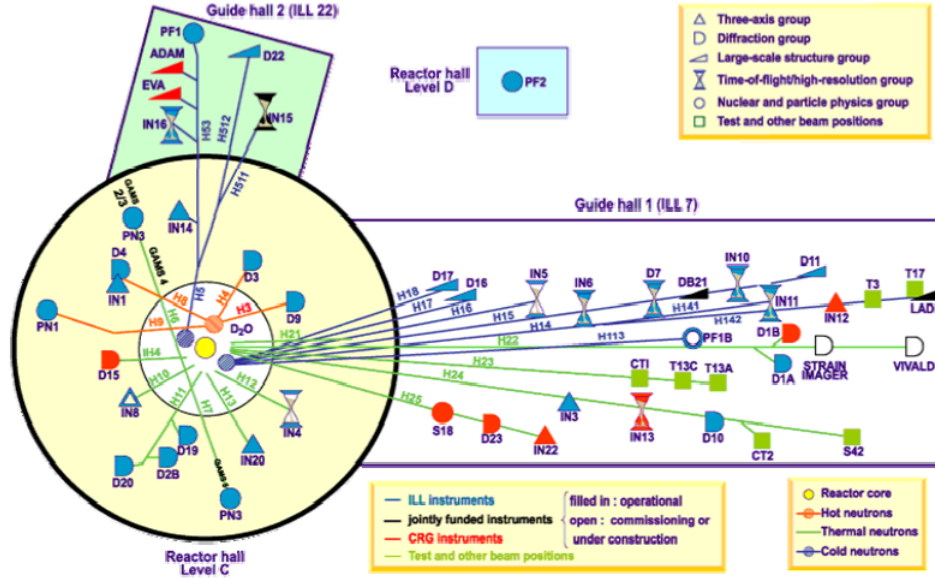


FIGURE 3.1 – Réacteur à haut flux de l’Institut Laue Langevin de Grenoble (France)

3.1.2 Spectromètre Lohengrin

Lohengrin (l’instrument PN1 sur la figure 3.1) est un spectromètre de masse installé directement à la sortie du tube H9 du réacteur de l’ILL et ayant une vue directe sur une cible fissile (ou fertile) placée à 50 cm du coeur. L’installation est maintenue à un vide poussé ($p < 5 \cdot 10^{-5}$ mbar). Le spectromètre mesure donc les fragments avec (quasiment) leur énergie cinétique à la fission et sans perturber leurs rendements respectifs, contrairement aux sources de type ISOL où les fragments qui s’échappent de la source doivent être accélérés avant d’être envoyés vers un spectromètre. Le spectromètre illustré à la figure 3.2 est composé d’un aimant dipolaire (dipole magnet sur la figure 3.5) et d’un condensateur (deux plaques courbées sur lesquelles une différence de potentiel est appliquée et qui peut atteindre 800 kV). Les fragments sont déviés en fonction de leur masse (A), charge ionique (q) et énergie cinétique (E) par les champs magnétiques et électriques, générés respectivement dans l’aimant et le condensateur, vers des collimateurs horizontaux et verticaux placés en sortie du spectromètre. Ainsi seuls les fragments avec un certain rapport A/q et E/q , sont transmis en sortie du spectromètre.

La mesure de l’énergie des fragments grâce à une chambre d’ionisation en position expérimentale 1 permet de définir de manière unique la masse du fragment mesuré et d’obtenir ainsi les rendements en masse (en relatif). La mise en place d’un dispositif de spectrométrie gamma à la position expérimentale 2 permet d’obtenir les rendements isotopiques.

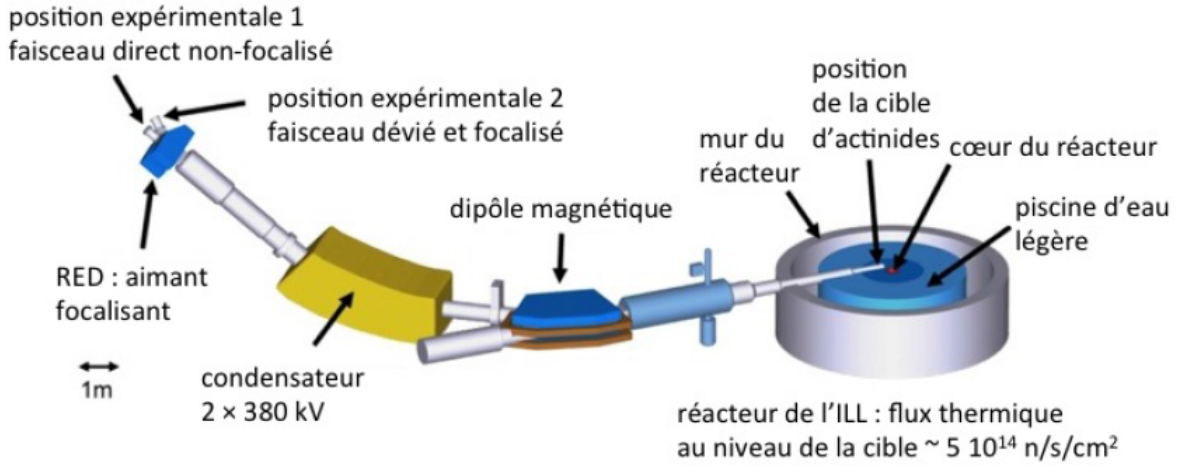
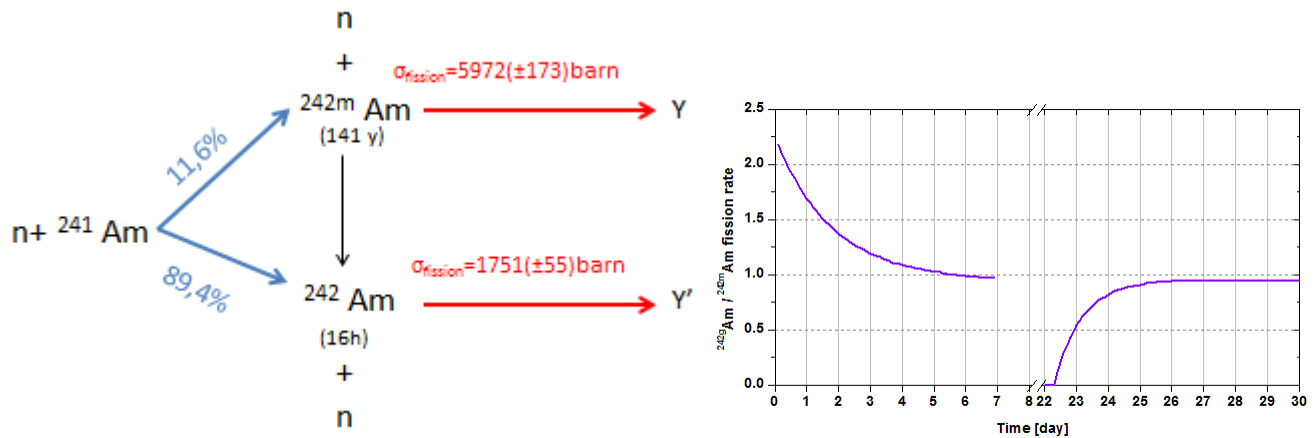


FIGURE 3.2 – Spectromètre Lohengrin [MAR13]

La cible vue par Lohengrin est placée à 50 cm du cœur et reçoit un flux de neutrons thermique $\Phi = 7 \cdot 10^{14} n \cdot cm^{-2}$ soit $\Phi(\text{equivalent capture au point thermique}) = 5 \cdot 10^{14} n \cdot cm^{-2}$. Pour les mesures des rendements de $L^{242}Am$, la cible est constituée d'un dépôt de 7 cm*1 cm d' $L^{241}Am$ (99%) sur une fine plaque de Ti. L'épaisseur des dépôts d'actinides varie selon le but des expériences et est choisie entre 50 et 400 $\mu g/cm^2$, pour optimiser soit la résolution énergie, soit le taux de fragments détectés. Toutes nos cibles avaient une épaisseur de 300 $\mu g/cm^2$. Compte tenu de la durée de vie du fondamental de $L^{242}Am$, l'utilisation d'une cible d' $L^{242}Am$ était impossible, une réaction de double capture présentée figure 3.3, a donc été préférée. La cible d' $L^{242}Am$ est donc faite en ligne. Elle permet l'étude de la fission de l'état fondamental et celle de l'état isomérique de $L^{242}Am$ en effectuant une mesure avant et après un arrêt du réacteur (voir figure 3.3 droite). Comme tenu de la section efficace de fission de $L^{241}Am$, le taux de fission de ce dernier est de l'ordre de 3% du taux de fission total et est donc négligé.

FIGURE 3.3 – Réaction de double capture sur $L^{241}Am$ (gauche) et variation du rapport du taux de fission entre $L^{242m}Am$ et $L^{242gs}Am$ en fonction du temps de mesure (droite)

On peut facilement calculer le nombre de fissions ayant lieu dans la cible, où on suppose un nombre d'atomes

constant N_{atomes} , connaissant la dimension de cette dernière, le flux de neutrons et la section efficace de fission après double capture (environ 600 barns). Le nombre de fragments de masse A entrant dans le spectromètre $N_{fragments}$ sera proportionnel au rendement de cette masse $Y_{fragment}$ et à l'acceptance géométrique de l'aimant de Lohengrin $p = 3.2 \cdot 10^{-5} / (4\pi) = 2.5 \cdot 10^{-6}$.

$$N_{fragments} = p * Y_{fragment} * N_{fission} \text{ avec } N_{fission} = N_{atomes} * \sigma * \Phi \quad (3.1)$$

$$\text{et } N_{atomes} = \text{epaisseur}[g.cm^{-2}] * \text{surface}[cm^2] * N_{avogadro}/A$$

$$N_{fragments} \sim 2.5 \cdot 10^{-6} * 0.01 * 300 * 10^{-6} * 7 * (6 \cdot 10^{23}/241) * 600 \cdot 10^{-24} * 5 \cdot 10^{14}$$

$$N_{fragments} \sim 4 \cdot 10^4 \text{ fragments } s^{-1}$$

Compte tenu des sélections effectuées, on mesure au point focal un nombre beaucoup plus réduit de produits de fission. En effet, on ne mesure qu'une seule charge (soit pour le maximum environ 20% de l'ensemble des charges) et un intervalle en énergie très étroit (soit environ 2% de la distribution en énergie). On a donc un taux de comptage de l'ordre de 200 Hz.

$$N_{fragments \text{ mesurés}} \sim 0.20 * 0.02 * 4 \cdot 10^4 \sim 2 \cdot 10^2 \text{ fragments mesurés } s^{-1} \quad (3.2)$$

Notre cible, illustrée de manière schématique figure 3.4, est composée d'un dépôt de matière active (ici 99% d' ^{241}Am) sur une plaque de titane afin d'assurer la tenue mécanique. Le titane a été choisi car il s'active peu et le dépôt d' ^{241}Am y est possible. La matière active est recouverte d'une feuille ultra fine de nickel (0.25 μm) afin de réduire la perte de matière active par sputtering. Lorsque les fragments sortent de la matière active ils constituent des noyaux très lourds et très énergétiques, ils emportent donc avec eux une partie de la matière nucléaire; ce phénomène est appelé « sputtering ».

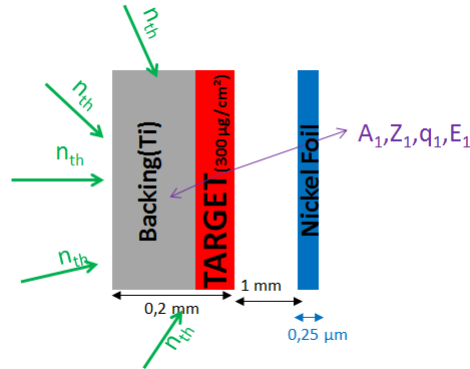


FIGURE 3.4 – Cible : dépôt de matière active sur une plaque de Ti et recouvert d'une fine feuille de Ni

On suppose que les fragments émis sont nus à la fission i.e leur charge ionique q est égale à la charge nucléaire Z . Lorsque les fragments traversent de la matière, un équilibre de charge a lieu et les fragments « récupèrent » des électrons. Leur charge ionique à l'entrée du spectromètre, égale à celle à la sortie de la feuille de nickel, est donc plus faible et de l'ordre de 21. La traversée de matière induit également une perte d'énergie. L'énergie cinétique du fragment E correspond alors à :

$$E = E_{fission} - \Delta E_{matiere\ active} - \Delta E_{nickel}$$

avec $\Delta E_{matiere\ active} \sim 1 - 2\ MeV$ et $\Delta E_{nickel} \sim 7\ MeV$

Après traversée de la cible, les fragments rentrent dans l'aimant (voir figure 3.5) qui défléchit les fragments selon leur moment sur la charge. En effet l'équation du mouvement dans un aimant [MAR13] donne

$$\frac{Av^2}{\rho_B} = qvB$$

où ρ_B est le rayon de courbure de l'aimant et B le champ magnétique.

Le condenseur placé en aval réalise une seconde sélection en fonction du rapport E/q :

$$\frac{Av^2}{\rho_E} = q\varepsilon$$

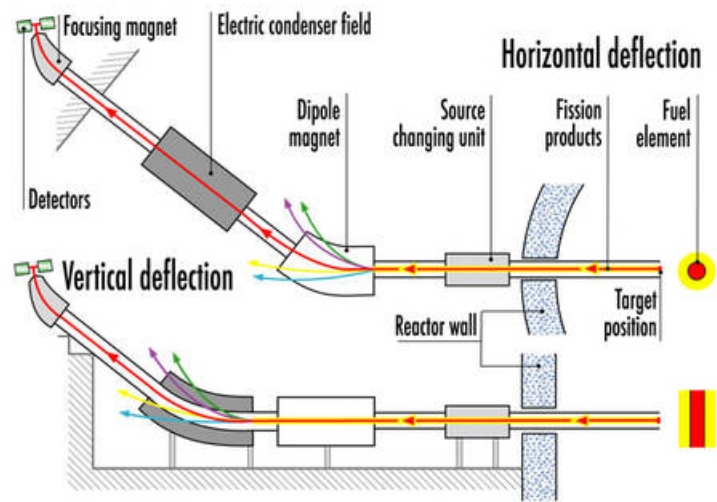
où ρ_E est le rayon de courbure du condenseur et ε le champ électrique.

On trouve :

$$A/q = B^2 \rho_B^2 / \varepsilon \rho_E \tag{3.3}$$

et

$$E/q = 0.5 * \varepsilon \rho_E \tag{3.4}$$

FIGURE 3.5 – Sélection des différents éléments du spectromètre Lohengrin (www.ill.eu)

La résolution en masse dépend des collimations horizontales et de la taille de la cible. Dans notre cas, $\Delta A/A = 1/400$ toutes les masses sont donc résolues pour les fragments de fission. La résolution en énergie est quant à elle déterminée par les collimations verticales et la longueur de la cible.

3.2 Chambre d'ionisation

Les sélections A/q et E/q ne permettent pas de définir de manière unique le triplet $A/q/E$. En effet on peut prendre l'exemple des triplets 100/20/100 et 105/21/105 qui vérifient tous deux $A/q=5$ et $E/q=5$. C'est pour cette raison qu'une chambre à ionisation avec une résolution en énergie de 1% est installée à la sortie du spectromètre Lohengrin (cf figure 3.6). Il est important de noter que la chambre ne sert qu'à déterminer le triplet $A/q/E$ parmi les quatre ou cinq choix possibles. La distribution en énergie cinétique des fragments en sortie du spectromètre est fixée par la fission, la collimation du spectromètre et la taille de la cible.

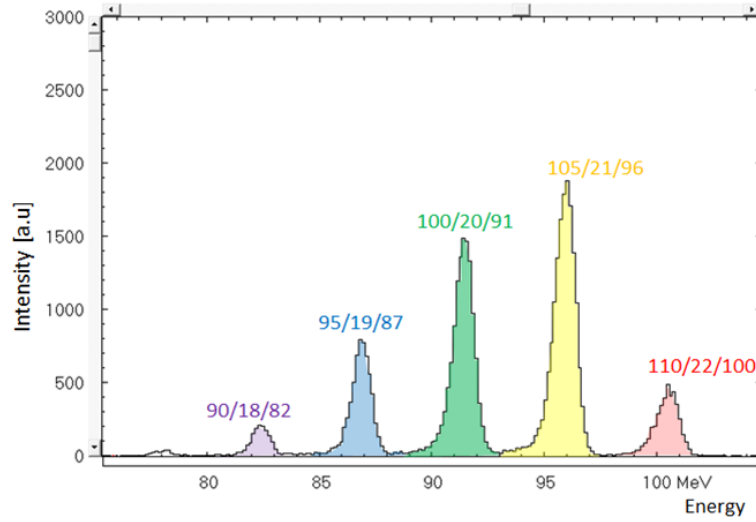


FIGURE 3.6 – Sélection du spectromètre : nombre de coups pour différents triplets $A/q/E$ La mesure de l'énergie définit de manière unique le triplet $A/q/E$

La chambre d'ionisation est divisée en deux parties (voir figure 3.7) afin de mesurer en plus de l'énergie totale déposée E , l'énergie déposée dans la première partie de la chambre ΔE . Cela permet d'obtenir $\Delta E/E$ que l'on sait propre à chaque charge atomique Z [BET30] et donc de résoudre les fragments en Z comme illustré figure 3.8. Cette technique ayant une résolution $Z/\Delta Z \leq 36$ n'est cependant effective que pour les fragments très légers. Aucune distinction n'est visible sur le spectre en ΔE entre les différentes charges atomiques composant les fragments de la masse 105 (figure 3.9)

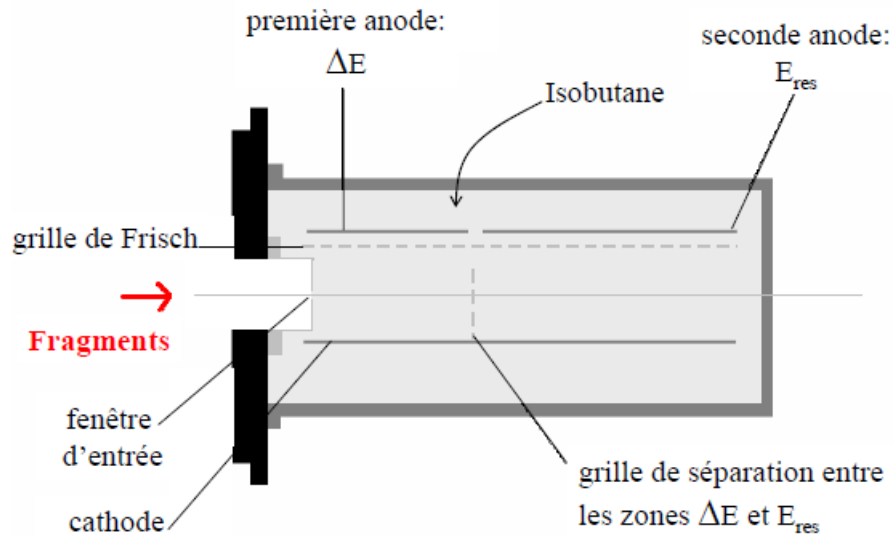


FIGURE 3.7 – Chambre d'ionisation à double anode.[BAI09]

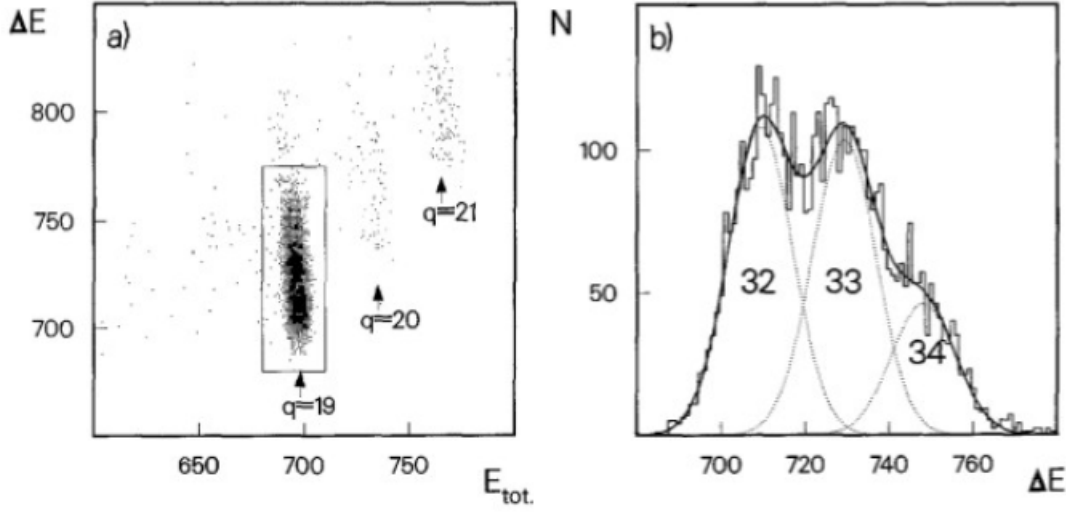


FIGURE 3.8 – Sélection isotopique léger : Mesure de rendements isotopiques du $^{229}Th(n_{th}, f)$ obtenue avec une chambre d'ionisation à deux anodes munie d'une grille de Frisch, combinée avec le spectromètre Lohengrin réglé sur la ligne $A/q = 82/19$ (extrait de [BOC90]). a) Comptage dans le plan $(E_{tot}, \Delta E)$, 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 ($^{82}Ge(Z = 32)$, $^{82}As(Z = 33)$, $^{82}Se(Z = 34)$) sont ajustés avec des distributions gaussiennes[MAR13]

3.3 Détecteurs germaniums

Afin de déterminer la charge de la plupart des produits de fission et d'obtenir ainsi les rendements isotopiques pour $Z > 38$, ce qui correspond à $A > 97$ (milieu du pic léger) pour l' ^{242}Am , une autre technique de mesure est utilisée : la spectrométrie des gamma émis par les fragments lors de leur décroissance beta.

Un second aimant appelé RED Magnet (Reverse Energy Dispersion) permet de dévier les fragments vers une chambre sous vide où circule une bande afin de permettre l'implantation des fragments. Ces derniers produisent par décroissance beta des gamma qui sont mesurés par les détecteurs HPGe (voir figure 3.10). Connaissant l'énergie et l'intensité des raies émises par décroissance beta les rendements de fission peuvent être extraits. Cette méthode a déjà été utilisée afin de mesurer les rendements isotopiques de $^{239}Pu(n_{th}, f)$ [BAI09] et $^{233}U(n_{th}, f)$ [MAR13].

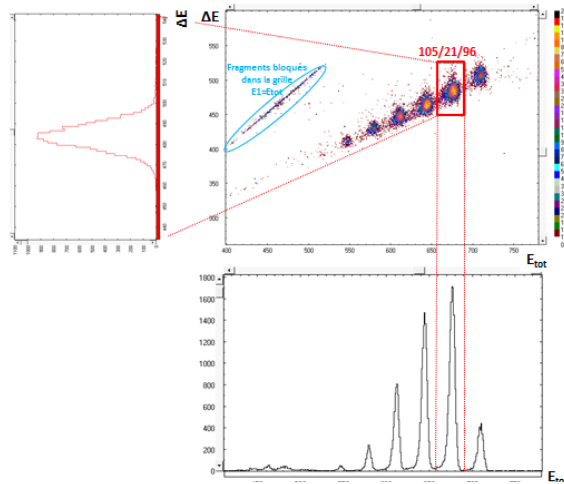


FIGURE 3.9 – Exemple de spectre obtenu (haut à gauche) avec ses projections pour le réglage 105/21/96. ΔE correspond à l'énergie perdue dans la première partie de la chambre et E_{tot} correspond à l'énergie totale perdue dans la chambre. Les énergies sont indiquées en canaux. A titre d'ordre de grandeur 30 canaux=4 MeV

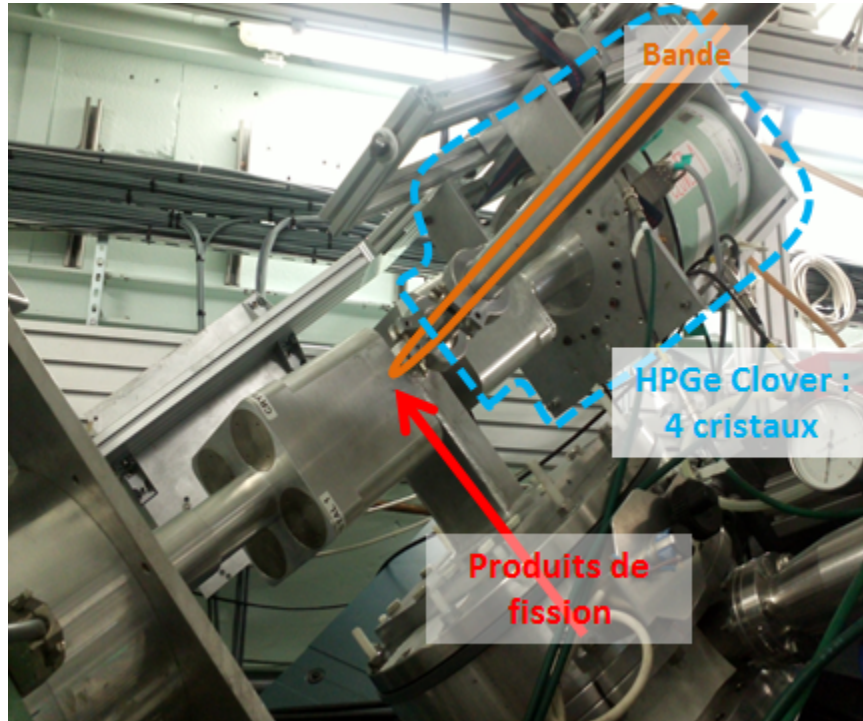


FIGURE 3.10 – Dispositif expérimental de spectrométrie gamma à Lohengrin

Les détecteurs germaniums sont des détecteurs semi-conducteurs. Les photons y réagissent par :

- effet photoélectrique : il y a absorption totale par un électron du cortège. L'énergie de l'électron émis correspond donc à $E_{e-} = E_{\gamma} - E_l$ où E_l est l'énergie de liaison de l'électron. On a $E_l(qqs\ eV) \ll E_{\text{photon}}(10^2 - 10^3\ keV)$ donc $E_{e-} \sim E_{\gamma}$
- diffusion Compton : diffusion élastique d'un photon sur un électron du cortège. L'énergie du photon reste la même dans le centre de masse or l'électron ayant du recul, l'énergie du gamma mesuré est plus faible que celle du gamma initial.
- La production de paires (e^-/e^+) est une réaction à seuil qui résulte de l'interaction du photon avec le champ électrique des atomes.

Un exemple de spectre est présenté figure 3.11. La section efficace du photopic varie beaucoup avec l'énergie du gamma incident. Ainsi l'efficacité du détecteur dépend de l'énergie du gamma détecté (voir figure 3.12).

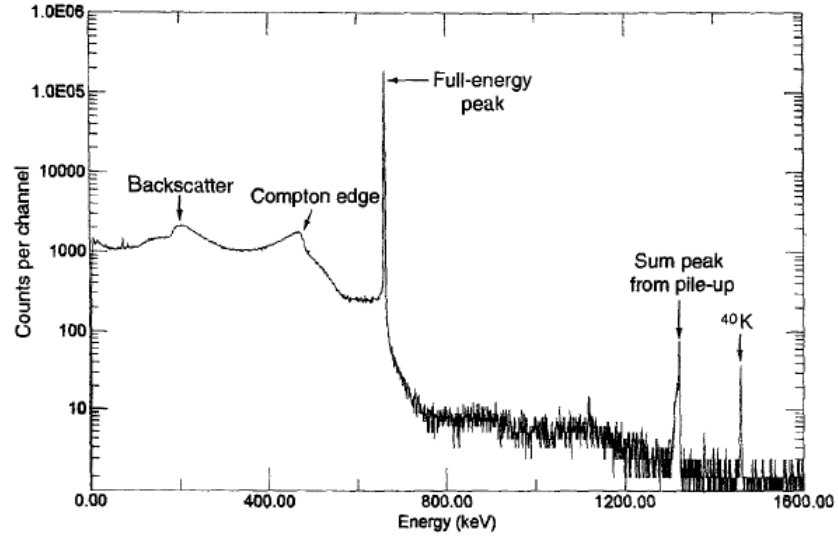
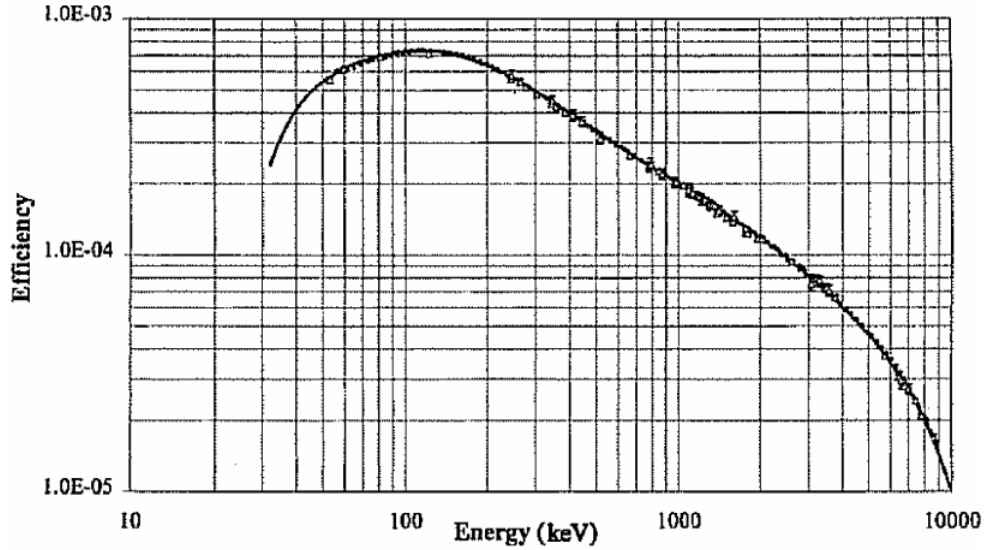
FIGURE 3.11 – Exemple de spectre : spectre de la raie à 662 keV émise par une source de ^{137}Cs [KNO99]

FIGURE 3.12 – Efficacité typique d'un détecteur Germanium [KNO99]

Les deux détecteurs utilisés sur Lohengrin sont des clovers de type euroball produits par Canberra. Chaque clover est composé de quatre cristaux Ge de haute pureté refroidis par le même cryostat. Les cristaux sont de type n, ont un diamètre de 50 mm et une longueur de 80 mm. La distance séparant les clovers du lieu d'implantation des fragments est un compromis entre un taux de comptage ($\propto 1/d^2$) qui diminue avec la distance et un effet somme (c'est à dire la détection simultanée de 2 gammas) qui augmente plus on rapproche les détecteurs du lieu d'implantation. Ainsi il a été choisi d'avoir une distance de 3.5 cm entre le centre du lieu d'implantation et les détecteurs. L'efficacité est donc de 0.5% par clover pour la raie du ^{60}Co à 1332 keV.

3.4 Temps de mesure

Les efficacités des différents instruments vont nous permettre de déterminer le temps de mesure nécessaire à l'obtention d'une erreur statistique non pénalisante : dans notre cas 1%.

La mesure des rendements en masse s'effectue avec la chambre d'ionisation qui a une efficacité de 100% ainsi, compte tenu du taux de comptage de 100 Hz (cf équation 3.2), les mesures doivent avoir des durées de l'ordre de 1-2 min.

La mesure des rendements isotopiques s'effectuent grâce aux détecteurs germaniums qui comptent le nombre de gamma de décroissance émis pendant un temps de mesure T_{mes}

ainsi si on note $\frac{N_{décroissances}}{N_{fragments\ produits}}$ le rapport entre le nombre de décroissances qui ont lieu sur la bande et le nombre de fragments qui s'implante sur la bande alors

$$N_{\gamma\ detectes}(T_{mes}) = \frac{N_{décroissances}}{N_{fragments\ produits}} * \text{taux de comptage} * \text{efficacité du germanium} * I_{\gamma}$$

on a

$$\frac{N_{décroissances}}{N_{fragments\ produits}} \sim T_{mes}$$

si le fragment a une demi-vie $T_{1/2} \ll T_{mes}$;

$\text{efficacité du germanium}(1133keV) \sim 0.01$ ainsi $N(T_{mes}) = 10000 \Rightarrow T_{mes} \sim 4.0 \cdot 10^4 s \sim 11h$ si $I_{\gamma} \sim 0.25$ et

$$T_{mes} \sim 1.6 \cdot 10^4 \sim 4.4h \text{ si } I_{\gamma} \sim 1.00$$

Les temps annoncés doivent être divisés par 2.5 pour une raie à 200 keV. Ainsi afin de conserver des temps de mesure raisonnables et augmenter le nombre de fragments s'implantant sur la bande, la sélection doit être moins fine. Une sélection moindre est obtenue en diminuant la résolution en énergie. Cette dernière est obtenue grâce à des obturateurs verticaux (shutters), on a en effet $\Delta E_{mes} \sim nb_{shutter} * 0.5\%$. Ainsi en augmentant le nombre de shutters ouverts (1 seul est ouvert pour la mesure en masse) on augmente le nombre de fragments détectés. On perd cependant en résolution (cf § 5.2) .

Chapitre 4

Analyse des rendements en masse

Deux types de mesures de rendements ont été réalisés : d'une part, à l'aide d'une chambre à ionisation pour déterminer les rendements de masse, d'autre part par spectrométrie pour accéder aux rendements isotopiques. Ce chapitre détaille l'analyse réalisée lors de l'extraction des rendements en masse.

4.1 Stratégie d'analyse des rendements en masse

4.1.1 Calcul des rendements en masse

La chambre d'ionisation associée au spectromètre Lohengrin nous permet d'extraire le taux de comptage de fragments de masse A , charge ionique q et énergie cinétique E $Y(A, q, E)$ émis par une fission dans la cible. Afin de déterminer les rendements de la masse A (Y_A) il faut intégrer en charge et en énergie $Y(A, q, E)$.

$$Y_A = \sum_q \int_E Y(A, q, E) dE$$

Un exemple de ces distributions est présenté figure 4.1 (extraite de la thèse de A.Bail [BAI09]). La mesure complète de cette double distribution nécessiterait un temps d'acquisition d'un jour ce qui est beaucoup trop long compte tenu de la durée de vie de la cible et du temps de mesure alloué aux expériences (10-15 jours).

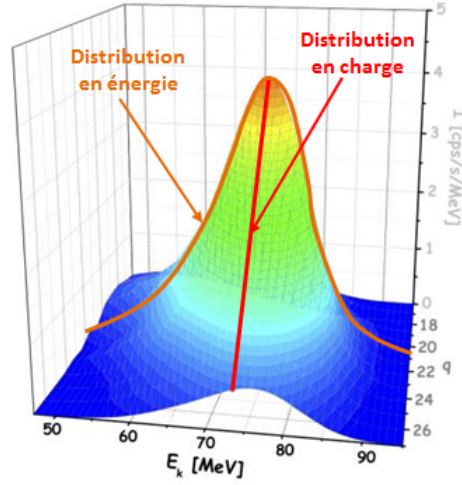


FIGURE 4.1 – Mesure du rendement de la masse 136 pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ en fonction de E et q [BAI09].

En faisant l'hypothèse que la charge et l'énergie ne sont pas corrélées, le rendement d'une masse peut être obtenu à partir de deux distributions seulement : la distribution en énergie pour une charge donnée (appelée Scan-E) et la distribution des charges pour une énergie donnée (appelée Scan-q).

Le rendement de la masse A (Y_A) peut donc s'écrire :

$$Y_A = \frac{\int_E Y(A, q_c, E) dE * \sum_q Y(A, q, E_c)}{Y(A, q_c, E_c)} = A_Q * A_E / N_{Q,E}$$

où A_Q est l'intégrale de la distribution en Q, A_E l'intégrale de la distribution en E et $N_{Q,E}$ le taux de comptage mesuré à la valeur de l'énergie et de la charge communes aux deux distributions.

Le principe de l'obtention du rendement Y_A de la masse A à partir du taux de comptage $N(A)$ des fragments de la masse A détecté par la chambre d'ionisation et présenté figure 4.2. $N(A)$ peut s'écrire comme le produit de Y_A par l'efficacité du système de détection ε et par le taux de fission $N_f(t)$ à l'instant de la mesure. Toutefois $N_f(t)$ n'est pas directement mesurable. Si on considère une masse (dite masse de burn up) A_{BU} dont on a mesuré $N(A_{BU})$ à deux temps t_1 et t_2 alors on peut en déduire, si on connaît ou estime la dépendance de $N(A_{BU})$ avec le temps, $N(A_{BU}, t)$. On détermine ainsi le rapport $N(A, t)/N(A_{BU}, t)$ qui ne dépend ni de ε ni de $N_f(t)$ et on en déduit $Y_A/Y_{A_{BU}}$. Les rendements ainsi obtenus sont toujours des rendements relatifs à la masse A_{BU} .

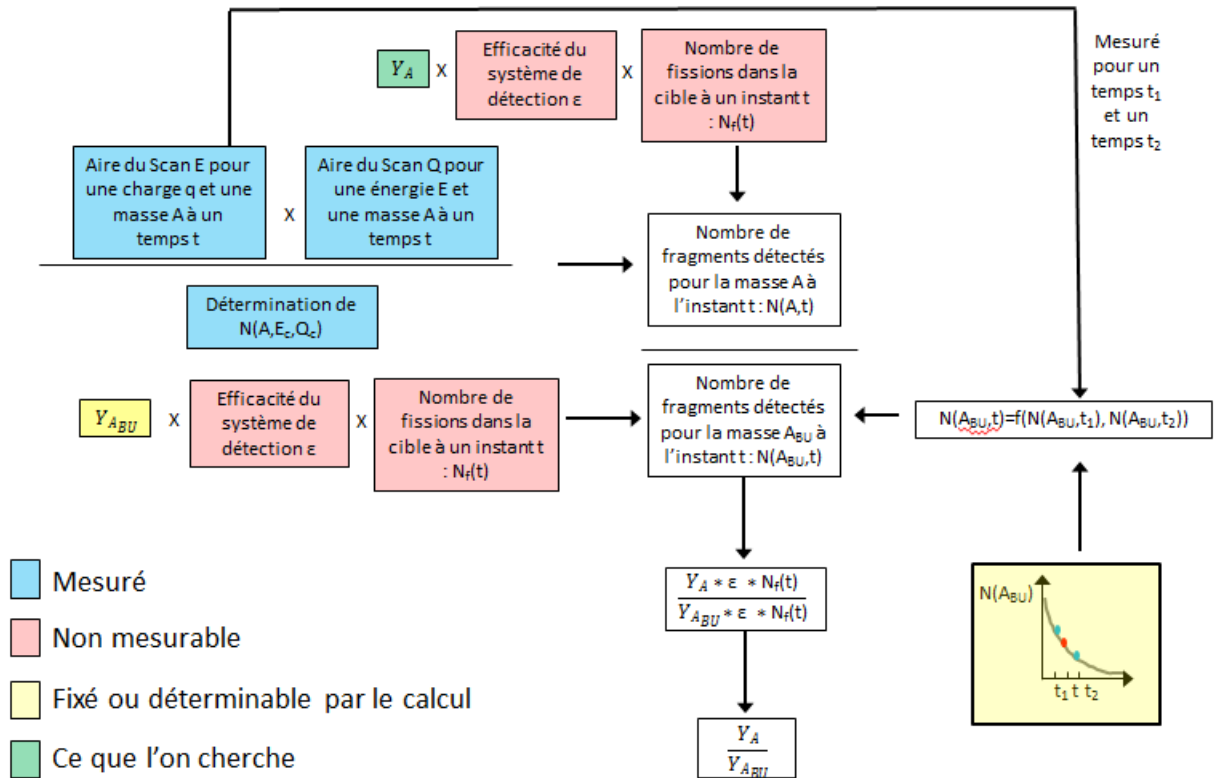


FIGURE 4.2 – Schéma explicatif de la stratégie utilisée pour calculer les rendements en masse

4.1.2 Hypothèse de non corrélation

Dans les références [BAI09] et [GUT91] l'influence sur le rendement de la corrélation entre l'énergie et la charge ionique a été étudiée et estimée à 3%. Dans le cadre de cette thèse, cette influence a été étudiée sur les rendements des masses 140 et 142 : ces deux masses présentent des distributions en charge très différentes de celles des masses (98 et 136) mesurées dans [BAI09]. Les rendements obtenus (voir table 4.1) sont compatibles à 3% pour les masses 140 et 142 comme précédemment mesuré pour les masses 98 et 136 [BAI09]. Ainsi, quelle que soit la forme des distributions de charge l'estimation de l'incertitude de 3% due à la corrélation semble être valide. L'explication de ces différentes formes est présentée plus en détails (§4.4)

	A=140	A=140	A=140	A=142	A=142
	QscanE=23	QscanE=21	QscanE=28	QscanE=22	QscanE=26
$Y_Q(A)/Y(136)$	$0.763 \pm 1.3\%$	$0.725 \pm 1.3\%$	$0.76 \pm 1.3\%$	$0.551 \pm 1.1\%$	$0.576 \pm 1.4\%$
$[Y_Q(A)/Y(A)] - 1$	1.9%	-3.2%	1.5%	-2.3%	+2.1%

TABLE 4.1 – Rendement en masse mesuré pour différentes charges pour les masses 140 et 142. Les erreurs relatives correspondent aux erreurs statistiques. $Y(A)$ est obtenu en moyennant pour chaque masse les rendements $Y_Q(A)$.

Cette corrélation est cependant dépendante de la cible et de la masse en étude comme a pu le montrer l'étude

réalisée dans le cadre de la thèse de F. Martin et présentée figure 4.3. Si on fait l'hypothèse qu'il existe une dépendance linéaire tel que $\langle E \rangle = aq + b$ alors l'influence sur les rendements est de 1%.

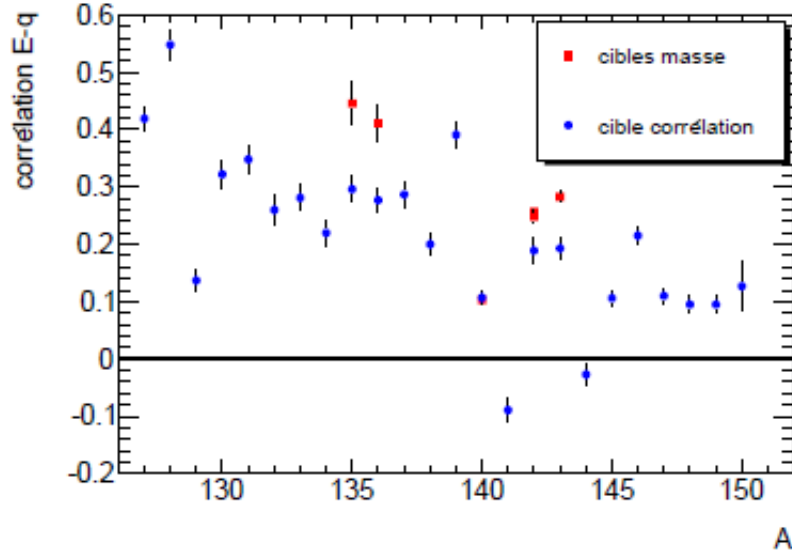


FIGURE 4.3 – Corrélation entre l'énergie et la charge ionique en fonction de la masse du fragment pour 2 cibles différentes d' ^{233}U . Le coefficient présenté correspond au coefficient a si on se place dans l'hypothèse où $\langle E \rangle = aq + b$. Les distributions en énergie ont été mesurées pour 3 charges. [MAR13]

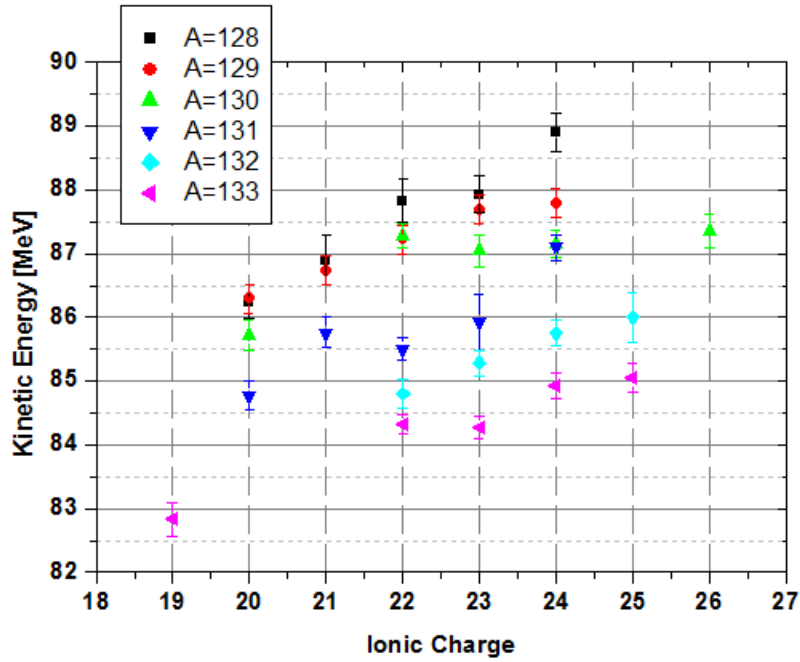


FIGURE 4.4 – Énergie cinétique moyenne en fonction de la charge ionique pour différentes masses [GUT91]

La dépendance linéaire de l'énergie avec la charge a également été observée, pour des charges proches de la charge moyenne, sur une cible d' ^{242}Am lors de l'expérience menée par U. Guttler (figure 4.4). Comme lors de l'expérience citée précédemment la corrélation dépend de la masse du fragment. L'influence de cette corrélation sur les rendements n'est cependant pas précisée.

La dépendance entre la charge et l'énergie provient d'un phénomène atomique : plus l'énergie de l'ion est faible, plus grande est la probabilité pour l'ion de reconstituer son cortège électronique et donc d'avoir une charge ionique faible. Ce processus est décrit par la formule empirique développée par Shima [SHI82].

$$\bar{q}/Z_1 = [1 - \exp(-1.25X + 0.32X^2 - 0.11X^3)][1 - 0.0019(Z_2 - 6)\sqrt{X} + 0.00001(Z_2 - 6)^2 X] \quad (4.1)$$

où

$$X = v/[3.6 \cdot 10^8 (\text{cm/s}) Z_1^{0.45}]$$

v est la vitesse du projectile, Z_1 le numéro atomique du projectile, Z_2 le numéro atomique du dernier milieu traversé (dans notre cas $Z_2=28$ pour le Nickel).

La prise en compte de la dépendance de E avec q via les équations de Shima donne des résultats plus éloignés que ceux obtenus dans l'hypothèse d'une non-corrélation. Si on compare les données obtenues par A.Bail aux prédictions de Shima on observe un effet sur le rendement de 8% pour la masse 136 principalement dû à l'écart qui existe entre les distributions en énergie obtenues avec Shima et celles réellement mesurées pour les charges faibles (figure 4.5).

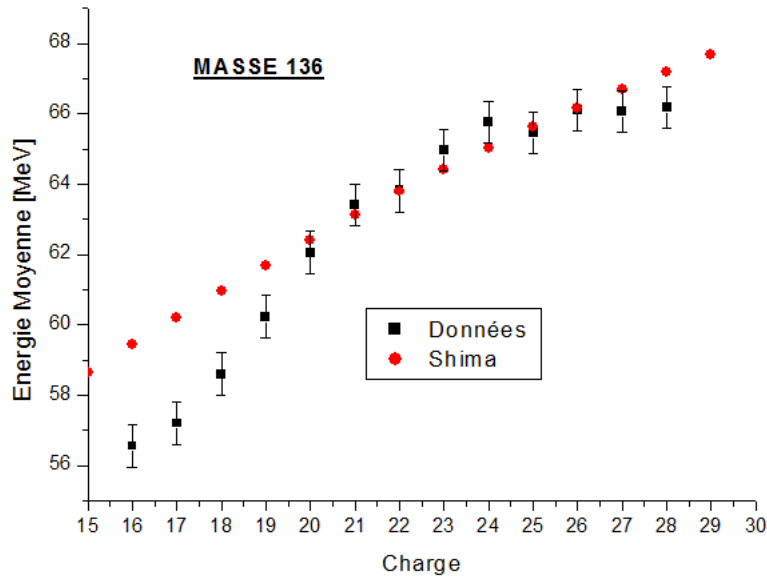


FIGURE 4.5 – Énergies moyennes pour la masse 136 mesurées par A.Bail comparées à celles obtenues en utilisant le spectre en énergie à $Q=22$ et en complétant avec la formule de shima.

4.1.3 Stratégie de la prise de données

Quatorze jours d'expérience ont été alloués à la mesure des rendements en masse de l' $^{241}\text{Am}(2n, f)$. La stratégie retenue est détaillée brièvement dans cette sous section. Le temps de mesure doit se répartir entre le temps consacré

à la mesure des paramètres et à l' « optimisation » du spectromètre, la mesure du nombre de fissions qui ont lieu dans la cible et la mesure des rendements en masse.

4.1.3.1 Les paramètres du spectromètre

Afin de fonctionner dans une situation optimale, une « formation » i.e. des claquages répétés au niveau du condenseur doit être effectuée. Deux « formations » d'une heure ont lieu par jour. La mesure des rendements des masses légères nécessitant des tensions plus élevées au niveau du condenseur, les formations peuvent être plus fréquentes lors de la mesure du pic léger, ce qui peut entraîner un temps de mesure plus élevé du pic léger. L'impossibilité d'accéder à ces tensions lors de la mesure des rendements isotopiques (chapitre 5) a restreint l'étude des rendements au pic lourd. L'alignement des différents éléments du spectromètre avec la cible est réalisé grâce à la mesure d'une grandeur, le χ , ce dernier se définit comme

$$\chi = \rho_E / \rho_B$$

avec d'après l'équation 3.3

$$A/q = B^2 / \varepsilon \chi$$

où ε correspond à la tension entre les plaques du condensateur et B le champ magnétique au niveau de l'aimant.

Un exemple de χ -scan (distribution en champ magnétique pour un réglage A/q/E) est représenté figure 4.6, l'ajustement optimal correspond à l'intensité maximale i.e. on mesure l'ensemble de la masse. Le rectangle rouge correspond à un réglage du champ magnétique qui laisse passer toute la masse alors que le rectangle vert correspond à un mauvais réglage où seule une partie de la masse pénètre dans la chambre d'ionisation.

Bien que souvent ajusté au moyen d'une gaussienne, ce dernier présente un plateau traduisant la largeur de la cible comme indiqué figure ??, des légers écarts de χ moyen (lorsqu'ils restent sur le plateau) n'ont donc que très peu d'influence. Les χ moyens obtenus lors de la première expérience sont représentés par des sphères violettes sur l'axe des abscisses : 75% des mesures sont comprises entre 1629.48 et 1629.6 Gauss et la dispersion est très faible. On peut donc en conclure que l'acceptance du spectromètre n'a pas évolué en fonction du temps.

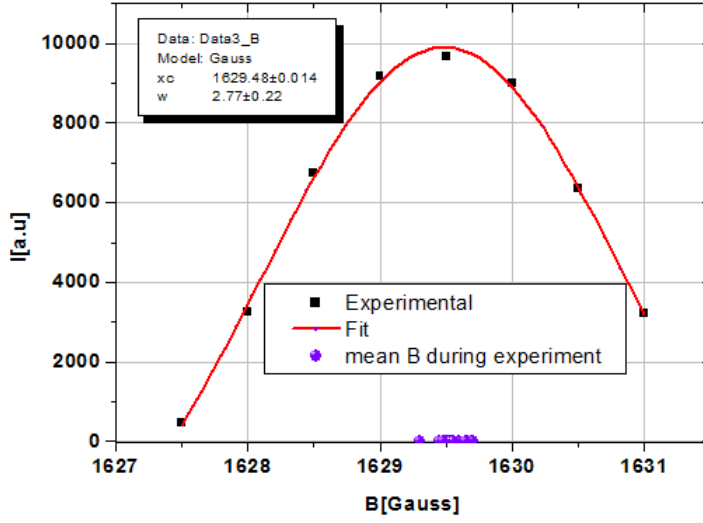


FIGURE 4.6 – Exemple de Chi-Scan : nombre de coups en fonction du champ magnétique. Les valeurs en violet représentent les valeurs moyennes de champ magnétique obtenu

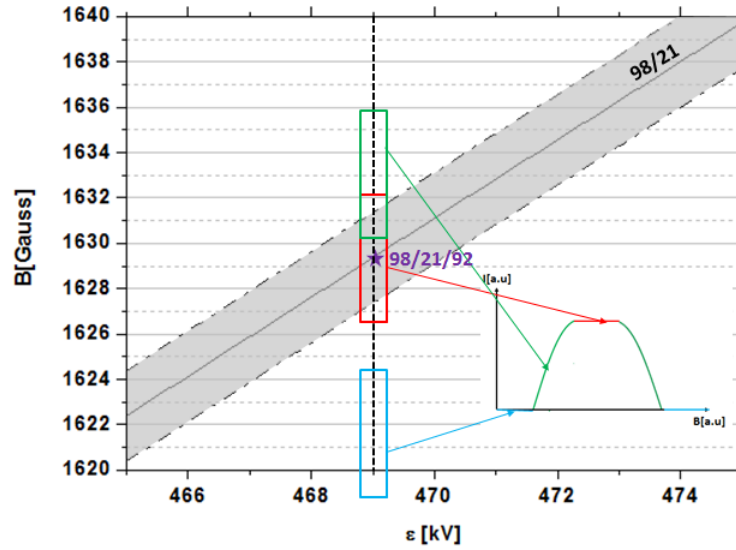


FIGURE 4.7 – La partie grisée correspond aux combinaisons (ε, B) permettant le passage des fragments 98/21/92 d'après les équations 3.4 et 3.3 .

4.1.3.2 La mesure du burn up

Le nombre de fissions à un instant t donné $N_f(t)$ est interpolé de manière linéaire entre la mesure de burn up, obtenue via la mesure de $N(A_{BU}, t)$, le précédent $N_f(t_1, t_1 < t)$ et celle de celui le suivant $N_f(t_2, t_2 > t)$ comme indiqué figure 4.2. Plus l'intervalle séparant les mesures est faible plus l'interpolation est fiable. Toutefois le temps consacré à cette mesure (1h30) est du temps non consacré à la mesure des rendements en masse. Compte tenu de la variation attendue du nombre de fissions, les mesures du burn-up ont été réalisées toutes les 8h.

4.1.3.3 La mesure répétitive de 3 masses

Cette expérience avait non seulement pour but de déterminer les rendements en masse de $^{241}\text{Am}(2n, f)$ mais également la recherche d'une différence entre les rendements en masse pour la fission de $^{242\text{gs}}\text{Am}$ et $^{242\text{m}}\text{Am}$. Ainsi six jours ont été dédiés à cette recherche. La procédure utilisée est détaillée chapitre 7. Elle nécessite par exemple que les mesures de rendement soient faites en fin d'un cycle et au début du cycle suivant. Ainsi les graphiques suivants (comme figure 4.13) dans ce chapitre présentent une coupure entre le 8 ème et 22 ème jour correspondant à l'arrêt du réacteur.

4.1.3.4 Les masses mesurées

Le nombre de rendements en masse déjà mesuré de ^{242}Am est limité aussi bien sur le pic lourd que sur le pic léger. Il a donc été choisi de mesurer des rendements en masse sur les deux pics. Si certaines expériences ont cherché à mesurer un nombre de masses nécessaire à l'auto-normalisation, cette démarche ne peut être entreprise pour un temps de mesure raisonnable dans le cadre de l'américium. Il a été choisi de mesurer toutes les masses qui ont un rendement supérieur à 1% soit 40 masses.

4.1.3.5 La mesure des particules α

La décroissance de ^{242}Am entraîne la création du ^{242}Cm très grand émetteur de particules alpha. Ainsi il a été proposé de mesurer la quantité d'alpha émise afin d'accéder directement à la quantité de matière présente dans la cible et de déterminer de manière directe le nombre de fission. Le taux de comptage (5-6kHz) n'a pas pu être supporté par la chambre d'ionisation et les mesures n'ont pas été concluantes. Plus de détails sont disponibles en annexe A.

4.1.3.6 Les problèmes rencontrés

Durant cette expérience, un défaut sur une pompe à vide est survenu entraînant un problème de vide au niveau de H9. L'augmentation d'un facteur 10-100 au niveau de la pression a entraîné une chute de 7% du taux de comptage entre le 24 et 25 ème jour. Les points pris durant ces 30h ont été ignorés.

4.1.3.7 Synthèse

Le temps de mesure s'est donc réparti comme indiqué table 4.2.

4.2 Étude du flux de neutrons

Comme énoncé dans la partie 4.1, afin d'extraire un rendement du nombre de noyaux détectés il est nécessaire de connaître le nombre de fissions au niveau de la cible à un instant donné. Cette quantité est directement reliée à ϕN (cf équation 3.1) où ϕ est le flux de neutrons et N le nombre de noyaux de la cible. Les mesures de burn up ont lieu toutes les 8 heures, les fluctuations brutales (<8h) ne sont donc pas détectables; or chaque point $Y(a, q, E)$ est mesuré en 2 minutes et $Y(A)$ en environ 2h. Nous avons donc essayé de déterminer indirectement une éventuelle erreur systématique due à des variations brutales de ϕN , cette quantité étant inaccessible dans l'installation actuelle. Chaque variable a été étudiée séparément. La quantité N aurait due être extraite de la quantité de particules α de 5.49 MeV et 5.44 MeV émises par ^{241}Am et de 6.11 MeV et 6.07 MeV émises par le ^{242}Cm (issu de la décroissance de

Type de mesure	Durée moyenne d'une mesure (h)	Nombre de mesure	Temps alloué [%]
α	2(30 minutes de mesure et 1h30 de réglage et attente pour la qualité du gaz)	10	6
Burn-up	1.5	26	11.6
Masses récurrentes	2	36	21.4
Rendements en masse	2	40	23.8
Spectromètre	1.5 (Formation 1h et 30 minutes mesure alignement faisceau)	28	12.5
Problème vide	30	1	8.9
Autre			15.8

TABLE 4.2 – Répartition du temps de mesure lors de l'expérience sur les rendements en masse

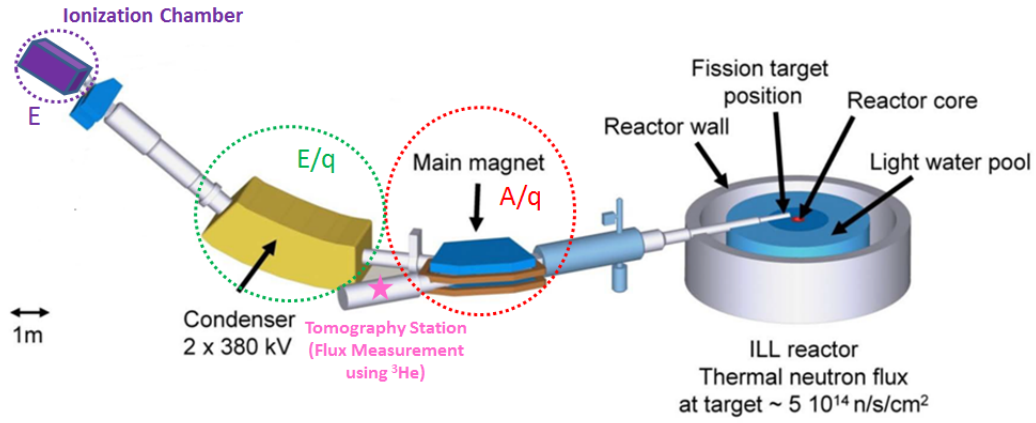
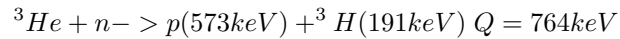


FIGURE 4.8 – Lohengrin et casemate associée

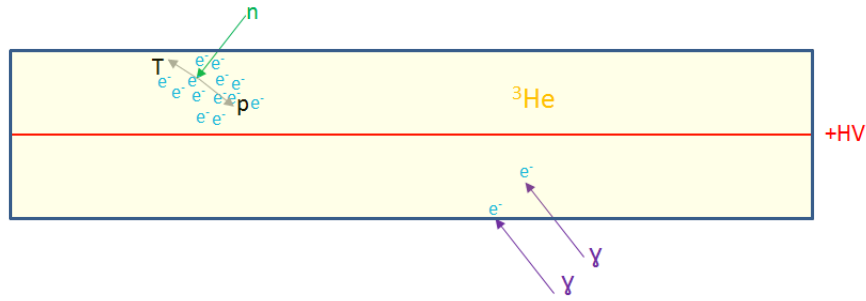
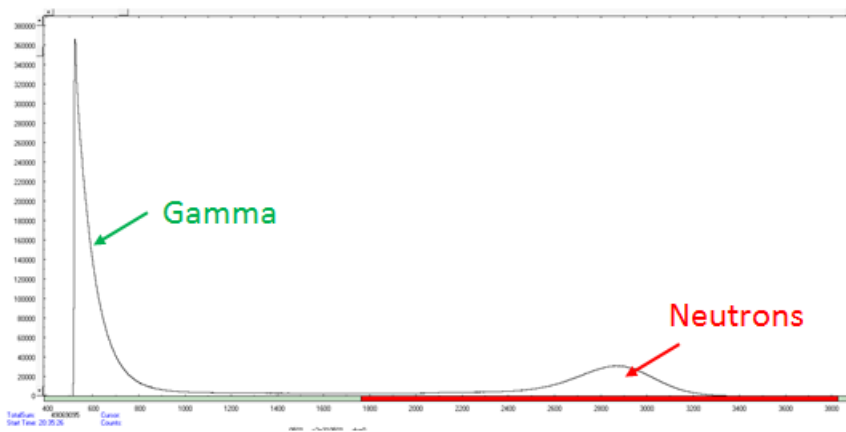
^{242}Am) à un instant t . Cette mesure détaillée annexe A a été réalisée dans le cadre de cette thèse, cependant elle n'a pas donné de résultats concluants pour les deux raisons principales suivantes. Cette mesure prend en moyenne 30 minutes ce qui ne permet pas de mesure instantanée de N . De plus le taux de comptage ($> \text{kHz}$) n'est pas supporté par la chambre d'ionisation (dégradation de la qualité du gaz, pile-up non quantifiable). La quantité ϕ a quant à elle pu être mesurée relativement. Cette partie illustre le dispositif expérimental ainsi que les résultats obtenus.

Comme illustré sur la figure 4.8 le canal H9 n'aboutit pas seulement sur Lohengrin mais également sur une station de tomographie neutron. Cette station inoccupée durant la mesure des rendements de fission en masse a pu accueillir des détecteurs ^3He [MAT12] qui ont permis de mesurer le flux de neutrons.

Lorsqu'un noyau d' ^3He capture un neutron thermique il se désexcite en émettant un proton de 573 keV et un triton de 191 keV qui sont détectés par le dispositif de mesure représenté figure 4.9.



Les détecteurs ^3He ne peuvent mesurer directement le flux en entrée de la casemate, le taux de comptage serait

FIGURE 4.9 – Fonctionnement d'un détecteur à ^3He [BED12]FIGURE 4.10 – Spectre typique obtenu avec un détecteur à ^3He

bien trop élevé. Le spectre en énergie du flux étant thermique à plus de 95%, il a été réalisé un blindage d'une dizaine de cm de B_4C autour du détecteur afin de supprimer la composante thermique du spectre. La valeur relative du flux mesuré correspondant à la composante rapide, elle sera proportionnelle au flux réel si le spectre en énergie du flux ne varie pas au cours du cycle, hypothèse qui a été faite. Le taux de comptage a été d'environ 200 Hz. Les détecteurs ^3He sont connus pour leur discrimination gamma-neutron élevée grâce au Q de la réaction élevé (764 keV) de la réaction. De plus, la section efficace des ^3He est élevée. La figure 4.10 présente un spectre obtenu avec un ^3He . La limite en énergie choisie comme limite discriminante entre gamma et neutron est présentée sur la figure. Cette limite a été gardée pour les deux parties de l'expérience. Deux détecteurs ^3He ont été utilisés par précaution.

Comme on peut le remarquer sur la figure 4.11, un des deux détecteurs ^3He utilisés a présenté certaines anomalies au cours de la première partie de l'expérience : il présentait des pics de comptage brutaux qui n'apparaissaient pas sur l'autre détecteur. Les résultats trouvés par ce détecteur n'ont donc pas été considérés. Ce détecteur n'a cependant pas présenté d'anomalie lors de la seconde partie de l'expérience.

Afin de déterminer une éventuelle incertitude systématique imputable à des variations du flux deux critères doivent être vérifiés : au cours du scan de la même masse le flux ne varie pas plus que son erreur statistique et la variation entre les mesures de burn-up n'est pas très importante. Le flux mesuré a été moyenné sur 120 minutes qui correspondent au temps moyen de mesure d'une masse. La figure 4.12 établit que l'écart type entre les valeurs du

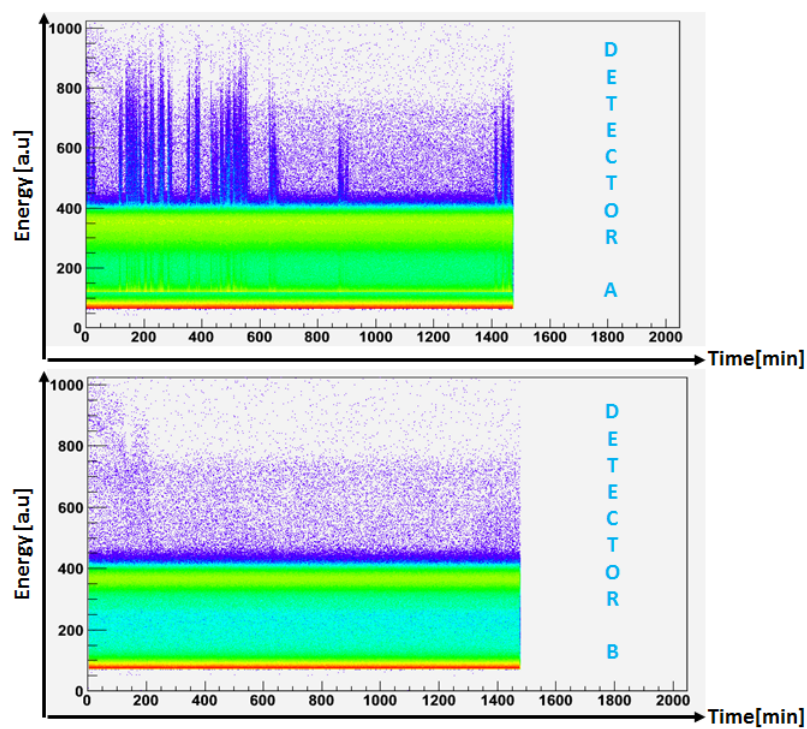


FIGURE 4.11 – Copie d'écran du taux de comptage des neutrons au cours de l'expérience en fonction du temps et de leur énergie pour les deux détecteurs ^3He utilisés. Le 0 en temps est arbitraire

flux sur 120 minutes et l'erreur statistique sont similaires et de l'ordre de 1%. De plus aucune variation de plus de 3% d'une minute à l'autre de l'expérience n'a pu être observée comme dans le passé lors de manipulations dans un canal voisin (V4).

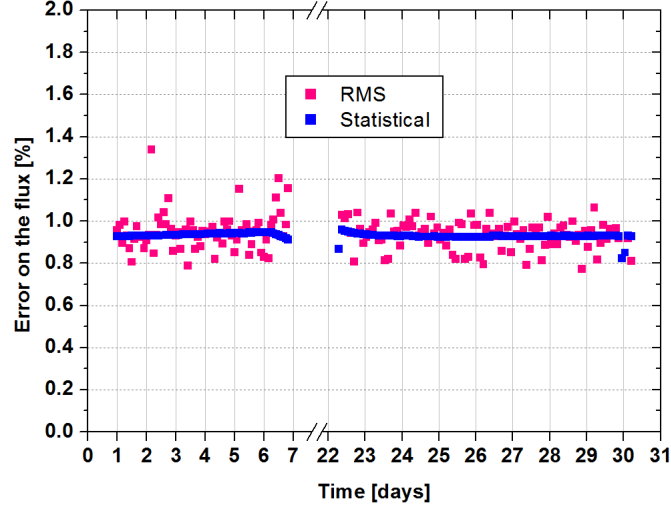


FIGURE 4.12 – Erreur sur le flux en pourcentage. Comparaison entre la RMS sur 120 mesures consécutives et l'erreur statistique du nombre de coups moyenné sur 120 minutes

Considérons à présent l'évolution du flux en fonction du temps. Cette évolution est également suivie au niveau du contrôle du réacteur par 2 chambres à fission [ILL12] : PIL 1 et PIL 2 situées dans la piscine du réacteur.

Les seuils des préamplificateurs des détecteurs ^3He ayant été modifiés durant l'arrêt du réacteur chaque partie de l'expérience doit être considérée indépendamment. Afin de déterminer le comportement du flux de neutrons dans H9, la normalisation a été choisie à la moyenne entre PIL1 et PIL2 à la première mesure pour la première partie de l'expérience (bleu turquoise) et au plateau entre le 24^{ème} et le 26^{ème} jour pour la deuxième partie de l'expérience (rose fuchsia). Les flux mesurés sont représentés sur la figure 4.13.

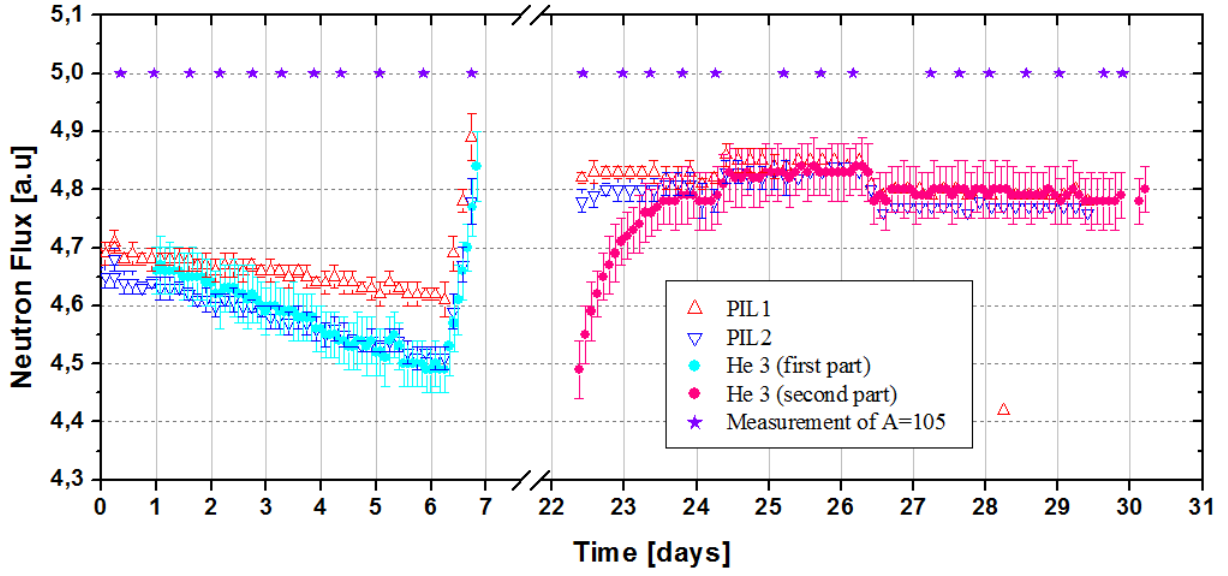


FIGURE 4.13 – Flux neutronique au cours du temps mesuré durant l’expérience par PIL1, PIL2 et les détecteurs ^3He . Les mesures de burn up sont également reportées sur la figure

Le flux de neutrons mesuré dans H9 par les ^3He présente un comportement similaire à celui de PIL2 (plus proche de H9). Les suivis de puissance sont bons comme illustré par la fin de la 1^{ère} partie et les fluctuations brutales à partir du 24^{ème} jour. La grande différence ($\sim 6.5\%$) de comportement observée se situe au début de la deuxième partie de l’expérience qui correspond à un début de cycle (démarrage du réacteur). En début de cycle les chambres à fission PIL1 et PIL2 sont reculées afin de mesurer un flux constant donc ne représentent pas le flux à un endroit fixe [ILL12]. Comme indiqué figure 4.13 (étoiles), les mesures du burn up étaient assez rapprochées pour ne pas introduire une incertitude supplémentaire due à des variations de flux.

La mesure absolue du flux n’ayant pu être réalisée, des simulations MCNP ont été réalisées par le service Simulations and Innovative Projects Service (ILL) afin de déterminer le flux au niveau de la cible. Le spectre de ce flux est présenté figure 4.14. L’intégrale est de $\Phi_{tot} = 7,28.10^{14} n.cm^{-2}.s^{-1}$ avec un flux thermique de $\Phi_{th} = 7,0.10^{14} n.cm^{-2}.s^{-1}$.

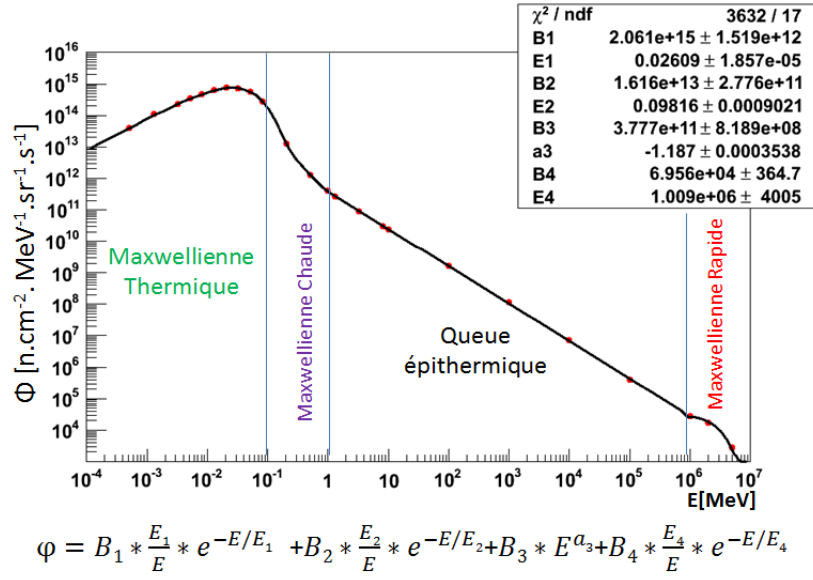
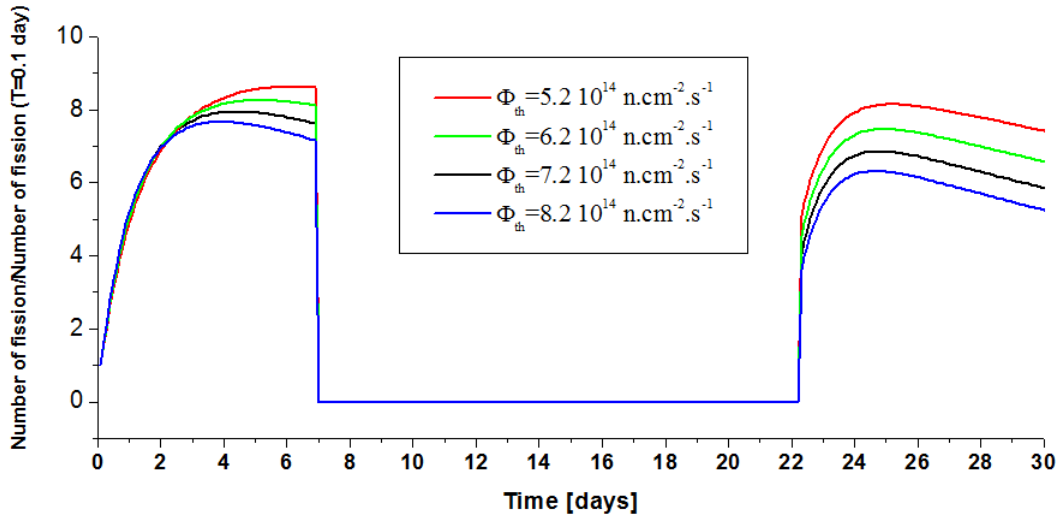


FIGURE 4.14 – Flux neutronique simulé au niveau de la cible dans le canal H9

Un ordre de grandeur du flux peut également être obtenu par la forme du taux de fission dans la cible si le sputtering est faible comme cela a été le cas durant la première partie de notre expérience (cf §4.5). En effet l'évolution de ce dernier avec le temps diffère significativement en fonction du flux considéré comme illustré figure 4.15 .

FIGURE 4.15 – Nombre de fissions en fonction du temps normalisé au nombre de fissions à $t=0.1$ jour. Les courbes ont été obtenues en résolvant les équations d'évolution

4.3 Distribution en énergie cinétique

4.3.1 GEF

La distribution en énergie cinétique mesurée est le produit de convolution entre la distribution en énergie après évaporation de neutrons et celle due à la traversée de matière (cible). Étudions ces deux distributions séparément. Les calculs théoriques ont été réalisés avec GEF (octobre 2012).

La distribution en énergie obtenue montre une forme proche d'une gaussienne cependant la forme n'est pas symétrique (skewness=-0.32) ce qui est en accord avec les données [BAB97]. Comme illustré par la figure 4.16 cette non-symétrie semble due à l'évaporation des neutrons et non pas à la présence de différentes charges .

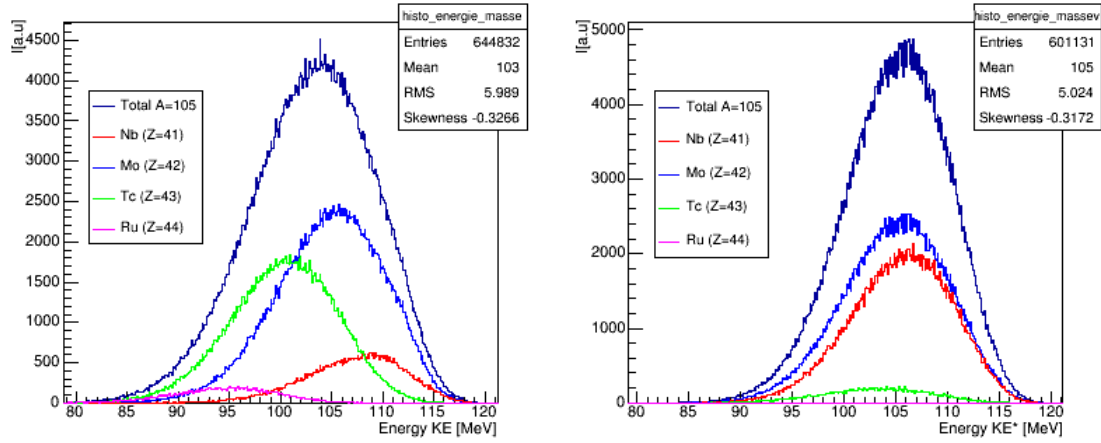


FIGURE 4.16 – Distributions en énergie de la masse 105 avant (droite) et après (évaporation) évaporation. Calculs réalisés avec GEF (octobre 2012)

En considérant que la masse 105 possède la distribution en énergie obtenue avec GEF avant la traversée de la cible, sa distribution en énergie cinétique après traversée est moins large mais présente une forme très similaire comme indiqué par les moyennes, les écarts types et la skewness présentés table 4.3.

	Avant évaporation	Après évaporation	Après traversée de la cible
Moyenne	105.00±0.01	103.08±0.01	93.37±0.28
Écart type	5.02±0.004	5.99±0.005	5.38±0.20
Skewness	-0.320	-0.33	-0.253

TABLE 4.3 – Principales caractéristiques (calculées avec GEF octobre 2012) des distributions en énergie pour A=105

4.3.2 Expériences précédentes

Les distributions en énergies des fragments issus de la fission de l' ^{242m}Am ont été mesurées par U. Güttler sur des cibles très fines (^{241}Am : $80\ \mu\text{g.cm}^{-2}$; Ni : $0.25\ \mu\text{m}$). La figure 4.17 présente la distribution obtenue pour la masse 105 par GEF et celle mesurée par U. Güttler corrigée des pertes d'énergie dans la cible et dans la feuille de nickel. Les prédictions faites par GEF sont en accord avec l'expérience. Cependant une queue à basse énergie est clairement visible sur les mesures. On peut par ailleurs remarquer que la largeur à mi-hauteur, qui est souvent sous

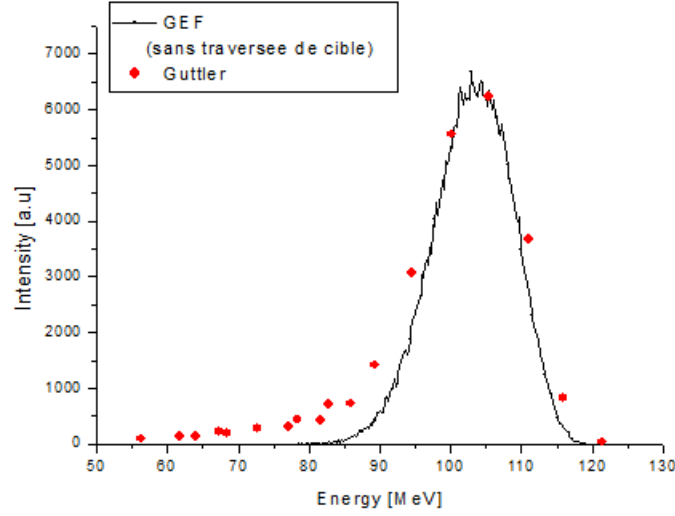


FIGURE 4.17 – Distribution en énergie cinétique calculée par GEF (ligne) et mesurée par U. Guttler[GUT91] pour $A=105$

estimée dans GEF, semble être en accord avec les données expérimentales de U. Güttler bien que de légers écarts puissent être observés au niveau de la symétrie (cf figure 4.18).

4.3.3 Fonction d'ajustement et aire de la distribution en énergie cinétique

La figure 4.19 illustre les distributions en énergie non corrigées de la perte d'énergie dans la cible et la feuille de nickel de la masse 105 mesurées dans le cadre de cette thèse en fonction de la date de la mesure. Cette distribution s'éloigne très fortement d'une gaussienne et la largeur à mi-hauteur est bien plus importante que celle mesurée par U. Güttler. De plus l'énergie moyenne et la largeur à mi-hauteur ont fortement varié (cf §4.5).

Afin de quantifier ces premières observations, les distributions en énergie doivent être ajustées. Toutefois aucune fonction paramétrée n'a actuellement été capable de reproduire l'ensemble des mesures réalisées à Lohengrin [BAI09, MAR13]. Un exemple d'ajustement par différentes fonctions est présenté figure 4.20.

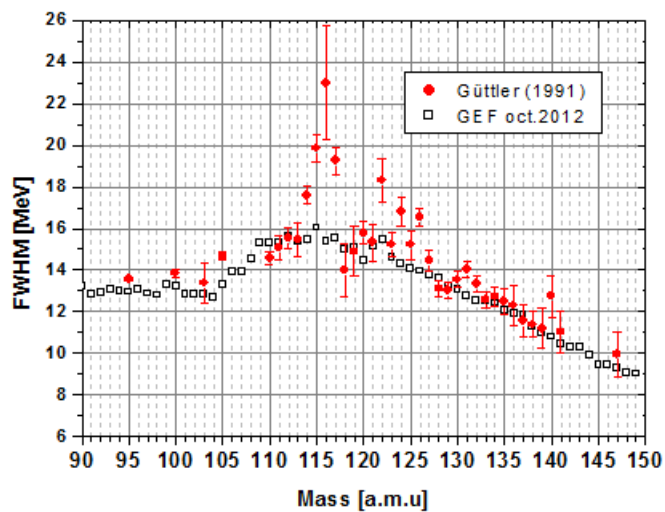


FIGURE 4.18 – Largeur à mi-hauteur des distributions en énergie calculées par GEF (carrés noirs) et mesurées par U.Güttler (points rouges) [GÜT91]

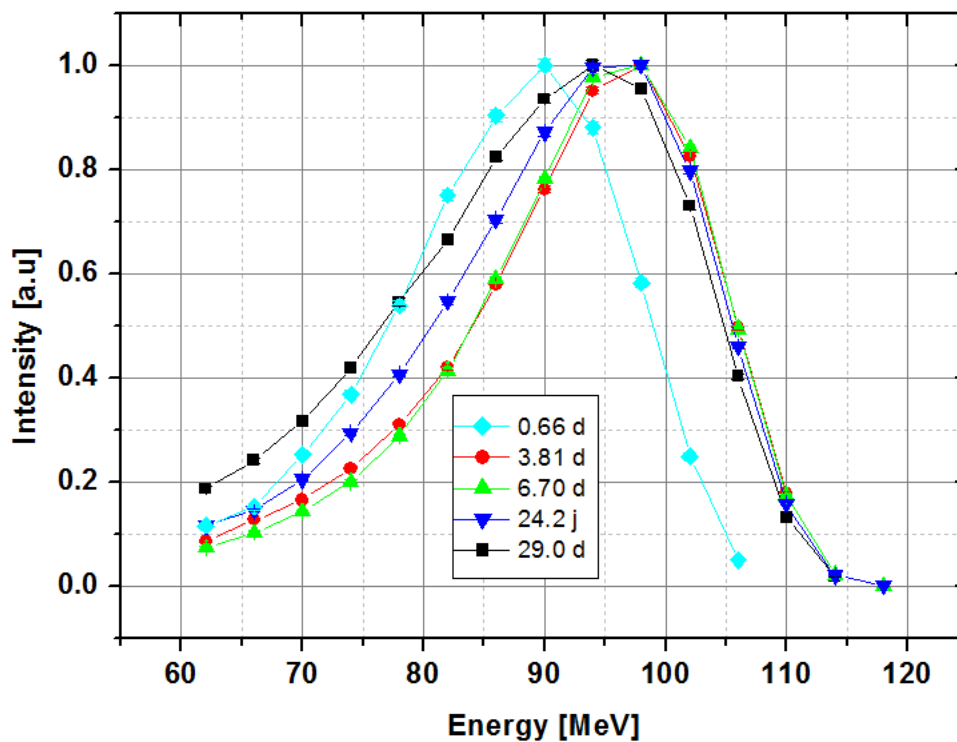


FIGURE 4.19 – Évolution des distributions en énergie pour $A=105$ en fonction de la date de mesure. $T=0s$ correspond à la mise en pile.

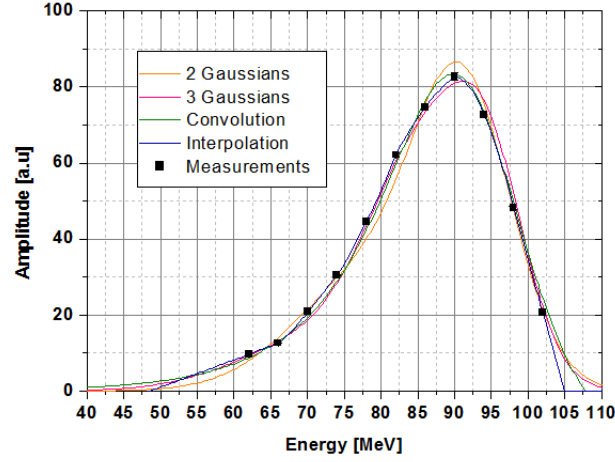


FIGURE 4.20 – Distribution en énergie pour A=105 et t=0.66 j. Les mesures et les différentes fonctions d'ajustement sont représentées

Les deux seules fonctions qui peuvent avoir un sens physique sont : une gaussienne et la fonction convolution. Cette dernière consiste à convoluer une fonction porte (représentant la cible) à queue exponentielle avec une gaussienne. Il est à noter qu' aucune de ces fonctions ne peut être appliquée avec des résultats concluants pour toutes les distributions en énergie. Les aires ainsi que les χ^2 obtenus nous conduisent également à remarquer que deux fonctions peuvent avoir le même χ^2 mais présenter des aires non compatibles avec l'interpolation linéaire qui est la première approximation mathématique de la distribution (voir figure 4.21) .

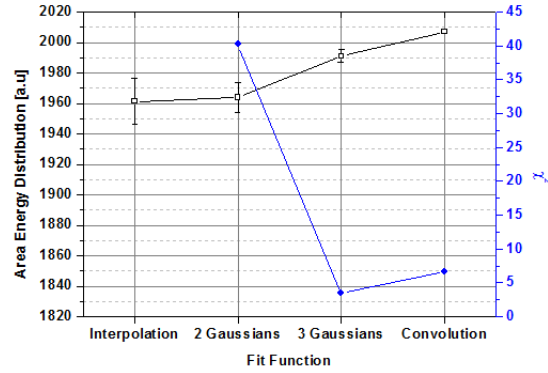


FIGURE 4.21 – Aire de la distribution en énergie de la masse 105 pour t=0.66 jour selon la fonction utilisée pour ajuster les mesures. Les χ^2 sont également reportés sur l'axe de droite

Compte tenu de ces deux dernières remarques et dans un souci d'homogénéité de traitement des distributions, aucune de ces fonctions n'a donc été retenue pour ajuster les distributions. L'ajustement retenu est composé d'une interpolation quadratique et d'une extrapolation linéaire aux deux extrémités de la distribution comme illustré sur la figure 4.22.

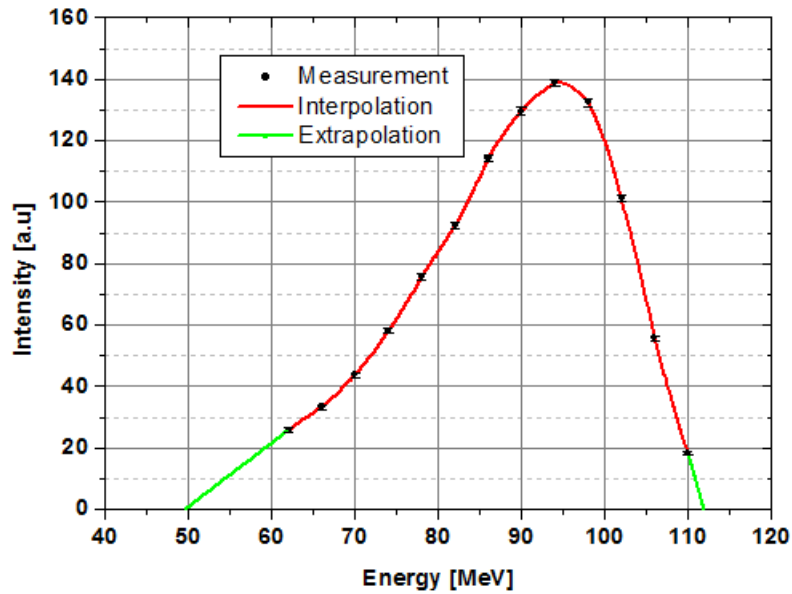
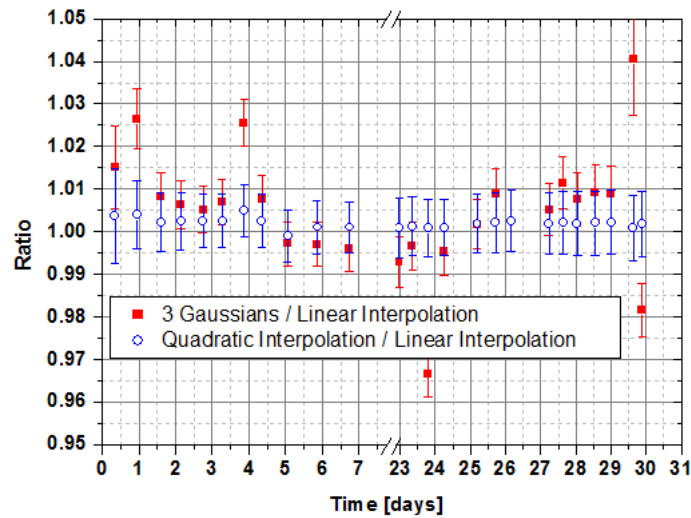
FIGURE 4.22 – Figure illustrant les zones d’interpolation et d’extrapolation pour une distribution en énergie ($A=105$)

FIGURE 4.23 – Rapport entre l’aire trouvée pour 2 différentes fonctions d’ajustement (3 gaussiennes et interpolation quadratique) et l’interpolation linéaire

Afin d’étudier l’impact d’un tel ajustement, une comparaison a été réalisée pour toutes les distributions en énergie entre l’aire obtenue avec un ajustement par trois Gaussiennes (qui présente en général les χ^2 réduits les plus faibles), l’interpolation linéaire et l’interpolation quadratique avec extrapolation linéaire. Comme illustré figure 4.23, l’écart est de 1% en moyenne sans tendance claire entre l’aire trouvée par l’ajustement de 3 gaussiennes et celle trouvée par l’interpolation linéaire. Cet écart est de manière systématique de 0.2 % entre la simple interpolation

linéaire et l'extrapolation linéaire avec interpolation quadratique. L'impact de la fonction d'ajustement est donc très faible sur l'aire de la distribution.

Un des problèmes majeurs de la détermination de l'aire de nos distributions en énergie reste l'extrapolation. La contribution relative des parties extrapolées a été étudiée en fonction du temps. Afin de ne pas être dépendant du dernier point de mesure et puisque le domaine en énergie mesuré est souvent le même, la limite supérieure en énergie de l'aire à basse énergie a été définie à 58 MeV et la limite inférieure en énergie de l'aire à haute énergie a été définie à 110 MeV. Ces limites sont celles des mesures dans la majorité des cas. Cette contribution comme on peut le voir varie de quelques pourcents au cours du temps (cf figure 4.24). Ces deux contributions (à basse et haute énergie) ne peuvent être constantes puisqu'elles sont fonction de l'énergie moyenne et de la largeur des distributions. Ces dernières fluctuent donc il n'y a rien d'incohérent à observer la contribution de chaque partie extrapolée fluctuer avec le temps. Cependant une certaine continuité devrait être observée. L'incertitude systématique sur l'aire de la distribution en E a été prise comme l'écart maximal entre les contributions relatives des parties extrapolées à l'aire totale donc 1.5% pour la partie à basse énergie et 1% pour la partie à haute énergie.

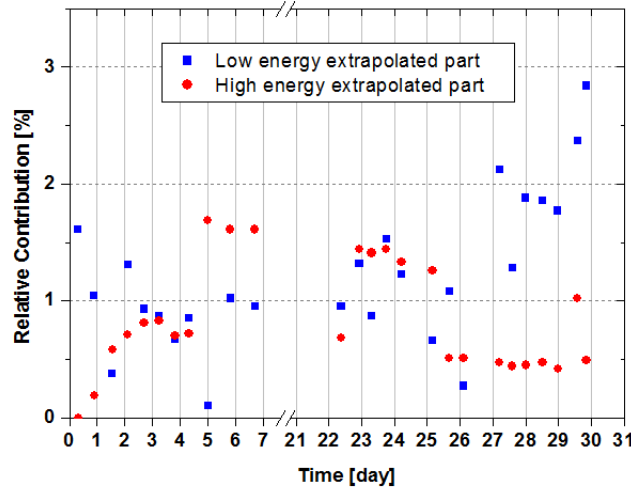


FIGURE 4.24 – Contribution des parties extrapolées à l'aire du Scan en énergie pour la masse 105 en fonction du temps

4.3.4 Quelles grandeurs pour décrire la distribution en énergie cinétique ?

Différentes grandeurs existent pour décrire la forme des distributions : l'énergie moyenne, l'énergie la plus probable (notée ici E_{max}), la largeur à mi-hauteur et l'écart-type. En regardant attentivement l'évolution de l'énergie moyenne et de la RMS de la distribution en énergie de la masse 105 en fonction du temps représentées sur les figures 4.25 et 4.26 on peut constater que la quantité la plus à même de décrire la largeur est la largeur à mi-hauteur et non l'écart type comme c'est souvent le cas. En effet ce dernier présente un caractère non continu ce qui n'est pas le cas de la largeur à mi-hauteur.

Dans le cas d'une distribution en énergie gaussienne, l'énergie la plus probable et l'énergie moyenne sont confondues or lors de notre expérience l'écart entre les deux a varié entre 3.5 et 6.0 MeV. Il est cependant à noter que les deux sont continues. La détermination de l'énergie moyenne est très sensible à la partie extrapolée. A titre

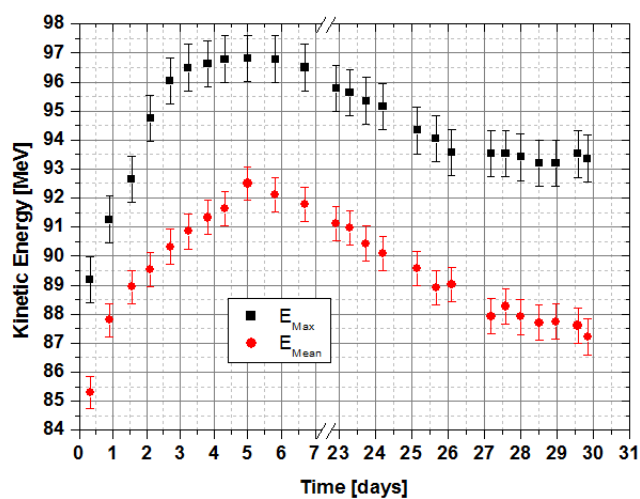


FIGURE 4.25 – Énergie moyenne et énergie la plus probable de la distribution en énergie cinétique pour $A=105$ en fonction du temps

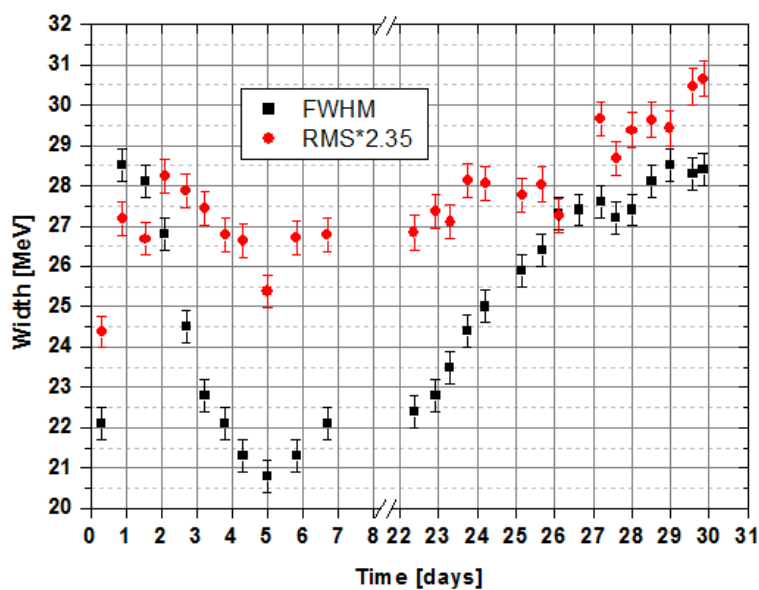


FIGURE 4.26 – Écart-type et largeur à mi-hauteur de la distribution en énergie cinétique pour $A=105$ en fonction du temps

d'illustration on peut s'intéresser à une distribution en énergie centrée sur 90 MeV et dont la partie extrapolée est centrée en 52 MeV. Lorsque la partie extrapolée a une aire relative de 0% l'énergie moyenne est de 90 MeV, alors que lorsque cette contribution est de 3% l'énergie moyenne est de 88.9 MeV. La différence d'énergie moyenne est de 1.1 MeV, soit 2 fois l'incertitude que nous avons actuellement sur l'énergie. J'ai donc choisi de prendre comme grandeur caractéristique pour décrire l'énergie, l'énergie la plus probable. On s'affranchit ainsi de la très grande asymétrie de la distribution et de la méconnaissance de l'extrapolation.

Cependant la valeur algébrique du maximum n'est pas représentative de la zone du maximum où très peu de points de mesure existent et est très dépendante de l'interpolation utilisée. Un exemple de distribution en énergie est donné figure 4.27.

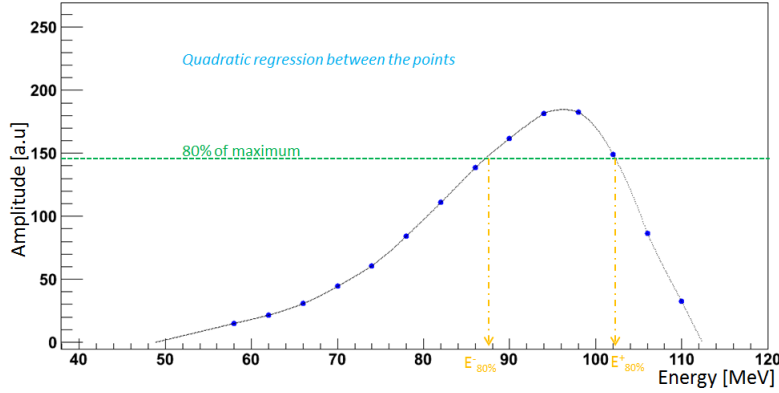


FIGURE 4.27 – Distribution en énergie pour A=105

La distribution en énergie étant très asymétrique la moyenne des énergies à X % du maximum augmente avec X comme on peut le voir figure 4.28. De plus la dépendance avec X varie au cours du temps. Elle tend à se stabiliser vers le sommet de la distribution : la forme se rapproche d'une gaussienne et devient symétrique. Cette stabilisation commence en général vers 80%. Il a donc été choisi de prendre

$$E_{max} \equiv [E^+(80\%) + E^-(80\%)]/2 \quad (4.2)$$

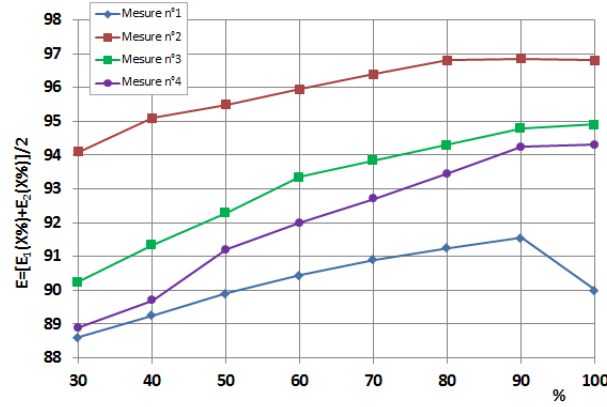


FIGURE 4.28 – Évolution de l'énergie la plus probable définie comme $E = [E^-(X\%) + E^+(X\%)]/2$ en fonction de $X\%$ pour 4 différentes dates de mesure

La différence entre l'énergie la plus probable définie équation 4.2 et le maximum algébrique a été étudiée pour l'ensemble des masses mesurées. Cet écart est en moyenne de -0.6 MeV en raison de la légère asymétrie du sommet de la distribution avec un écart type de 0.8 MeV comme illustré figure 4.29.

Suite à ces deux études, l'incertitude sur la détermination du maximum a été estimée à 0.6 MeV.

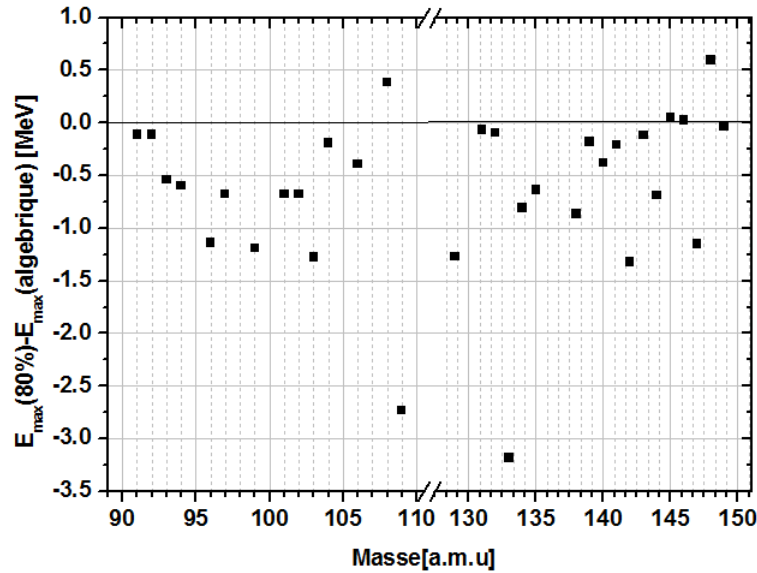


FIGURE 4.29 – Différence entre l'énergie la plus probable définie par l'équation 4.2 et le maximum algébrique en fonction de la masse du fragment

Comme détaillé §4.1.2, la corrélation entre la charge et l'énergie entraîne une incertitude sur le rendement mais elle est également à l'origine d'une incertitude sur l'énergie cinétique la plus probable (KE).

Ainsi l'énergie cinétique (KE) obtenue dépend de la charge à laquelle elle a été mesurée. La corrélation n'a pas été mesurée dans le cadre de cette thèse cependant deux expériences peuvent nous aider à déterminer l'influence de cette corrélation sur le KE. La première expérience est celle de Guttler [GUT91]. Lors de la mesure des rendements

de l' ^{242}Am avec une cible fine il a déterminé, pour différentes masses de la symétrie, la distribution en énergie pour plusieurs charges ioniques. La figure 4.30 représente l'énergie cinétique moyenne obtenue pour chaque charge, l'énergie moyenne sur l'ensemble de la distribution et la charge moyenne. Comme on peut le voir il y a une dépendance différente selon la masse entre l'énergie moyenne et la charge. On observe également que l'énergie moyenne de la masse est très proche de l'énergie moyenne à la charge moyenne. On peut donc estimer que si l'on mesure la distribution en énergie à la charge moyenne, alors l'énergie cinétique obtenue est très proche de l'énergie moyenne de masse A .

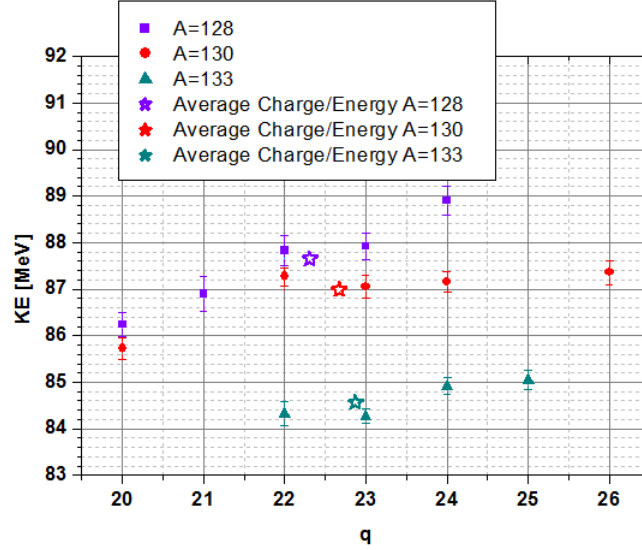


FIGURE 4.30 – Les triangles, ronds, carrés représentent l'énergie moyenne pour différentes masses en fonction de la charge ionique. Les étoiles correspondent à $q = \bar{q}$ et $KE = \bar{KE}$ de la masse [GUT91]

La dépendance de la charge avec l'énergie doit cependant, comme détaillé 4.1.2, être mesurée dans chaque cas.

Les expériences précédentes [GUT91, BAI09, MAR13] nous ont conduits à mesurer la distribution en énergie à la charge moyenne et à considérer une erreur de 0.6 MeV sur l'énergie mesurée due à la corrélation de celle-ci avec la charge.

4.3.5 Énergie cinétique en fonction de la masse

L'évolution du comportement de la cible (sputtering et évolution de la feuille de Ni) n'étant pas accessible, l'épaisseur de matière traversée est inconnue. Aucune correction d'énergie due à la traversée de la cible (matière active et de la feuille de Nickel) ne peut donc être effectuée au fil du temps. L'énergie cinétique mesurée pour une masse A $KE_{mes}(A)$ correspond à l'énergie lors de la fission et après évaporation des neutrons $KE_{fission}(A)$ moins l'énergie qui est perdue dans la cible $\Delta E(x, A, KE)$ où x est l'épaisseur de la cible.

$$KE_{fission}(A) = KE_{mes}(A, t) + \Delta E(x, A, KE, t)$$

Dans le cas d'une faible dépendance de $\Delta E(x, A, KE)$ avec la masse et l'énergie cinétique dans la zone d'étude, on peut écrire

$$KE_{fission}(A) = KE_{mes}(A, t) + \Delta E(x(t))$$

soit

$$KE_{fission}(A) - KE_{fission}(A = 105) = KE_{mes}(A, t) - KE_{mes}(A = 105, t)$$

Or on a accès à $KE_{mes}(A, t) - KE_{mes}(A = 105, t)$ on en déduit donc $KE_{fission}(A) - KE_{fission}(A = 105)$ qui ne doit pas dépendre du moment t où a été réalisée la mesure. Cette différence a été mesurée pour $A=98$, $A=136$ et $A=146$ (voir figure 4.31). Comme on peut le voir cette différence est quasiment constante avec le temps alors que l'on sait qu'il y a eu une grande évolution de la cible (§ 4.5). Notre hypothèse de faible dépendance de $\Delta E(x, A, KE)$ avec la masse et l'énergie cinétique entrante, dans le domaine considéré, semble donc correcte.

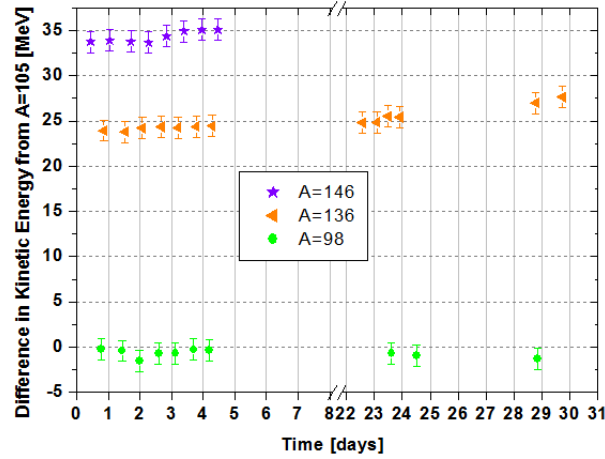


FIGURE 4.31 – Différence entre l'énergie cinétique mesurée et l'énergie cinétique de la masse $A=105$ (calculée via eq 4.2) en fonction du temps pour différentes masses

Afin d'étudier cette hypothèse sur un domaine plus large nous avons étudié à l'aide de SRIM[ZIE08] la perte d'énergie : $\Delta E = KE_{fission}(A) - KE_{mes}(A)$ où $KE_{mes}(A)$ est l'énergie à la sortie d'une cible. $KE_{fission}(A)$ est issu des calculs GEF octobre 2012 avec pour le calcul de perte d'énergie $Z(A) = Z_{UCD}(A)$. L'hypothèse a été testée pour 3 épaisseurs de Nickel : $0,25\mu\text{m}$ (épaisseur de la feuille de Nickel lors de la mise en pile), $0,15\mu\text{m}$ et $0,35\mu\text{m}$. En effet l'étude du taux de fission a révélé une faible évolution de l'épaisseur de la matière active qui induit au maximum une perte d'énergie de 1 MeV. Comme on peut le voir figure 4.32 la plage de variation de $\Delta E(x, A, KE)$ en fonction de A est faible par rapport à l'incertitude sur la mesure des énergies (0.8 MeV). Cette dépendance est cependant très importante avec l'épaisseur de la cible.

L'influence de la charge Z sur ΔE a également été étudiée (voir figure 4.33). Elle semble inférieure à 0.5 MeV. Toutefois certaines structures apparaissent notamment au niveau du Xe ($Z=54$), Kr ($Z=36$), Ag ($Z=47$). Elles sont liées aux bases de données utilisées dans SRIM qui confèrent à ces noyaux ayant une couche électronique fermée, un pouvoir stoppant plus grand que la systématique environnant comme illustré figure 4.34.

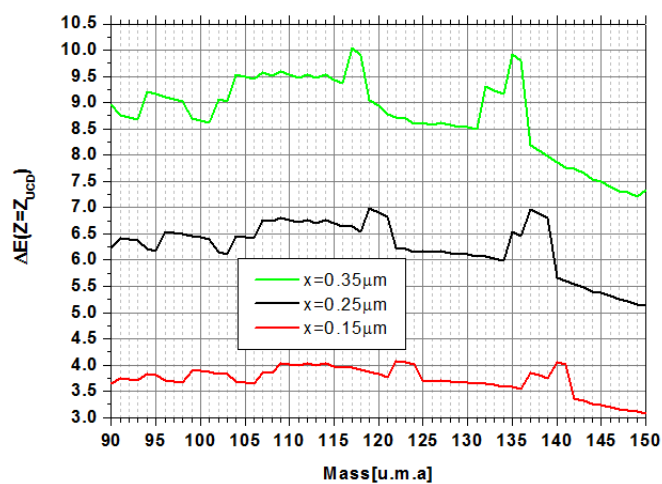


FIGURE 4.32 – Perte d'énergie dans la cible en fonction de la masse du fragment pour différentes épaisseurs x de la feuille de Nickel (calculée avec le code SRIM)

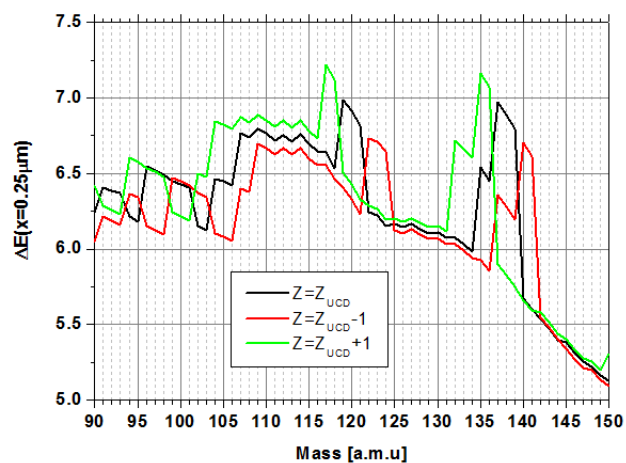


FIGURE 4.33 – Perte d'énergie dans la cible en fonction de la masse du fragment pour différentes charges Z et pour une épaisseur de la feuille de Nickel de $0.25\mu\text{m}$

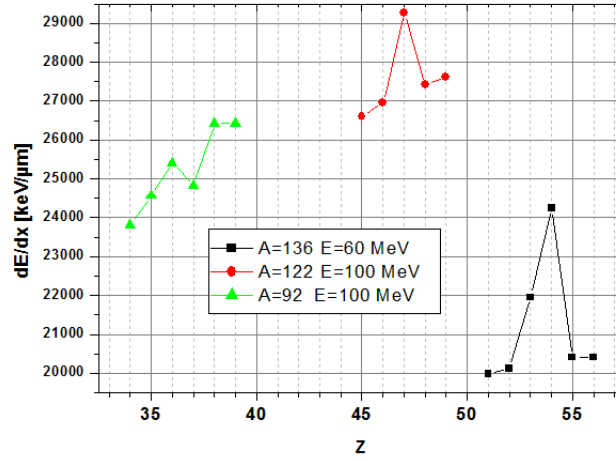


FIGURE 4.34 – Pouvoir d’arrêt en fonction de la charge. Les masses et les énergies correspondantes sont indiquées dans la légende

4.4 Distribution en charge ionique

Les ions sont produits nus lors de la fission i.e sans cortège électronique ($q=Z$). Au fur et à mesure de la traversée dans la cible le cortège électronique se forme par échange d’électrons avec la matière. Ces phénomènes sont purement atomiques. Le nombre d’électrons dont le cortège est constitué après traversée est $(Z-q)$. L’épaisseur des cibles est suffisamment élevée pour que les ions atteignent une distribution d’équilibre appelée ECSD (Equilibrium Charge-State Distribution). La forme de cette distribution résulte de plusieurs effets stochastiques, comme la capture électronique, la perte d’électrons et des effets de surface de la cible [BAU82]. La distribution en charge dépend du milieu traversé, mais aussi de la charge nucléaire et de l’énergie cinétique de l’ion [SHI86]. En faisant l’hypothèse de variation lente des sections efficaces de capture et de perte d’électrons en fonction de la charge, Bohr [BOH41] a obtenu une forme gaussienne pour cette distribution. Toutefois, cette forme n’est pas valable si l’état de charge moyen est trop proche de l’état neutre ou de Z .

Comme illustré sur la figure 4.35 différentes formes de distributions ont été observées en fonction de l’énergie. Compte tenu des énergies mises en jeu lors de la fission une forme gaussienne est attendue et a déjà été observée à Lohengrin à maintes reprises.

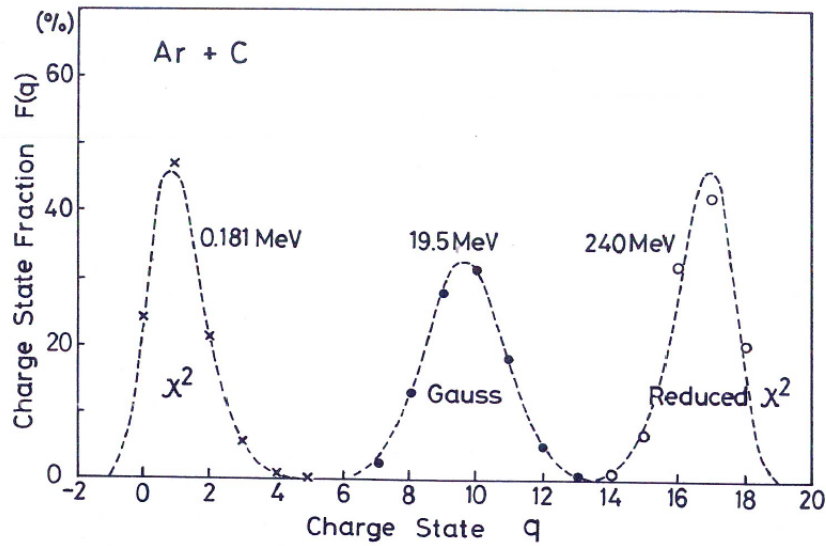


FIGURE 4.35 – Distribution en charge d'ion argente après la traversée d'une feuille de carbone pour 3 énergies cinétiques des ions argents [BAU82] [SHI86]

Les charges moyennes et les largeurs des distributions sont actuellement connues grâce à des ajustements réalisés sur des mesures. Deux modèles en particulier sont utilisés pour décrire les distributions : le modèle de Nikolaev [NIK68] et celui de Shima [SHI82] (voir équation 4.1).

Toutefois d'autres formes de distributions en charges ioniques ont été observées [BEL89] et [SID89]. Ces différents types de distributions ont deux origines distinctes. Celles présentées dans [SID89] (cf figure 4.36) sont dues à la présence de couches dans le cortège électronique. En fait les sections efficaces des processus en jeu dans la détermination de q sont constantes à l'intérieur d'une même couche mais diffèrent entre les couches. A chaque changement de couche on peut donc définir un point critique. Les points critiques pour les Z moyens de chaque pic sont présentés table 4.4.

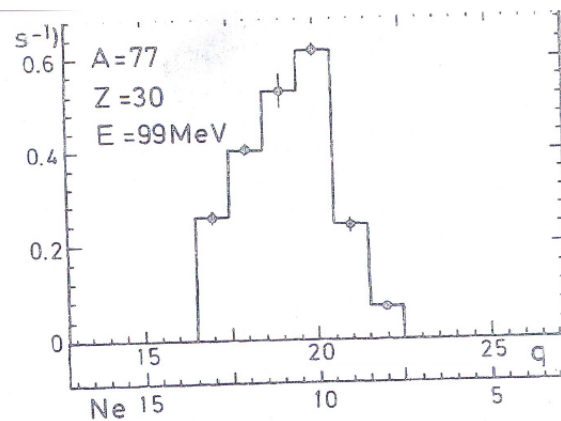


FIGURE 4.36 – Distribution en charge ionique pour $A=77$, $Z=30$ et $E=99$ MeV [SID89].

Nom de la couche	Numéro du dernier électron de la couche	Charge critique <Z> lourd=54	Charge critique <Z> léger=41
K	2	52	39
L	10	44	31
M	28	26	13
N	46	8	X

TABLE 4.4 – Charge (charge critique) à laquelle on s’attend à avoir un changement brutal de la forme de la distribution en charge ionique selon la couche électronique remplie pour le fragment lourd et le fragment léger

Comme on peut le voir ce phénomène ne sera pas d’une grande importance dans notre étude puisque les charges moyennes sont autour de 21 avec une largeur de 2-3 environ .

Le second type de distribution non gaussienne que l’on peut observer résulte de la présence d’un isomère nanoseconde. En effet, il arrive que le noyau soit produit dans un état isomérique excité. Il traverse la matière puis se désexcite par conversion interne ou cascade Auger. Si cette désexcitation a lieu après la feuille de Nickel mais avant l’entrée dans l’aimant alors la charge sélectionnée par l’aimant est plus élevée ($q=24-28$) comme illustré figure 4.37. La distribution en q peut donc ainsi être ajustée par deux gaussiennes, une centrée sur 21 et l’autre sur la charge de l’isomère avant désexcitation.

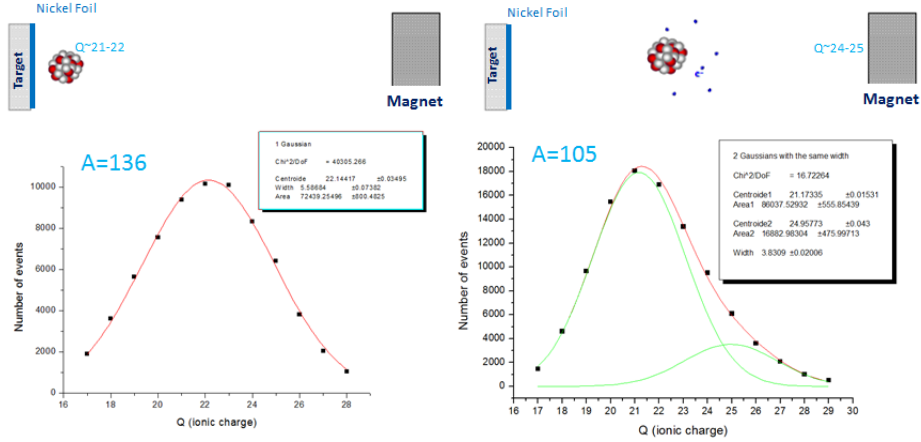


FIGURE 4.37 – Explication schématique des distributions en charge ionique pour un noyau sans nanoseconde isomère (gauche) et avec nanoseconde isomère (droite) [BAI09]

La contribution de l’isomère dépend de l’énergie et de la masse. Comme illustré figure 4.38, elle peut être minoritaire (ex $A=105,148$) ou majoritaire ($A=149$). Pour certaines masses comme la masse 140 et 142 on note la présence de plusieurs isomères. Ces isomères sont appelés isomères nanosecondes car ils ont une durée de vie courte, typiquement de 10 ps à 1 ns. Ces durées caractéristiques sont déterminées par la distance entre la cible et la feuille de nickel. Ils ne sont pas toujours détectés car la détection ne peut se faire que si l’isomère est produit dans une quantité raisonnable et se désexcite par émission d’électrons. Les énergies de transitions entre niveaux pour ces noyaux est de l’ordre de 100 keV. Ainsi les noyaux avec nanosecondes isomères sont impairs-impairs.

S’il est assez évident visuellement que certaines masses présentent des nanosecondes, des doutes peuvent subsister pour certaines masses notamment la masse 136. De plus, l’ajustement par une seule gaussienne conduit souvent à des $\chi^2_{réduit}$ très élevés (supérieurs à 50). Le fit systématique par deux gaussiennes a donc été retenu. La masse 129

	Aire 2 Gaussiennes ML/ Aire 2 Gaussiennes	Aire 1 Gaussienne/ Aire 2 Gaussiennes	$\chi^2_{réduit}$ 2 Gauss. ML	$\chi^2_{réduit}$ 2 Gaussiennes	$\chi^2_{réduit}$ 1 Gaussienne
Moyenne	1.000	1.016	3.4	4.2	26.5
Ecart-Type	0.001	0.005	2.3	4.7	6.7

TABLE 4.5 – Comparaison (moyenne et écart-type) des aires et des $\chi^2_{réduit}$ des 10 premières distributions en charges de la masse A=136 selon la fonction d’ajustement. ML signifie même largeur.

est une exception car le fit par une seule gaussienne était concluant. Les masses 140 et 142 qui possèdent plusieurs isomères ont été ajustées par 3 gaussiennes (voir figure 4.38).

La largeur, résultant de la traversée de matière, doit être la même pour les deux gaussiennes. Cependant compte tenu des $\chi^2_{réduit}$ pour les masses avec faible contribution (mais visible) du nanoseconde isomère (comme 102-105), situés autour de 10, les largeurs ont seulement été contraintes dans un intervalle de $\pm 30\%$ ce qui a permis de réduire les $\chi^2_{réduit}$ de moitié. Les aires obtenues dans les deux cas sont très proches : les différences sont du même ordre de grandeur que l’erreur statistique (0.5-1%) comme indiqué table 4.5.

La masse 136 a été suivie durant l’expérience destinée à la mesure des rendements en masse et lors de l’expérience destinée à la mesure des rendements isotopiques. Les $\chi^2_{réduit}$ les plus faibles sont obtenus avec la fonction deux gaussiennes, les aires ne sont pas influencées par une égalité de la largeur des gaussiennes (voir table 4.5). L’ajustement avec une seule gaussienne entraîne une surestimation de 1.6% de l’aire de la distribution.

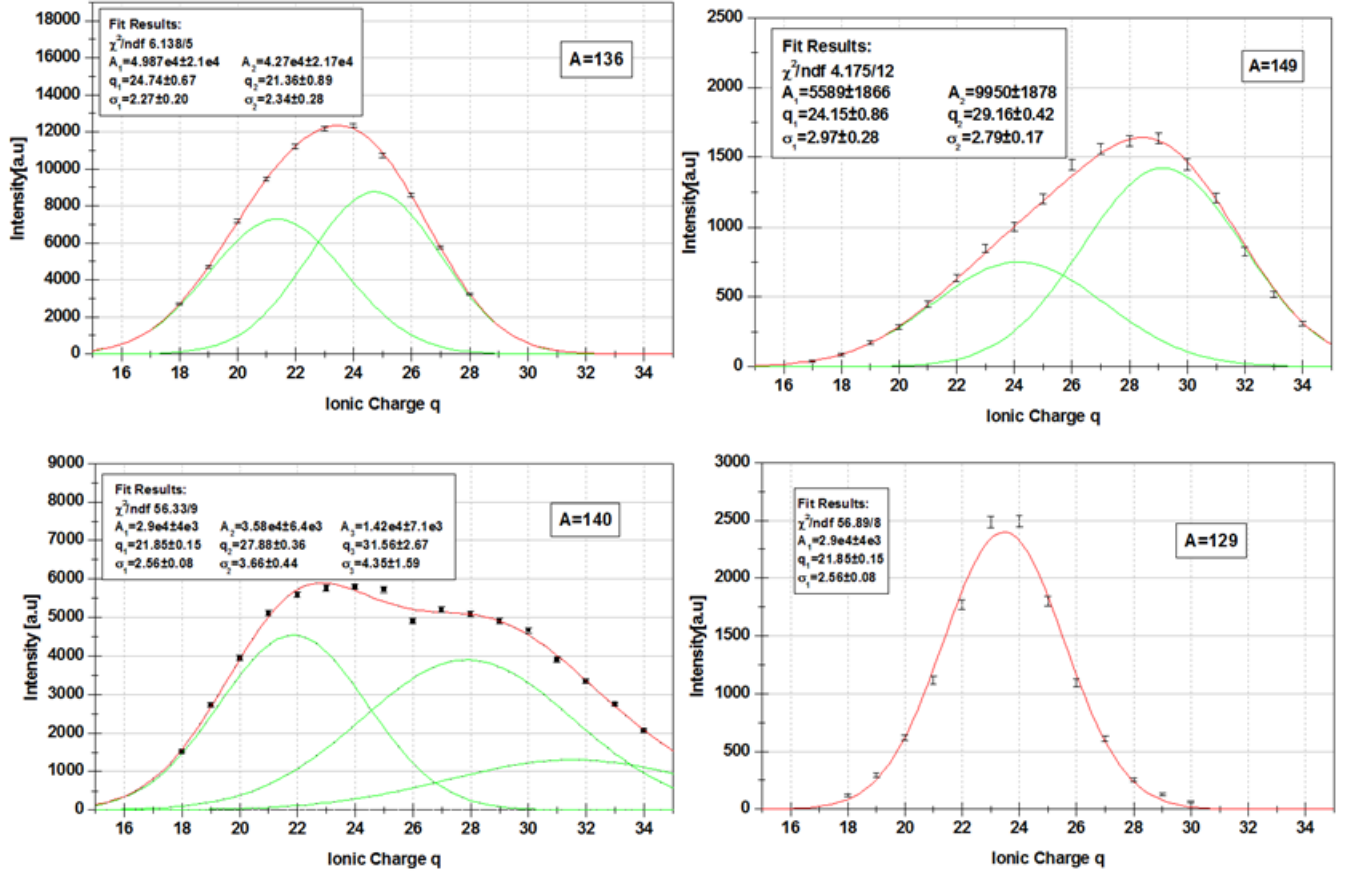


FIGURE 4.38 – Exemples de distributions en charges ioniques pour différentes masses $A=136$, $A=140$, $A=149$ et $A=129$

Le comportement gaussien est attendu pour un Z et un A donnés or lors de la mesure d'une masse on a une intégration en Z . Une question demeure : la forme gaussienne peut-elle être remise en cause par l'intégration en Z . Si comme illustré figure 4.39 on utilise la formule extraite de [SHI82] pour calculer la distribution en charge pour un fragment lourd et un fragment léger à une énergie fixe et que l'on multiplie par le rendement de ce fragment alors on obtient la distribution en charge attendue pour la masse. Les rendements utilisés sont extraits de ENDF/B-VII.

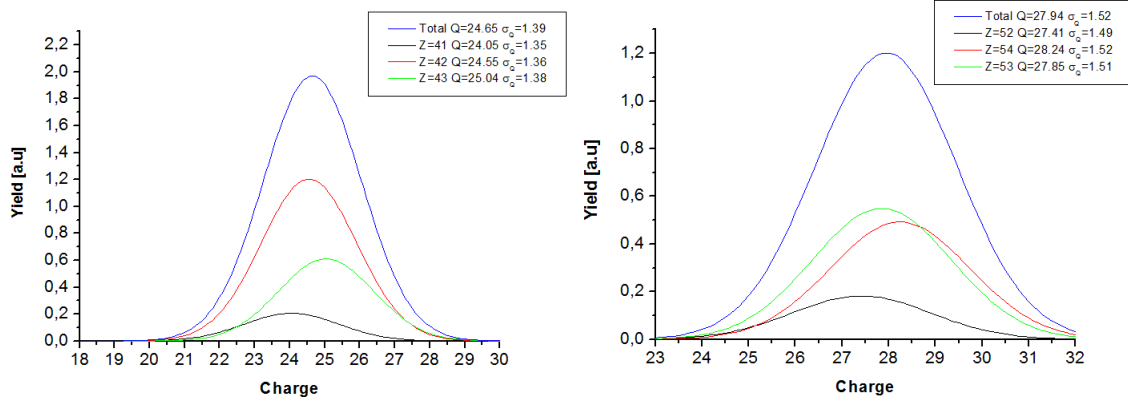


FIGURE 4.39 – Distributions en charge calculées avec [SHI82] pour la masse 105 (gauche) et la masse 136 (droite)

Les distributions en masse obtenues sont gaussiennes, l'intégration en Z ne perturbe donc pas le caractère gaussien. Toutefois, il est à noter que les prédictions de Shima sont en désaccord avec les données pour les fragments lourds : la charge prédite est beaucoup plus élevée que celle observée.

4.5 Évolution de la cible

La correction du nombre de fragments mesurés par le nombre de fissions doit être effectuée pour chaque point de mesure. Or cette dernière ne peut, de manière évidente, être effectuée sur la masse permettant de déterminer le burn-up i.e le nombre de fissions au cours du temps. Il a donc été décidé que le rendement pour chaque masse serait normalisé par le nombre de fissions au début du scan en charge. Cela revient à considérer que le taux de fission est constant durant la mesure de la masse. Cette hypothèse a été vérifiée de deux manières complémentaires.

Comme expliqué au paragraphe §4.2, le nombre de fissions de la cible $N(t)$ peut être donné en première approximation par les équations d'évolution (équation de Bateman) pour un flux de $7.2 \cdot 10^{14} n.cm^{-2}s^{-1}$. La figure 4.40 représente la différence relative entre le nombre de fissions à la première ($t-1h$) et à la dernière mesure ($t+1h$) d'une masse : $\frac{|N(t+1h)-N(t-1h)|}{N(t)}$. Ce rapport nous permet de déterminer l'erreur maximale due à l'hypothèse d'un nombre de fissions constant. Sur cette figure est également représentée l'erreur statistique sur le nombre moyen de fissions mesuré durant l'expérience à l'aide du rendement de la masse 105. Durant les périodes de mesure des rendements en masse l'hypothèse d'un nombre constant de fissions durant la mesure d'une masse est réaliste à environ 0.2 % près, ce qui est faible comparé à l'erreur statistique qui est de l'ordre de 0.8%. Cependant cette hypothèse est fautive durant les variations rapides du taux de fission i.e les premiers jours après la mise en pile et les premiers jours après redémarrage du réacteur.

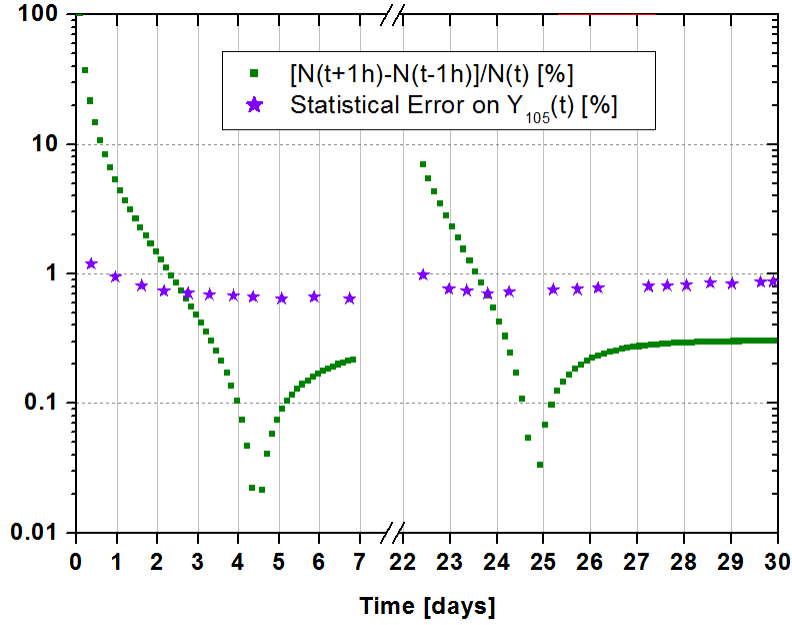


FIGURE 4.40 – Différence relative entre le nombre de fissions à $t-1h$ et $t+1h$ d’une masse en fonction du temps (points verts). Les étoiles violettes représentent l’erreur statistique du nombre moyen de fissions mesuré par le rendement de la masse 105

L’étude en fonction du temps du rapport entre le taux de comptage du point commun obtenu lors du scan en énergie $N(\text{scanE})$ et lors du scan en charge $N(\text{scanQ})$ (cf 4.1) nous renseigne sur l’hypothèse d’un nombre constant de fissions au cours de la mesure d’une masse. Ces derniers correspondent à un même réglage du spectromètre et sont en général pris avec une heure de différence. A nombre de fissions identiques, ces nombres doivent être identiques, à l’erreur statistique et à la reproductibilité de la mesure près. La mesure de la distribution en charge ayant toujours eu lieu après la mesure de la distribution en énergie, si l’hypothèse d’un taux de fission constant durant la mesure d’une masse est fausse alors on doit observer une dépendance entre $N(\text{scanQ})/N(\text{scanE})$ et la dérivée locale de $N_f(t)$. Comme indiqué figure 4.15, on a un nombre croissant de fissions entre 0 et 3 jours et 22 et 24 jours et un nombre décroissant durant les autres périodes. On observe comme attendu d’après 4.40, l’influence du nombre de fissions entre 0 et 1.5 jours mais aucune corrélation entre $N(\text{scanQ})/N(\text{scanE})$ et la pente de $N_f(t)$ n’est observée durant le reste de l’expérience. Cela nous permet de confirmer l’hypothèse d’un nombre constant de fissions durant la mesure d’une masse.

La mesure du point commun est le seul moyen dont nous disposons pour évaluer la reproductibilité de nos mesures. Ainsi l’étude du rapport $N(\text{scanQ})/N(\text{scanE})$ a également permis de déterminer l’erreur systématique due à la reproductibilité de la mesure. Ce rapport a été étudié pour chaque masse mesurée plusieurs fois en fonction du temps comme illustré figure 4.41 et table 4.6. Ce rapport est proche de 1 et l’écart type constaté est supérieur à l’erreur statistique. Ce même rapport a également été étudié en fonction de la masse. La moyenne est de $1 \pm 3\%$, incertitude supérieure aux erreurs statistiques. Ces 3% ont été retenus comme erreur systématique sur chaque rendement en masse. Ces 3% ne peuvent cependant pas être considérés comme indépendants de l’erreur statistique. On observe également que le rapport est significativement différent de 1 pour les premiers jours de l’expérience comme attendu (cf figure 4.40). Cet écart peut également être expliqué par une grande variation de l’épaisseur de

la cible durant les premiers jours.

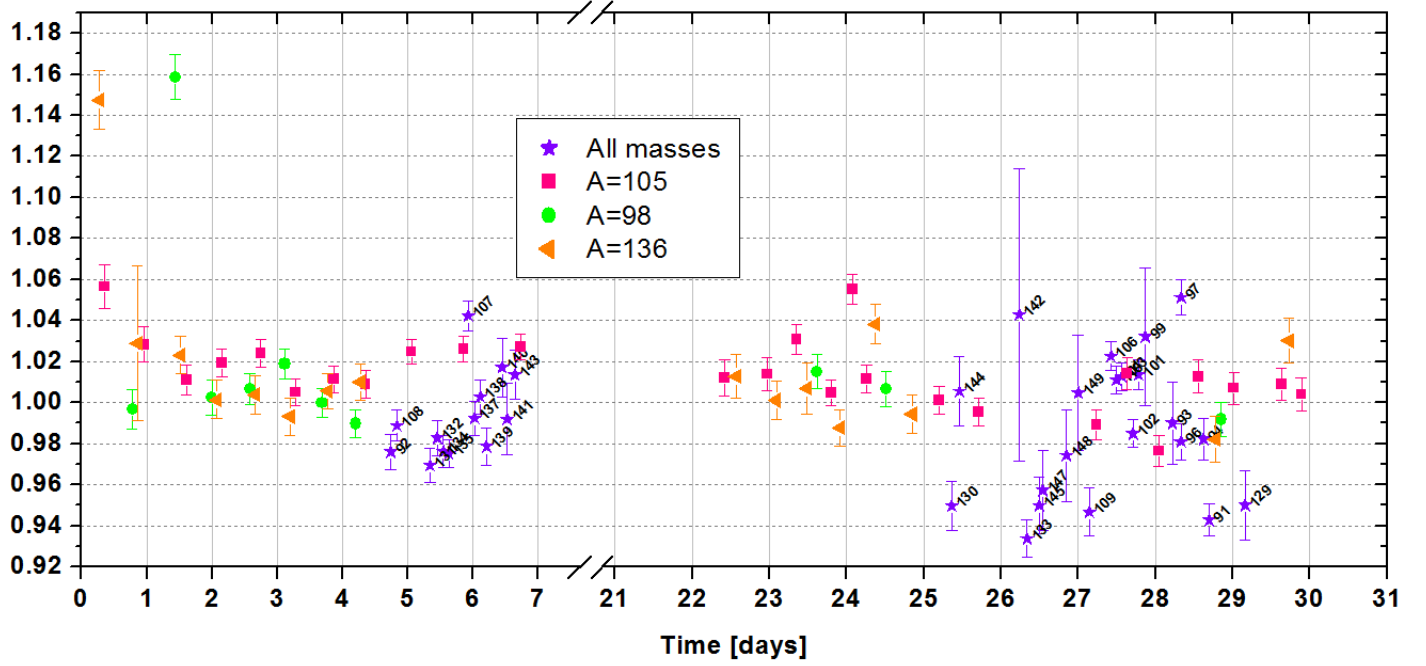


FIGURE 4.41 – Rapport entre le nombre de coups mesurés lors du scan Q et celui mesuré lors du scan E en fonction du temps pour différentes masses. Pour les masses mesurées une seule fois (all masses) la masse mesurée est reportée à côté du point

	Moyenne	Écart type
Masse 105 en fonction du temps	1.015	0.017
Masse 98 en fonction du temps	1.019	0.05
Masse 136 en fonction du temps	1.017	0.038
Rapport en fonction de la masse	0.994	0.029

TABLE 4.6 – Moyenne et écart type concernant le point commun

Intéressons-nous à présent à la mesure du nombre de fissions qui ont eu lieu dans la cible. Ce nombre de fissions est mesuré comme dit précédemment par le nombre de fragments d'une masse donnée, dans notre cas la masse 105. La figure 4.42 représente les résultats obtenus. Les tendances globales prédites (voir figure 4.15) sont observées. La figure 4.43 illustre le rapport entre le nombre de fissions prédit par un calcul d'évolution, sans sputtering pour différents flux, et le nombre de fissions mesuré. Un rapport constant indique que le flux correspond au flux réel. Dans l'hypothèse d'un flux constant comme dans cette expérience ($\sigma_\phi < 5\%$) (cf figure 4.13), un rapport non constant correspond à un flux non correct ou à un sputtering non négligeable. Comme l'avait prédit les calculs Monte Carlo le flux de neutrons au niveau de la cible est de l'ordre de $7.2 \cdot 10^{14} n.cm^{-2}s^{-1}$ comme le montre le rapport constant entre les jours 1 à 4 et 23 à 24. Le sputtering semble avoir joué un rôle non négligeable (quelques pourcents) dès le 25^{ème} jour et avant l'arrêt du réacteur.

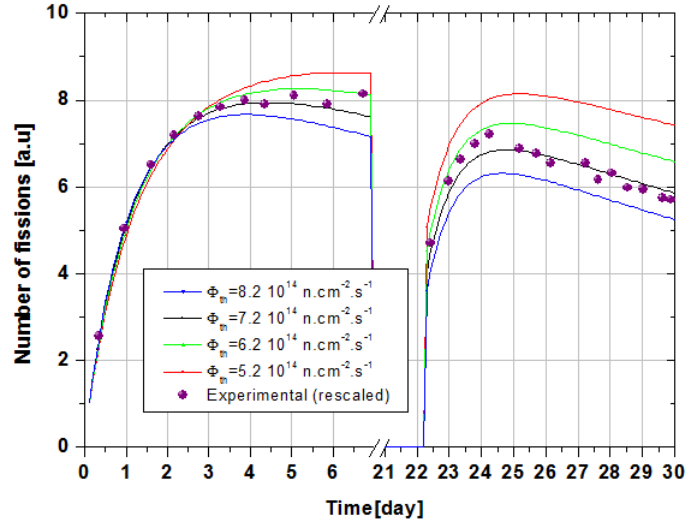


FIGURE 4.42 – Nombre de fragments de la masse 105 détectés en fonction du temps (cercles violets). Ce dernier est proportionnel au nombre de fissions. $t=0$ correspond à la mise en pile. Les lignes correspondent au nombre de fissions en fonction du temps normalisé au nombre de fission à $t=0.1$ jour pour différents flux

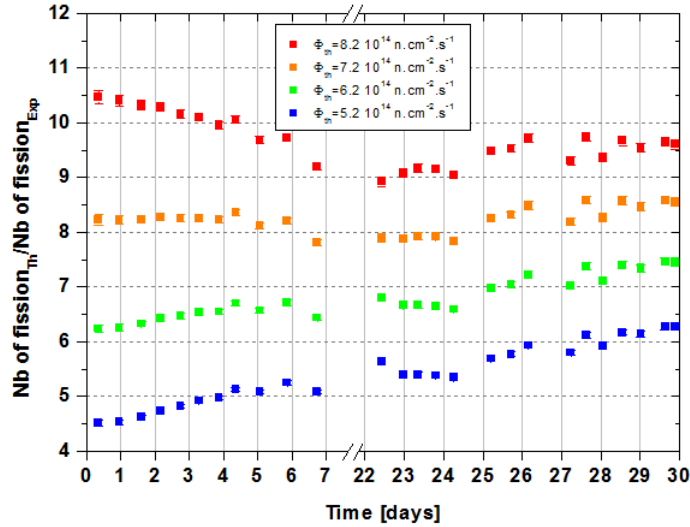


FIGURE 4.43 – Rapport entre le nombre de fissions prédit par un calcul d'évolution sans sputtering pour différents flux et le nombre de fissions mesuré

Ainsi la réduction de la quantité de matière nucléaire dans cette cible a été principalement due aux réactions nucléaires et est donc en première approximation prévisible. La mesure des rendements à Lohengrin permet également la mesure de la distribution en énergie cinétique des fragments. Les pertes d'énergies pour des fragments dans la cible sont d'environ 2 MeV dans la matière nucléaire et 6 MeV dans la feuille de nickel. L'énergie cinétique de la masse 105 au cours du temps est représentée sur la figure 4.44. Cette énergie a beaucoup varié durant l'expérience. Durant les quatre premiers jours l'énergie moyenne a augmenté de 7 MeV environ ce qui devrait correspondre à une perte de la feuille de nickel s'accompagnant d'une éventuelle perte de matière importante. Cette augmentation ne

peut en aucune manière être due à la seule perte de matière. Cette perte est estimée à 25 % environ pour l'ensemble de la période de l'expérience. La diminution de 4 MeV qui a suivi n'a pour l'instant pas pu être expliquée de manière concluante. Une énergie plus faible signifie une épaisseur de matière traversée plus grande ce qui est impossible sauf pour des fissions issues de noyaux d' ^{242}Am implantés dans le backing par le sputtering. Toutefois la proportion de ces noyaux est très faible.

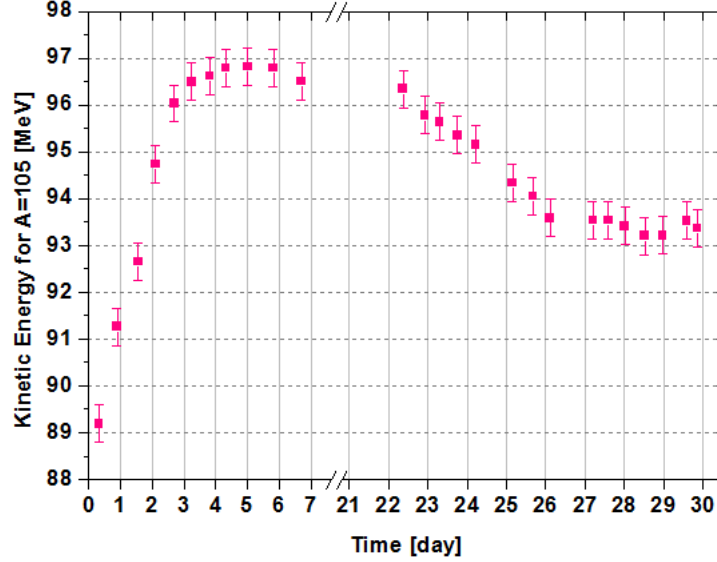


FIGURE 4.44 – Évolution de l'énergie cinétique de la masse 105 en fonction du temps

Afin de savoir s'il y a eu une perte partielle ou totale de la feuille de Nickel je me suis intéressée à la distribution en charge ionique. En effet la charge ionique est déterminée par le dernier matériau traversé, ainsi si il y a perte de la feuille de nickel le dernier matériau traversé n'est plus le nickel mais l'américium donc la charge ionique moyenne devrait diminuer en [SHI82]. La figure 4.45 présente l'évolution de la charge ionique de la masse 105 en fonction du temps. La charge ionique a été mesurée à des énergies très proches (cf étiquettes), afin de ne pas observer des changements de charge moyenne dus à la corrélation énergie-charge. La charge moyenne ainsi que la largeur de la distribution n'ont pas varié, il n'y a donc pas eu perte de la feuille de nickel.

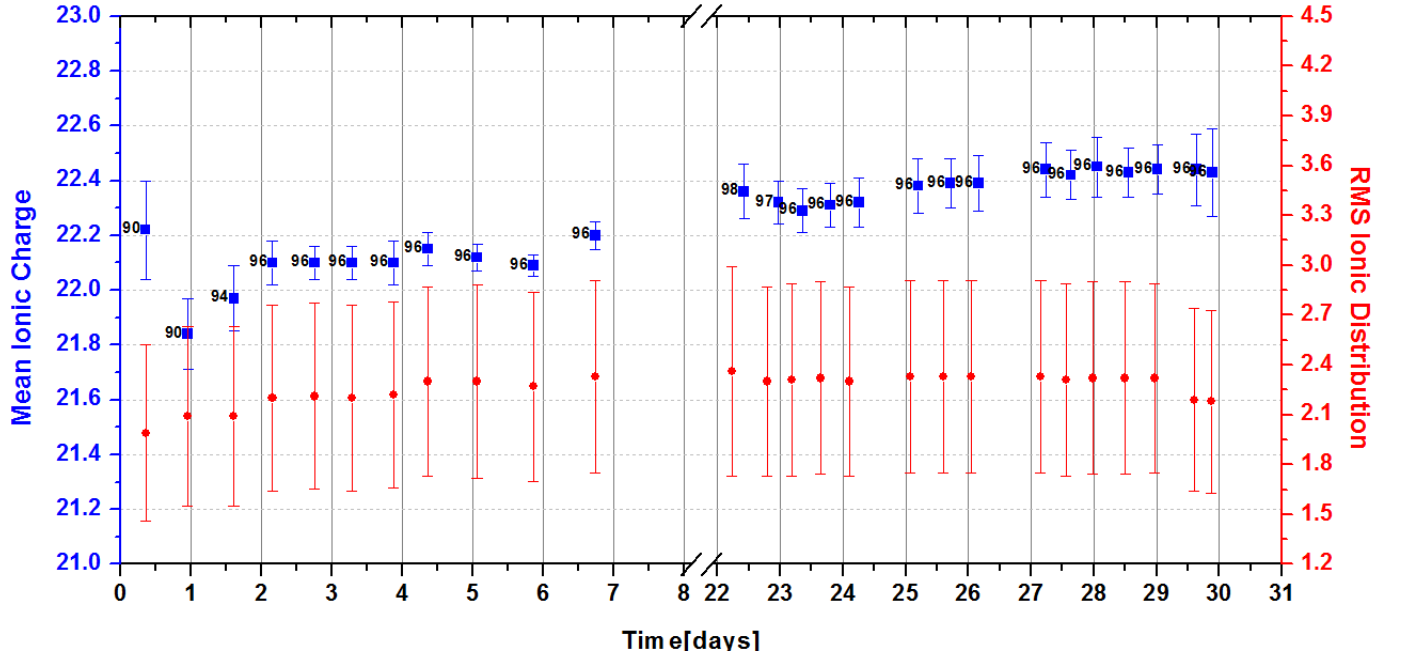


FIGURE 4.45 – Charge moyenne (axe de gauche) et RMS (axe de droite) de la distribution en charge de la masse 105 prise à l'énergie inscrite à gauche de la charge moyenne en fonction du temps

La distribution en énergie peut également être caractérisée par sa largeur à mi-hauteur. Ces largeurs pour différentes masses (98,105,136) en fonction du temps sont représentées figure 4.46. Si on considère l'exemple de la masse 105 où on dispose du plus grand nombre de mesures, on observe que la largeur a beaucoup varié (~ 8 MeV). On observe également que l'évolution de la largeur est très dépendante de la masse contrairement à l'énergie.

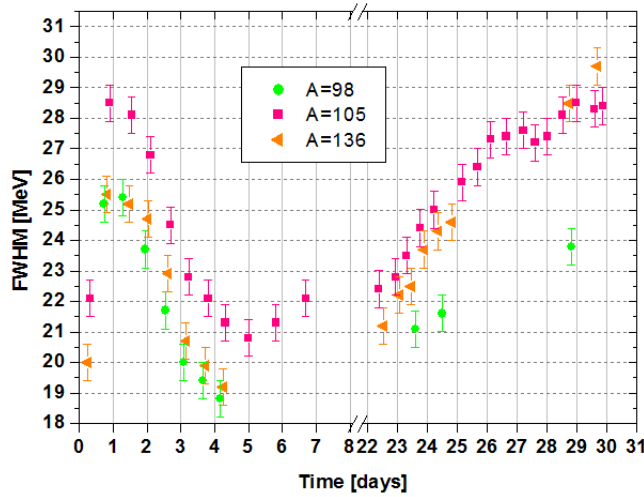


FIGURE 4.46 – Largeur des distributions en énergie pour différentes masses (98,105,136) en fonction du temps

L'étude des demi largeurs présentée figure 4.47 nous indique une très grande asymétrie dans la distribution en énergie. Si les demi-largeurs à 33%, 50% et 80% à droite de E_{max} n'évoluent pas beaucoup avec le temps on observe

que la distribution en énergie s'élargit à basse énergie.

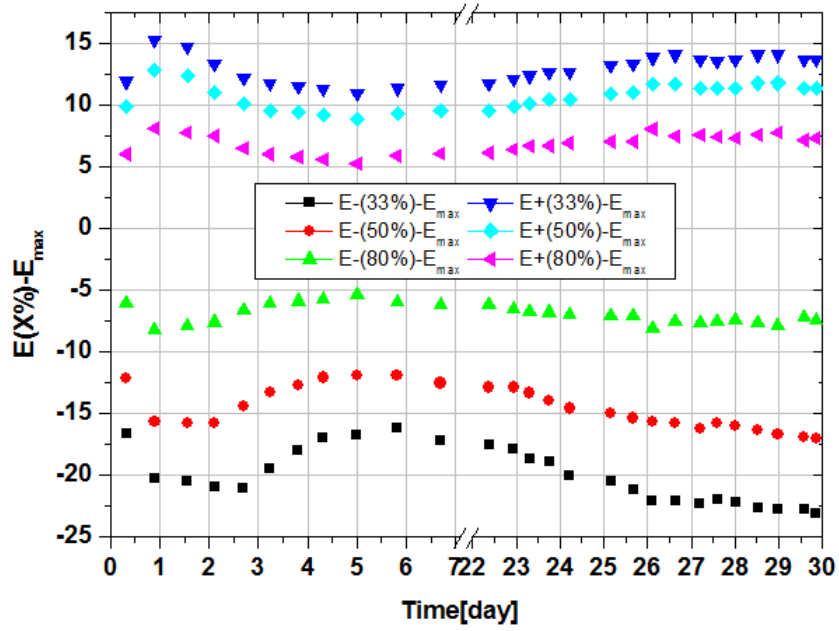


FIGURE 4.47 – Demi-largeur à 33%, 50% et 80% en fonction du temps pour la masse 105

Compte tenu de la très grande variation des distributions en énergie, les énergies cinétiques ne pourront être données qu'en relatif (ref § 4.3.5) et les largeurs ne seront pas étudiées puisque le découplage entre la largeur due à la cible et celle due à l'inhomogénéité de la cible n'est pas réalisable.

Chapitre 5

Analyse des rendements isotopiques

Les rendements en masse que nous avons mesurés permettront de contraindre considérablement les évaluations des rendements cumulés. Ils ne sont cependant pas suffisants pour les applications nucléaires. Par exemple, le pilotage d'un réacteur est validé sur des simulations qui utilisent en entrée les rendements isotopiques $Y(A, Z, I)$. Ces derniers lorsqu'ils n'ont jamais été mesurés sont obtenus par les évaluateurs par interpolation et/ou contrainte avec des modèles empiriques. Une validation expérimentale de bonne précision est donc justifiée d'autant que l' ^{242}Am étant un noyau à charge impaire ($Z=95$), un effet pair-impair particulier est attendu. Le chapitre qui suit présente l'analyse des rendements isotopiques mesurés à Lohengrin par spectrométrie gamma. Dans cette technique, l'énergie des gammas émis lors de la décroissance des fragments nous permet de les identifier en masse et charge nucléaire tandis que l'aire associée à la raie gamma nous permet de déterminer leur rendement.

5.1 Stratégie de la prise de données

Contrairement aux mesures avec la chambre d'ionisation qui renvoient le nombre de fragments produits à l'instant t , la spectrométrie gamma nous donne le nombre total de décroissances qui ont eu lieu durant la mesure. Plusieurs opérations vont donc être nécessaires afin de retrouver le taux de fragments produits. Si a_{mes} est le nombre de décroissances d'un fragment donné durant le temps de mesure T_{mes} (activité mesurée intégrée) et N_γ le nombre de gamma liés à une transition donnée suite à la désintégration beta alors on utilise la relation suivante :

$$a_{mes} = \frac{N_\gamma}{\varepsilon(E_\gamma)} * \frac{100}{I(E_\gamma, Z, A)}$$

avec $I(E_\gamma, Z, A)$ l'intensité de la raie gamma à E_γ du noyau (Z, A) en pourcentage et $\varepsilon(E_\gamma)$ l'efficacité du système de détection.

Pour les mesures de spectrométrie gamma, les fragments issus de Lohengrin sont implantés sur une bande qui ne bouge pas durant tout le temps de mesure. Les gamma émis lors de la décroissance beta sont mesurés avec des détecteurs germanium placés autour du point d'implantation. A la fin du temps d'acquisition, le faisceau est arrêté, la bande est translatée d'environ un mètre et les paramètres du spectromètre Lohengrin sont modifiés pour la mesure suivante. L'activité mesurée a_{mes} est due aux fragments qui se sont implantés sur la bande durant le temps de mesure ($a_{faisceau}$) mais est également due à ceux qui se sont implantés autour de la bande, sur le cadre

de la chambre à vide, durant les mesures précédentes (a_{cadre}).

Pour estimer l'activité des fragments issus des mesures précédentes et encore présents sur le cadre après translation de la bande, on effectue une mesure faisceau fermé avant chaque mesure faisceau ouvert. La procédure complète est illustrée à la figure 5.1.

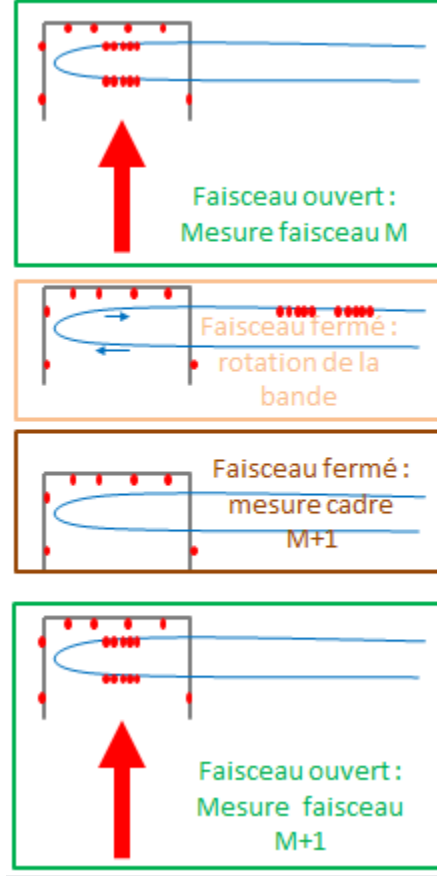


FIGURE 5.1 – Déroulement d'une prise de données lors de la mesure des rendements isotopiques. Les points rouges indiquent les produits de fission

Il reste à déduire de la mesure faisceau fermé le nombre de décroissances des fragments présents sur le cadre qui auront lieu durant la mesure avec faisceau suivante (a_{cadre}). Il est à noter que lorsque les noyaux d'intérêt ont une demi-vie courte devant le temps de mesure faisceau fermé, ils ont eu le temps de totalement décroître avant la mesure faisceau ouvert et on a $a_{cadre} \sim 0$ et $a_{faisceau} \sim a_{mes}$.

Les équations d'évolution (équations de Bateman) (voir eq 5.1) vont par la suite nous permettre de passer de l'activité mesurée au rendement.

$$\frac{dX(Z)}{dt} = k * Nf * Y_Z - \lambda_Z * X(Z) + \lambda_{Z-1} * X(Z-1) * P(Z-1 \rightarrow Z) \quad (5.1)$$

avec Y_Z le rendement cherché, Nf le taux de fission dans la cible, k une constante qui reprend l'efficacité géométrique et la transmission du spectromètre Lohengrin, $X(Z)$ le nombre d'atomes de l'élément Z , λ_Z la constante radioactive du noyau Z et $P(Z-1 \rightarrow Z)$ la probabilité que le noyau $Z-1$ décroisse sur le noyau Z . Le nombre de fissions n'étant

pas exactement connu, les rendements seront obtenus en relatif. On intègre donc dans la suite k et Nf dans les rendements par simplicité : $Y := k * Nf * Y$.

La résolution matricielle des équations de Bateman a été réalisée numériquement avec un code mis en place par F. Martin et détaillé dans sa thèse [MAR13]. La solution analytique pour le premier élément Z de la chaîne peut facilement se trouver :

$$a_{faisceau} = \int_0^T \lambda_Z * X(Z) dt = Y * [T_{mes} - \frac{1 - \exp(-\lambda_Z * T_{mes})}{\lambda_Z}]$$

ainsi $Y \propto a_{faisceau}$. Comme indiqué équation 5.1, les différents éléments d'une chaîne en masse sont liés par la décroissance β : le nombre de fragments $Z+1$ détectés correspond au nombre de fragments $Z+1$ produits directement par la fission auquel s'ajoute le nombre de fragments Z qui ont décréu sur $Z+1$. On a ainsi

$$Y(Z, A) = b * a(Z, A)$$

$$Y(Z + 1, A) = c * a(Z, A) + d * a(Z + 1, A)$$

où b, c, d correspondent aux coefficients obtenus lors de la résolution des équations. Par exemple ici :

$$b = 1 / [T_{mes} - (1 - \exp(-\lambda * T_{mes})) / \lambda]$$

Les rendements obtenus sont donc dépendants des activités des noyaux de Z plus faible. Prenons l'exemple du ^{140}Xe et du ^{140}Cs . L'activité mesurée du ^{140}Cs en fonction de la charge ionique présente deux bosses (figure 5.2 gauche). Lorsque l'on corrige la distribution de l'activité due au ^{140}Xe , on n'observe plus qu'une seule bosse très importante (figure 5.2 droite). La bosse mesurée autour de 21 provenait donc de la décroissance du ^{140}Xe sur le ^{140}Cs . Le ^{140}Cs possède deux états isomériques à basse énergie dont la durée de vie est de l'ordre de la nanoseconde. Ces deux états se dés excitent en émettant un électron. Une grande majorité des fragments ^{140}Cs va donc changer de charge ionique juste avant de rentrer dans le spectromètre Lohengrin. Il n'existe pas de tel état isomérique connu dans le ^{140}Xe et cela se vérifie sur sa distribution quasi gaussienne centrée sur la charge 21.

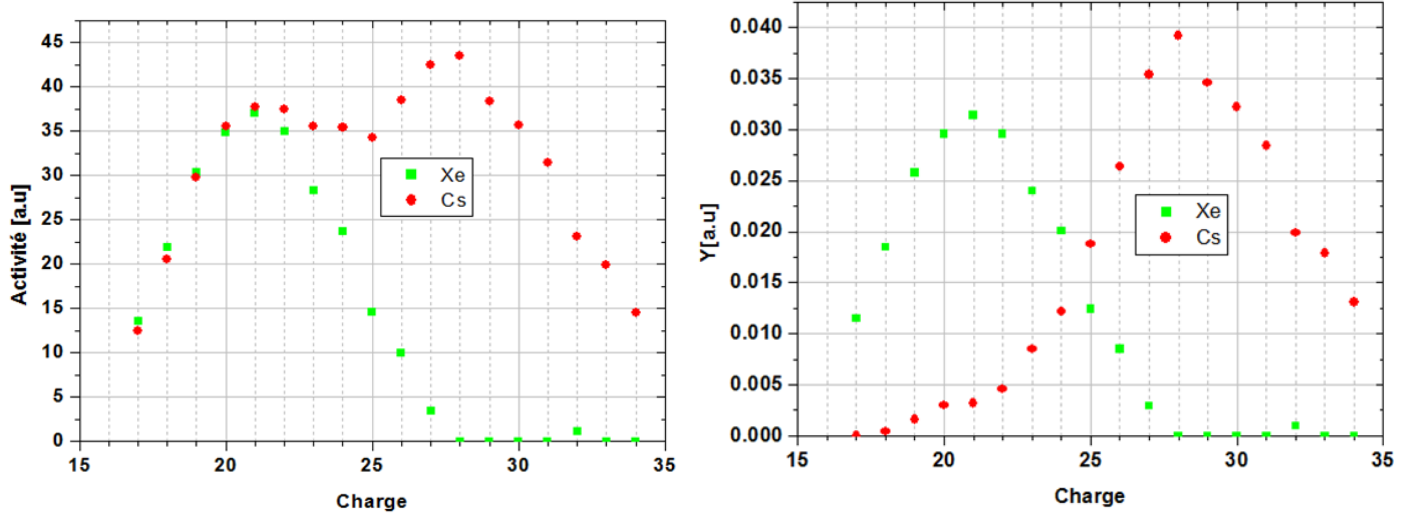


FIGURE 5.2 – Activité (gauche) et rendement (droite) du ^{140}Xe et ^{140}Cs en fonction de la charge ionique

Les temps de mesures du cadre et du faisceau sont en général du même ordre de grandeur et choisis en fonction de la demi-vie des noyaux de la chaîne d'intérêt. Ils peuvent aller de 15 min pour la masse 136 à 30 minutes pour la masse 138.

5.2 Stratégie d'analyse

La stratégie d'analyse des rendements isotopiques est similaire à celle des rendements en masse. Elle repose sur l'étude d'une distribution en énergie cinétique pour une charge ionique donnée et celle d'une distribution en charge à une énergie donnée. De part l'efficacité des détecteurs utilisés pour les mesures isotopiques, une statistique suffisante ne peut être obtenue en gardant la même sélectivité en énergie du spectromètre (cf § 3.4) que pour les mesures en masse.

Les mesures isotopiques nécessitent de passer de 2 shutters ouverts ($\Delta E=1\%$) à 9 shutters ouverts ($\Delta E=4.5\%$).

Le spectre en énergie étant très dégradé par la résolution en énergie, la précision sur la distribution en énergie des fragments mesurée par spectroscopie gamma est très faible. De plus, les aires des distributions sont très difficiles à extraire compte-tenu de la faible statistique. Ainsi, afin de réduire les incertitudes sur le rendement et économiser du temps de faisceau, on fait l'hypothèse d'une distribution en énergie identique pour les différentes charges nucléaires d'une même masse A ; la distribution en énergie considérée est donc celle obtenue avec la chambre d'ionisation. Cette hypothèse avait déjà été faite lors des thèses précédentes. Elle a été vérifiée dans le cadre de cette thèse.

Considérons par exemple la masse 139 qui a deux noyaux au rendement élevé (^{139}Xe et ^{139}Cs). Ces derniers ont une distribution en énergie très similaire à celle de la masse mesurée avec la chambre à ionisation comme illustré figure 5.3.

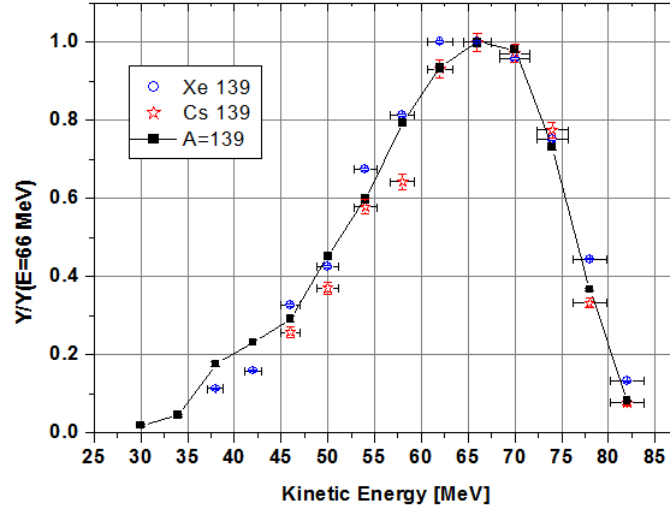


FIGURE 5.3 – Distribution en énergie cinétique de la masse 139 (obtenue avec la chambre d'ionisation) et de ses principaux éléments (^{139}Xe et ^{139}Cs) (obtenue par spectrométrie γ)

Si l'on appelle A_Q , A_E les aires des distributions mesurées avec la chambre d'ionisation i.e. ΔE très faible. Nous avons donc

$$A_{Q_{\text{mesuré}}} \approx A_Q * \Delta E$$

où $A_{Q_{\text{mesuré}}}$ correspond à l'aire de la distribution en charge mesurée avec une largeur en énergie ΔE Ainsi,

$$Y \approx A_Q * A_E / A_{Q,E}$$

devient dans le cas de la mesure des rendements isotopiques

$$Y \approx (A_{Q_{\text{mesuré}}} * A_E) / (\Delta E * A_{Q,E})$$

On définit $p(E)$ la probabilité de détecter des fragments avec l'énergie E. Elle s'écrit au point commun

$$p(E) = \frac{A_{Q,E} * \Delta E}{A_E}$$

nous avons donc

$$Y(A) \approx A_{Q_{\text{mesuré}}} / p(A, E)$$

Dans le cas des mesures des rendements isotopiques

$$Y(A, Z) \approx A_{Q_{\text{mesuré}}}(Z) / p(A, Z, E)$$

5.3 Automatisation du traitement des spectres gamma

Lors de cette analyse un grand effort a été fourni pour affiner la détermination du nombre de coups associés à une raie en énergie. Dans les thèses précédentes [BAI09] ($^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$) et [MAR13] ($^{233}\text{U}(n_{th}, f)$) l'analyse des

spectres était faite avec le code TV [FIT00]. L'analyste fixe une zone d'intérêt, il choisit les zones de bruit de fond puis les ajuste. Il fixe ensuite l'emplacement des différents pics qu'il voit puis les ajuste, en extrait l'aire et son erreur ; le bruit de fond étant fixé par avance. On a donc un bruit de fond qui dépend des zones choisies par l'analyste et un fit de pic séparé du fit de son bruit de fond.

Les résultats obtenus dépendent en général significativement de l'analyste lorsque le rapport signal sur bruit est faible mais sont cohérents lorsque ce dernier est élevé. De plus les incertitudes liées au taux de comptage dans la raie sont en général sous estimées. Ces ajustements manuels sont aussi très couteux en temps d'analyse. La mesure des éléments d'une masse correspond en moyenne à 2 raies * 3 noyaux * (faisceau+ bdf) * 12 charges ioniques = 180 ajustements.

Un autre point clé est la définition d'une activité nulle. Dans le cas d'une très faible activité gamma, cette activité peut être dissimulée par les fluctuations du bruit de fond. Lors des analyses précédentes, une activité nulle est décidée « à vue » et souvent exclue des résultats. Or une très faible activité gamma donne une limite supérieure au rendement.

Pour donner un ordre de grandeur de cette limite prenons une raie dont l'amplitude $A = x * \sigma_{bdf}$ avec σ_{bdf} l'écart-type du bruit de fond. Les raies ont en général un sigma σ_{raie} de 1 keV. Cette raie a donc une aire de $Aire_{raie} = A * \sigma_{raie} * \sqrt{2\pi} \approx 2.5 * x * \sigma_{bdf}$. Considérons à présent que l'on ne détecte un pic que si $x > 3$. Si on intègre maintenant en charge, en considérant que la distribution en q a une largeur de 3 unités, alors le nombre de fragments mesurés est

$$Aire_{scanQ} \approx Aire_{raie} * \sigma_{scanQ} * \sqrt{2\pi} = 2.5 * 3 * \sigma_{bdf} * 3 * 2.5 = 56.3 * \sigma_{bdf}$$

or pour le premier fragment de la chaîne

$$Y = \frac{N}{I_\gamma * eff} * [T_{mes} + (exp(-\lambda * T_{mes}) - 1)/\lambda]^{-1} \quad (5.2)$$

Pour une raie à 300 keV d'un noyau et un spectre typique : $\sigma_{bdf}=20$ coups, $eff=18$ et $T_{mes}=1200$ s, nous avons les rendements minimaux détectables présentés figure 5.5. Ces rendements dépendent très fortement de l'intensité de la raie gamma et dans une moindre mesure de leur durée de vie. La dépendance avec l'énergie de la raie est très faible (<30%) comme illustré figure 5.4.

Les noyaux à quelques exceptions près ont au moins une raie avec $I_\gamma \geq 10\%$. On devrait donc pouvoir détecter des rendements supérieurs à 0.05 %. Cependant, certains noyaux ont des intensités maximales de l'ordre de 1% on peut ainsi ne pas voir un rendement de l'ordre de 0.5 % (les rendements des noyaux les plus produits étant autour de 1 %). L'information apportée par le fait de « ne rien voir » ne doit donc plus être négligée.

Le programme de recherche, identification et caractérisation des pics repose sur la routine TSpectrum [MOR00] pour la recherche, les bases de données ENSDF pour l'identification et un ajustement multi-pic pour la caractérisation des pics et la détermination du bruit de fond.

5.3.1 Seuil des pics

Un paramètre essentiel de TSpectrum que l'on a voulu constant est le seuil d'un pic. Un pic ne peut être considéré comme tel que si le nombre de coups à l'énergie où on suppose un pic est supérieur à X% du nombre de coups du

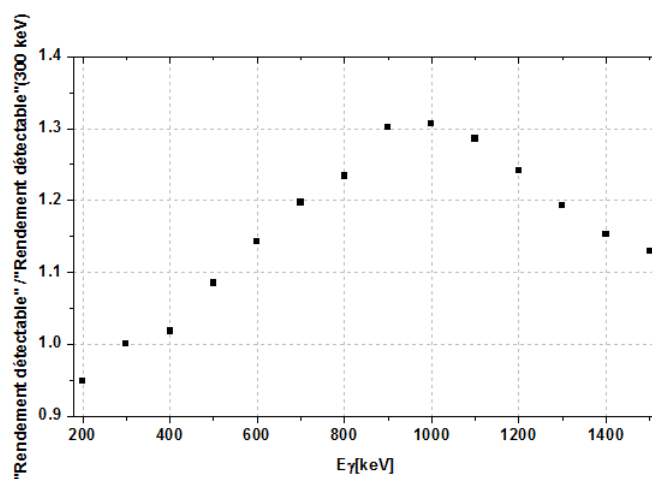


FIGURE 5.4 – Limite supérieure du rendement "détectable" (cf définition texte) en fonction de l'énergie de la raie

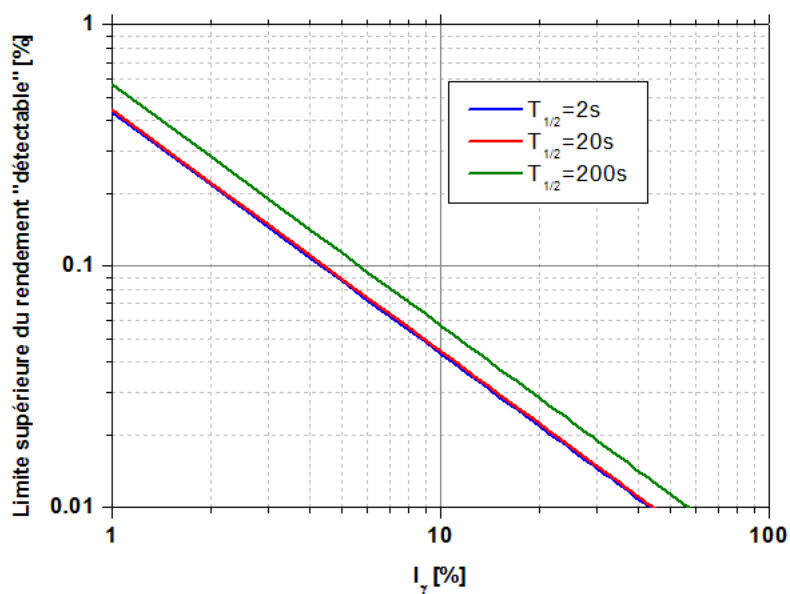


FIGURE 5.5 – Limite supérieure du rendement "détectable" (cf définition texte) en fonction de l'intensité I_γ d'une raie à 300 keV. Des noyaux de trois durées de vie différentes sont considérés

pic maximum dans le domaine défini. Un seuil trop faible conduit à considérer comme pic une simple fluctuation du bruit de fond et un seuil trop élevé conduit à ignorer des pics et ainsi augmenter artificiellement la valeur du bruit de fond conduisant par là même à diminuer le nombre de coups du pic d'intérêt. De plus, les raies d'intérêt ne sont pas toujours celles avec le plus haut taux de comptage, elles pourraient donc être considérées comme du bruit de fond alors qu'elles en sortent significativement. Dans nos spectres, un grand nombre de raies ont un nombre de coups inférieur à 1000, la fluctuation du bruit de fond étant autour de 20 coups, X ne doit pas être inférieure à 2. La valeur de 2% a été retenue pour les spectres avec faisceau. Lors des mesures réalisées hors faisceau (i.e. mesure de contamination du cadre) les taux de comptages dans les raies d'intérêt sont beaucoup plus faibles. La valeur a donc été choisie à 5%.

5.3.2 Identification des pics

L'analyse d'un spectre commence par la recherche des énergies centrales des pics, l'énergie obtenue est comparée à la liste des énergies des fragments de fission. Si on ne fixe aucune condition sur les fragments alors cette énergie pourrait d'après les bases de données disponibles actuellement être associée à cinq noyaux environ. Or comme indiqué précédemment une raie n'est visible que si son amplitude est assez grande par rapport au bruit de fond. Il faut donc d'après (eq 5.2) que le produit $Y * I_\gamma$ soit au-dessus d'un certain seuil. Le nombre de noyaux associables à cette raie se réduit autour de 2-3. De plus la mesure des fragments de fission est réalisée après sélection du spectromètre il y a donc une condition sur les masses qui permet en général d'associer cette raie à 1-2 noyaux et nous indique ainsi les contaminants potentiels.

Un exemple de spectre avec l'identification des raies principales est présenté figure 5.6. Les noyaux sont indiqués au format AAZZi (avec i=1 pour un isomère et 0 sinon). Le spectre correspond à la mesure 137/22/66 (A=137, q=22, E=66 MeV), un des contaminants est la masse 143 dont on voit clairement le Ba (143560) apparaitre. Les raies des noyaux de la masse 137 sont indiquées par des étoiles. Lorsqu'il y a la détection d'un pic mais qu'aucun noyau remplissant les critères de sélection cités précédemment n'a pu y être associé, alors le chiffre -1 est indiqué.

ionique. Seuls les pics « principaux » du spectre complet sont répertoriés, il peut donc arriver qu'un pic ne soit pas listé ici alors qu'il est toujours présent car les pics voisins sont devenus trop importants (cf seuil TSpectrum). Ce phénomène arrive en général pour les charges à fort rendement. Le parfait exemple est la raie à 1460 keV qui est présente en permanence mais qui n'apparaît plus pour 21-22 et 24-25.

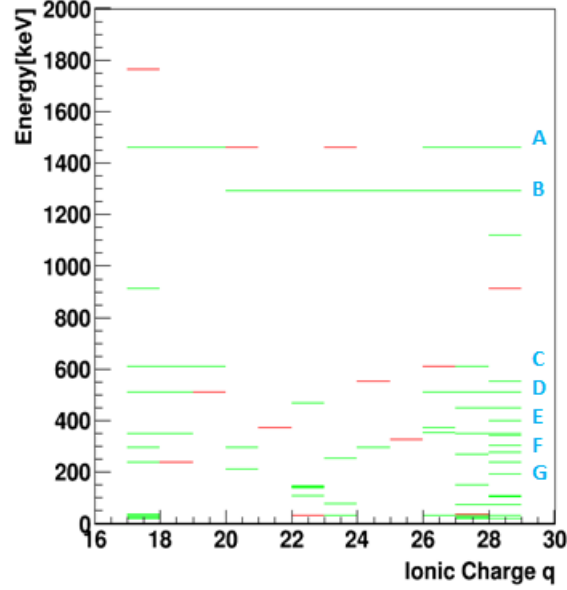


FIGURE 5.7 – Liste des raies non attribuées pour un scan en charge de la masse 136

	Energie de la raie	Noyau
A	1460 keV	^{40}K
B	1294 keV	^{41}Ar
C	609 keV	^{214}Bi
D	511 keV	$e^+ - e^-$
E	352 keV	^{214}Pb
F	297 keV	^{214}Pb
G	238 keV	^{212}Pb

TABLE 5.2 – Les énergies récurrentes et les noyaux associés à la liste des raies non attribuées pour un scan en charge de la masse 136

Les raies identifiées dans cette analyse, figure 5.7, correspondent uniquement à des raies naturelles (tableau 5.2), aucune raie appartenant à un fragment n'a été détectée. Compte tenu du temps de mesure très réduit, les masses mesurées ont été choisies pour la connaissance de leurs raies, il est donc logique de ne pas observer de nouvelles raies.

5.3.4 Détermination du domaine du bruit de fond

Afin de déterminer l'influence de la région d'intérêt et la qualité de l'ajustement, sept raies appartenant à trois différentes masses (141, 140 et 139), de taux de comptage très différents (la raie à 805 keV à un taux de comptage

15 fois inférieur à celui de la raie à 219 keV) et couvrant tout le domaine en énergie (190 keV-1283 keV) ont été étudiés. L'ajustement du bruit de fond est une fonction linéaire sur un domaine centré sur la raie d'intérêt de demi-largeur égale à 20 keV. L'influence de la valeur choisie pour la demi-largeur a été étudiée. Les fits des raies d'intérêt sont représentés figure 5.8. Comme on peut le voir les ajustements sont de très bonne qualité : le seuil choisi dans TSpectrum (2%) et la demi largeur de 20 keV semblent satisfaisants.

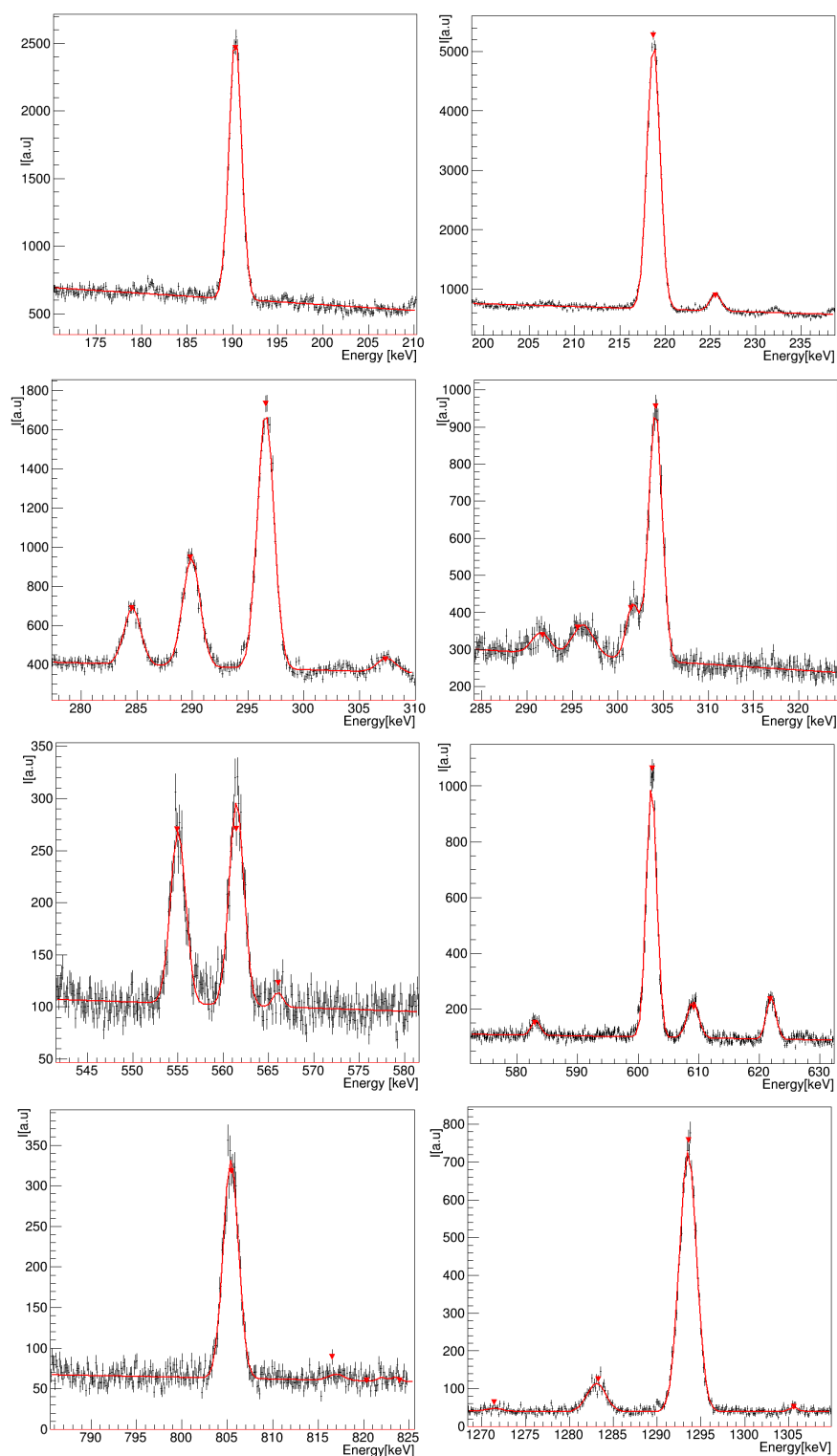


FIGURE 5.8 – Exemples de fits des raies gamma (190 keV, 219 keV, 297 keV, 304 keV, 555 keV, 602 keV, 805 keV, 1283 keV). les marqueurs rouges correspondent à l'emplacement des pics obtenu initialement par TSpectrum avec un seuil de 2%

Les taux de comptage obtenus pour différentes demi-largeurs (10 keV, 20 keV, 30 keV) sont compatibles dans les barres d'erreurs sans aucune systématique apparente comme illustré figure 5.9.

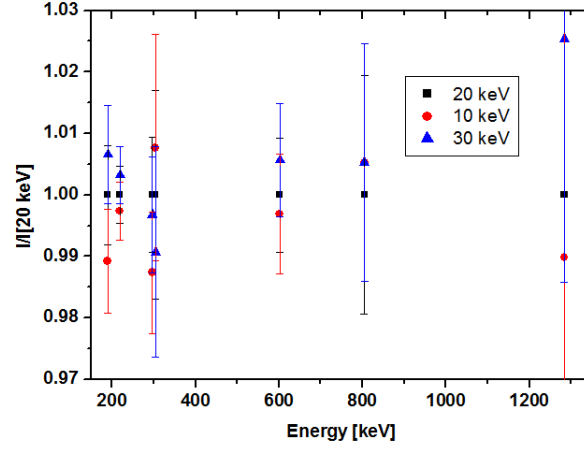


FIGURE 5.9 – Aire des pics obtenue pour différentes demi-largeurs de la zone d'étude pour 7 raies d'intérêt. Cette aire a été normalisée à l'aire obtenue pour une demi-largeur de 20 keV

5.4 Calibration en énergie et en efficacité

5.4.1 Calibration en énergie

La calibration en énergie des 8 cristaux a été réalisée au moyen d'une source d' ^{152}Eu placée proche d'un détecteur Ge. Un exemple de la somme des huit spectres est présenté figure 5.10. Une calibration linéaire entre le numéro du canal et l'énergie a été réalisée. La résolution en fonction de l'énergie est représentée figure 5.11.

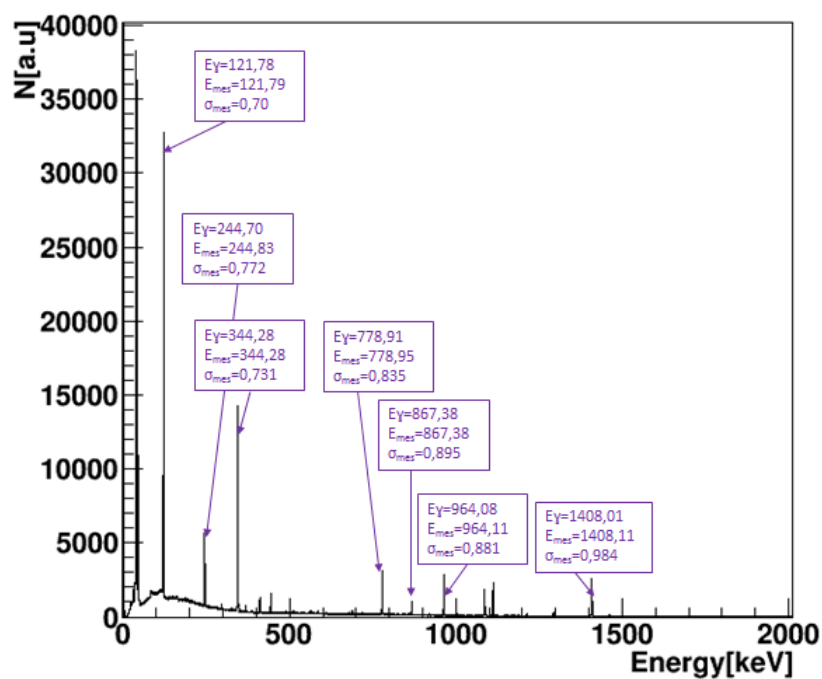


FIGURE 5.10 – Spectre en énergie d’une source d’ ^{152}Eu . E_γ correspond à l’énergie ENSDF de la raie. E_{mes} correspond à l’énergie de la raie et σ_{mes} à sa largeur

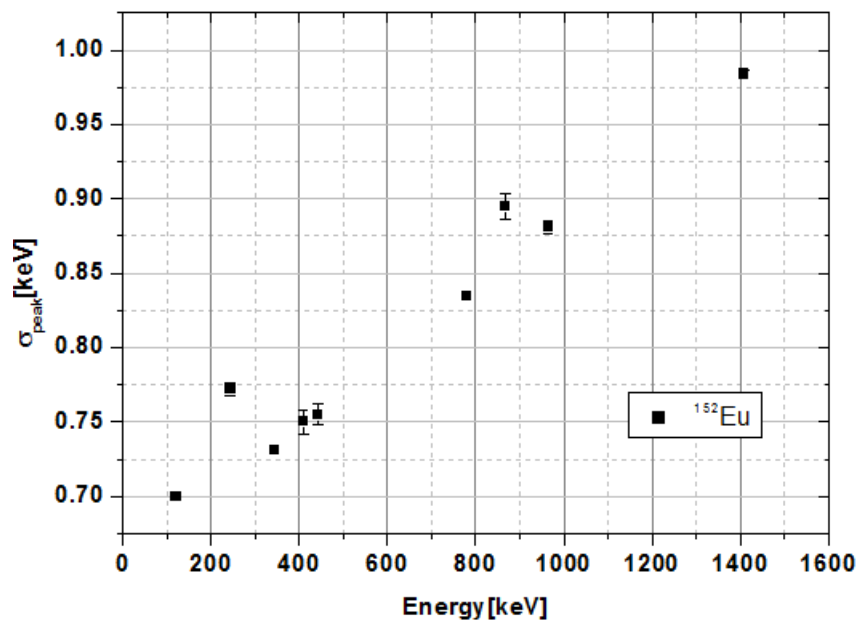


FIGURE 5.11 – Largeur des raies d’une source d’ ^{152}Eu

5.4.2 Calibration en efficacité

Le positionnement d'une source au point d'implantation des fragments du faisceau n'ayant pas été possible, la calibration en efficacité a été réalisée avec le faisceau de Lohengrin réglé sur la masse 96. Le noyau retenu devait répondre aux critères suivants :

- Plusieurs raies gamma décrivant la gamme des énergies de décroissance des fragments [190 keV-2020 keV]
- Un produit $Y * I_\gamma$ assez élevé pour être détecté avec une statistique suffisante.

Deux mesures de calibration en efficacité en utilisant le même réglage du spectromètre Lohengrin ont été réalisées avec le ^{96m}Y au début et à la fin de la mesure. Ce dernier est un des rares noyaux à répondre au premier critère cité ci-dessus.

La position des détecteurs étant restée inchangée, le nombre de coups mesurés lors de la première $N_1(q, E)$ (resp. seconde $N_2(q, E)$) mesure doit être proportionnel au nombre de fissions à l'instant 1, $N_f(t_1)$ (resp. instant 2, $N_f(t_2)$).

La figure 5.12 représente le rapport entre le nombre de coups mesurés le 18 mai (mesure 1) et celui mesuré le 23 mai (mesure 2).

Comme on peut le voir ce rapport est quasiment indépendant de la raie choisie sauf pour celle à 147keV. Le rapport attendu correspond à

$$\frac{N_1(q, E)}{N_2(q, E)} = \frac{N_f(t_1)}{N_f(t_2)} * \frac{Y(q, E, t_1)}{Y(q, E, t_2)}$$

ce qui dans le cas d'une distribution en énergie et en charge inchangée i.e $Y(q, E, t_1) = Y(q, E, t_2)$ correspond à

$$\frac{N_1(q, E)}{N_2(q, E)} = \frac{N_f(t_1)}{N_f(t_2)}$$

Dans notre cas, nous avons

$$< \frac{N_1(q, E)}{N_2(q, E)} > (\text{mesuré par spectrometrie gamma hors 147keV}) = 1.14 \pm 0.01(\text{stat})$$

$$\frac{N_f(t_1)}{N_f(t_2)} (\text{mesuré par Chambre ionisation}) = 1.16 \pm 0.01(\text{stat})$$

Le rapport $< \frac{N_1(q, E)}{N_2(q, E)} >$ mesuré en excluant la raie à 147 keV est en accord avec le rapport attendu $\frac{N_f(t_1)}{N_f(t_2)}$ obtenu via les mesures du burn up dans le cas d'une faible variation de la distribution en énergie et en charge au cours du temps.

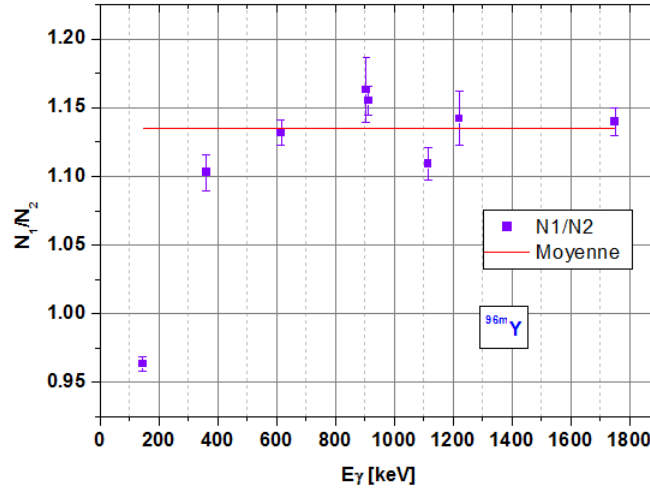


FIGURE 5.12 – Rapport entre le nombre de coups de la première mesure 96/20/90 et la seconde pour les raies caractéristiques ($I_\gamma > 10$) du ^{96m}Y

La raie à 147 keV présentant un rapport anormal, elle a été étudiée en détail. Le spectromètre réglé sur 96/20/90 permet également la présence de la masse 105 dans le faisceau (96/20=105/22). Or le ^{105}Mo possède une raie à 147.8 keV qui pourrait contaminer notre raie d'intérêt à 146.7 keV. Une augmentation de la quantité de ^{105}Mo entre les deux mesures entraîne une augmentation de $N_2(q, E)$ mesuré donc un rapport $\frac{N_1(q, E)}{N_2(q, E)}(E_\gamma = 147\text{keV})$ trop faible comme observé figure 5.12. Par décroissance, une augmentation de la quantité de ^{105}Mo mesurée implique également une augmentation de ^{105}Tc comme observé figure 5.13 raie à 143 keV et 160 keV. Cette augmentation est due à une modification de la distribution en énergie.

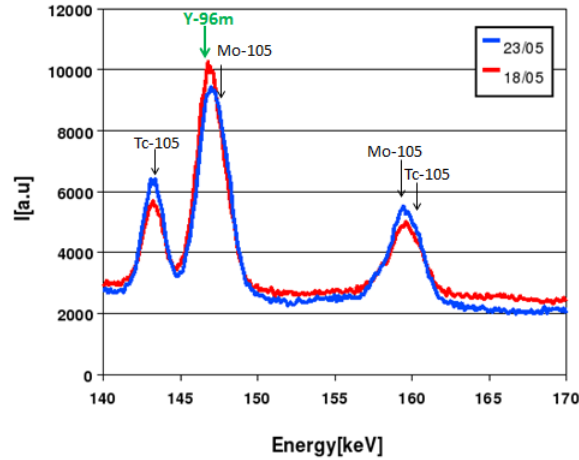


FIGURE 5.13 – Spectre en énergie des deux mesures 96/20/90, l'énergie des noyaux contributeurs est indiquée par une flèche

La contamination de la raie à 147 keV par la masse 105 ayant été confirmée, elle a finalement été éliminée de la calibration.

Le noyau ^{96m}Y bien que décrivant l'ensemble de la gamme en énergie présente des intensités I_γ incompatibles dans les barres d'erreur entre les différentes bases de données comme indiqué table 5.3. De plus les intensités données par la base ENSDF comme les données expérimentales dont elles sont issues ne comportent pas de barres d'erreur.

Afin de déterminer quelle base de données utiliser et puisque les données expérimentales ne disposent pas d'incertitudes, une incertitude systématique de 5% a été ajoutée dans l'ajustement de l'efficacité pour ENSDF.

$E_\gamma[\text{keV}]$	JEFF 3.1.1	ENSDF	Difference [%]	Err JEFF (%)
147	36,5	34,1	-7,0	7,4
362	28,5	22,5	-26,7	18,6
617	58	55	-5,5	4,7
631	10,5	7,5	-40,0	17,1
906	27,7	20,2	-37,1	15,9
914	59,7	59	-1,2	4,5
1107	47	48,1	2,3	2,3
1223	33,4	26,8	-24,6	10,5
1751	87,8	88	0,2	0,9

TABLE 5.3 – Intensité des raies du ^{96m}Y pour différentes bases de données

La figure 5.14 représente les ajustements de l'efficacité pour les deux bases de données. Les intensités ENSDF semblent les plus cohérentes.

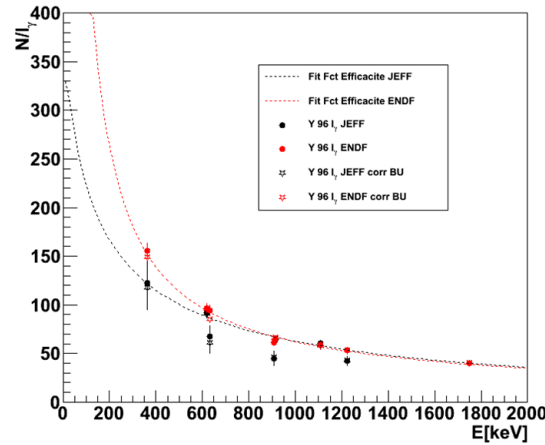


FIGURE 5.14 – Activité des raies gamma de l' ^{96m}Y en fonction de l'énergie de la raie pour 2 bases de données ENSDF en noir et JEFF en rouge. Les cercles correspondent à la première mesure et les étoiles correspondent à la seconde mesure corrigée du nombre de fissions

Afin de valider cette courbe en énergie notamment en dessus de 362 keV, deux autres noyaux (^{138}Xe , ^{141}Ba) produits sous faisceau ont été utilisés. Pour rappel,

$$a_{mes} = \frac{N_\gamma * 100}{\text{Efficacité}(E_\gamma) * I(E_\gamma, Z, A)[\%]}$$

On calcule a_{mes} pour chaque raie du noyau en considérant l'efficacité trouvée pour chacune des deux bases, on extrait la moyenne $\bar{a}_{autre\ noyau}$ puis on trace (cf figure 5.15)

$$\left(\frac{N\gamma * 100}{I(E\gamma, Z, A)[\%]}\right)_{autre\ noyau} * \frac{a_{96Y}}{\bar{a}_{autre\ noyau}}$$

qui doit correspondre à l'ajustement de $\left(\frac{N\gamma * 100}{I(E\gamma, Z, A)[\%]}\right)_{Y96m}$ en fonction de $E\gamma$ si la dépendance de l'efficacité avec l'énergie est correcte.

Ici encore, l'ajustement avec les données extraites de ENSDF semble être le plus consistant et la courbe d'efficacité en énergie trouvée avec ^{96m}Y reproduit bien les données du ^{138}Xe et du ^{141}Ba en dessus de 400 keV.

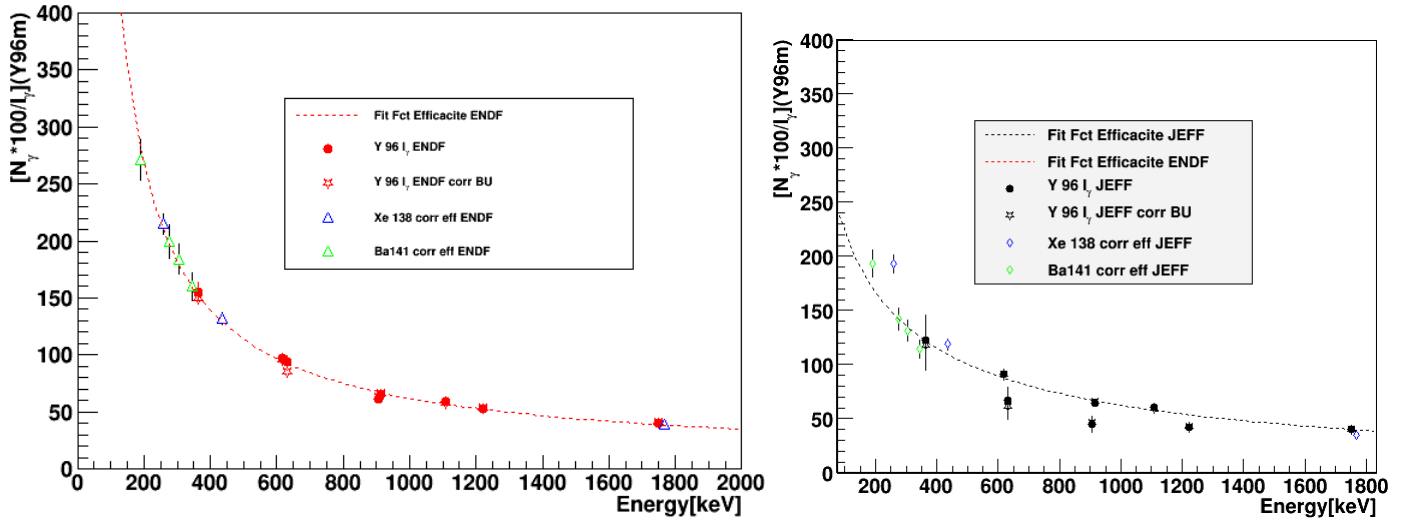


FIGURE 5.15 – Courbe d'efficacité obtenue pour différents noyaux avec l'ajustement de ^{96m}Y selon les données ENSDF à gauche et JEFF à droite

Les incertitudes des paramètres sont très dépendantes de l'erreur sur les intensités gamma. Ces dernières étant inconnues, elles ont été considérées comme égales en relatif pour toutes les raies.

La valeur de l'incertitude relative associée a été déterminée en égalant le $\chi^2_{réduit}$ à 1. L'incertitude de 5% obtenue semble cohérente avec les valeurs des incertitudes obtenues pour d'autres noyaux.

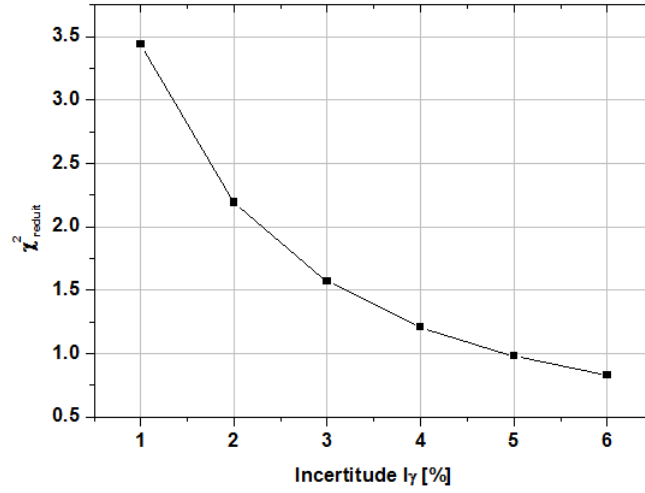


FIGURE 5.16 – $\chi^2_{\text{réduit}}$ en fonction de l'incertitude relative sur les données de décroissance I_γ de l' ^{96m}Y

L'efficacité a été ajustée avec :

$$\ln(\text{efficacité}) = \ln(a) + b \cdot \ln(E) + c(\ln(E))^2 \text{ avec } a = 1.1710^5 \pm 4.210^4; b = -1.33 \pm 0.12; c = 3.4610^{-2} \pm 1.0510^{-2}.$$

L'incertitude relative sur l'efficacité obtenue (représentée figure 5.17) est faible et de l'ordre de 1-3% dans la zone d'intérêt de 200-2 MeV. La forme d'efficacité utilisée ne permet pas de décrire correctement l'efficacité en dessous de 200 keV [MAR13].

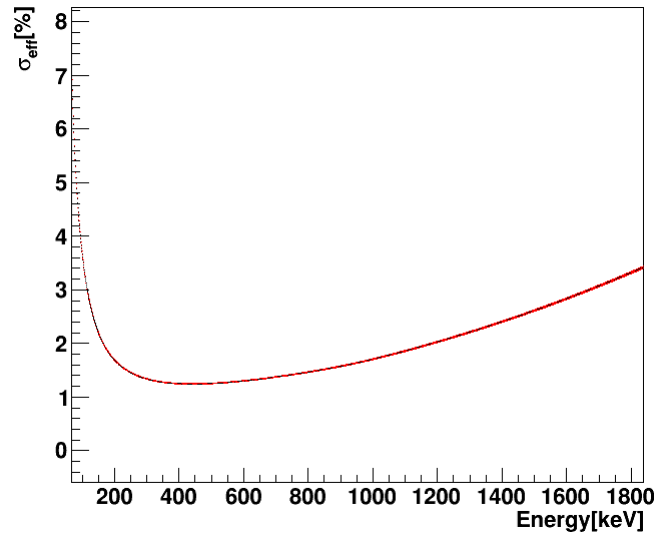


FIGURE 5.17 – Incertitude relative sur l'efficacité obtenue après ajustement de l'activité de l' ^{96m}Y en tenant compte des corrélations entre les paramètres

5.5 Problèmes liés à la spectrométrie gamma à Lohengrin

Les principaux problèmes rencontrés lors de l'obtention des rendements isotopiques sont de deux natures : les problèmes liés à la méconnaissance des données de décroissance (I_γ) et les problèmes de contamination de raie. Ces derniers sont propres à chaque réglage du spectromètre et à chaque expérience.

5.5.1 L'incohérence de certaines données de décroissance

Le rendement Y du premier noyau de la chaîne lorsque $T_{1/2} \ll T_{mesure}$ i.e lorsque la correction du cadre n'est pas nécessaire (cf equation 5.2) est directement proportionnel à $1/I_\gamma$.

On comprend donc l'importance de la précision des données de décroissance représentées ici par I_γ dans le calcul des rendements isotopiques. Chaque noyau possède plusieurs raies gamma que l'on mesure simultanément. De manière évidente, le calcul du rendement ne doit pas dépendre de la raie gamma utilisée pour réaliser ce calcul. La formule 5.2 donne donc pour deux raies gamma du même noyau :

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{I_\gamma^1 * Eff(E_\gamma^1)}{I_\gamma^2 * Eff(E_\gamma^2)}$$

La figure 5.18 illustre les rapports $\frac{N_1}{N_2}$ pour 4 raies du ^{136}Te où on suspecte une erreur dans les données de décroissance. La figure 5.19 illustre également le rapport de trois raies du ^{138}Xe où aucune erreur dans les données de décroissance n'est suspectée.

Les rapports des raies du ^{138}Xe mesurés correspondent aux valeurs attendues, sauf pour $q=23$, dont le cas sera détaillé par la suite. Pour le ^{136}Te , les rapports mesurés ne correspondent pas du tout aux valeurs attendues, les intensités relatives des raies sont donc fausses. Le rendement du $^{136}Te(Z=52)$ ne pourra pas être extrait nous privant également de l'obtention de celui de l' $^{136gs}I(Z=53)$.

Lors de la mesure des rendements isotopiques de l' ^{233}U , les mêmes données de décroissance ont été utilisées, ces incohérentes devaient déjà être présentes. La figure 5.20 illustre l'activité obtenue pour le ^{136}Te en fonction de la raie considérée. On observe de grandes disparités qui traduisent un problème de base de données.

Le rapport des taux de comptage ne dépendant que du rapport des intensités, l'intensité absolue des raies ne peut pas être vérifiée. Cette dernière est en général mesurée beaucoup plus difficilement elle est donc souvent manquante.

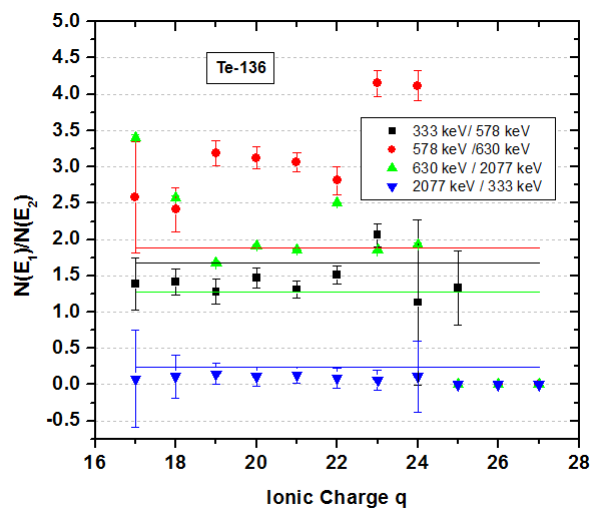


FIGURE 5.18 – Rapport entre le nombre de coups pour 4 raies du ^{136}Te . Les valeurs attendues d'après les bases de données sont indiquées par des traits et les valeurs expérimentales par des points

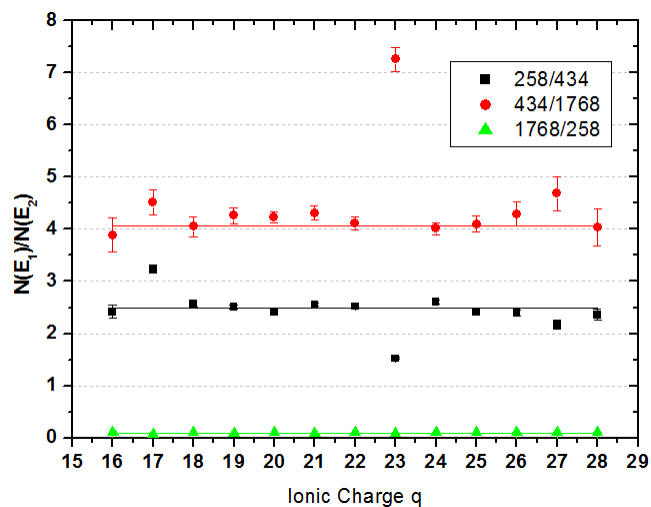


FIGURE 5.19 – Rapport entre le nombre de coups pour 3 raies du ^{138}Xe . Les valeurs attendues d'après les bases de données sont indiquées par des traits et les valeurs expérimentales par des points

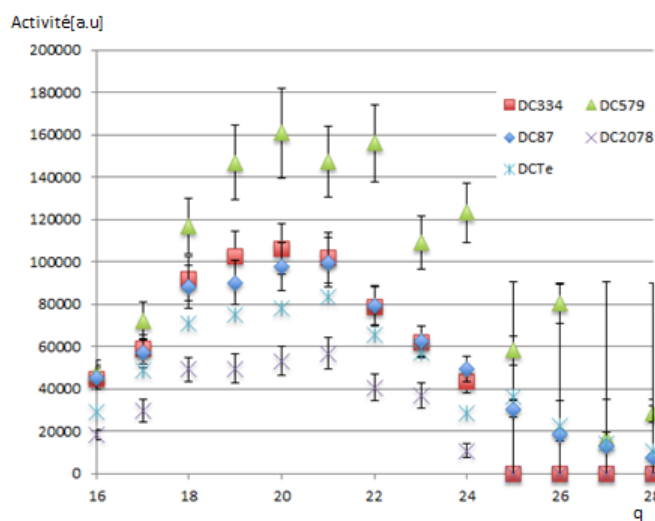


FIGURE 5.20 – Activité du ^{136}Te tenant compte de l'intensité gamma et de l'efficacité en fonction de la charge ionique pour les différentes raies gamma étudiées. Les croix bleues (DCTe) correspondent à l'activité moyenne pondérée qui est celle retenue dans l'extraction des rendements de l' ^{233}U [MAR13]

5.5.2 La présence de contaminants

Revenons plus en détail au cas de la charge $q=23$ du ^{138}Xe . Le nombre de coups mesuré dans la raie centrée en 434 keV semble trop important. Un autre noyau doit donc contribuer à peupler cette raie : cet autre noyau est appelé contaminant. Une contamination peut se repérer de trois manières différentes qui peuvent être complémentaires.

A/ L'activité associée à une raie est différente des activités des autres raies de ce même noyau. Le cas des raies à 258 keV, 397 keV et 434 keV du ^{138}Xe présentées figure 5.21 illustrent ce phénomène. On peut voir une surestimation de l'activité pour la raie à 397 keV à partir de $q=21$ et une contamination de la raie à 434 keV pour $q=23$.

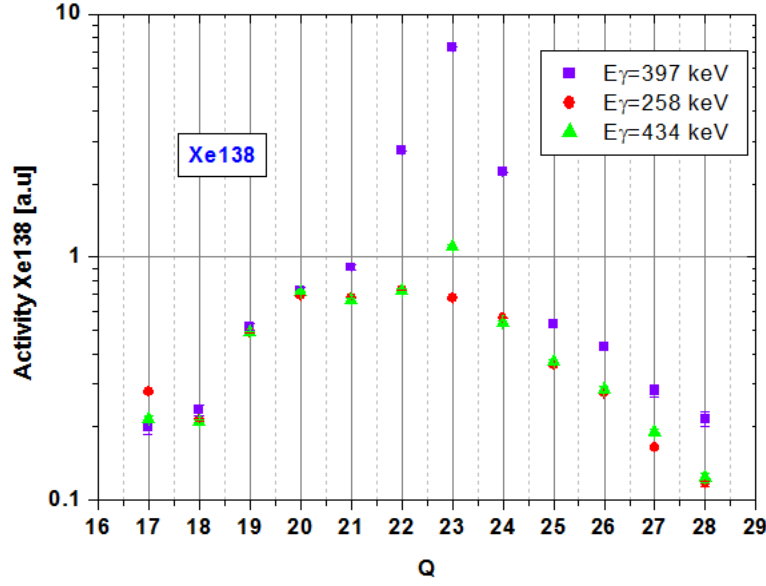


FIGURE 5.21 – Activité calculée à partir du nombre de coups associés à 3 raies gamma du ^{138}Xe en fonction de la charge

B/ Pour certains noyaux une seule raie est mesurable, cette comparaison n'est donc pas possible. Une comparaison des caractéristiques indépendantes de la charge ionique i.e. l'énergie de la raie et de sa largeur est donc effectuée. De par la sélection du spectromètre, les masses des noyaux qui s'implantent sur la bande évoluent avec la charge, exceptée bien sûr la masse d'intérêt. Les contaminants ne peuvent donc pas être les mêmes pour toutes les charges. Les caractéristiques les plus récurrentes sont donc considérées comme les caractéristiques de référence.

Les caractéristiques des trois raies mentionnées précédemment sont représentées figure 5.22. La raie à 258 keV qui n'est pas contaminée présente une énergie mesurée qui reste constante et conforme à la valeur donnée par la base de donnée ENSDF. Sa largeur mesurée varie faiblement i.e entre 0.67 et 0.73 keV.

La raie à 434 keV qui, d'après les activités mesurées est contaminée pour $q=23$, présente une énergie mesurée constante pour toutes les charges sauf $q=23$ où son énergie mesurée est inférieure de 0.3 keV et où la largeur est également plus élevée.

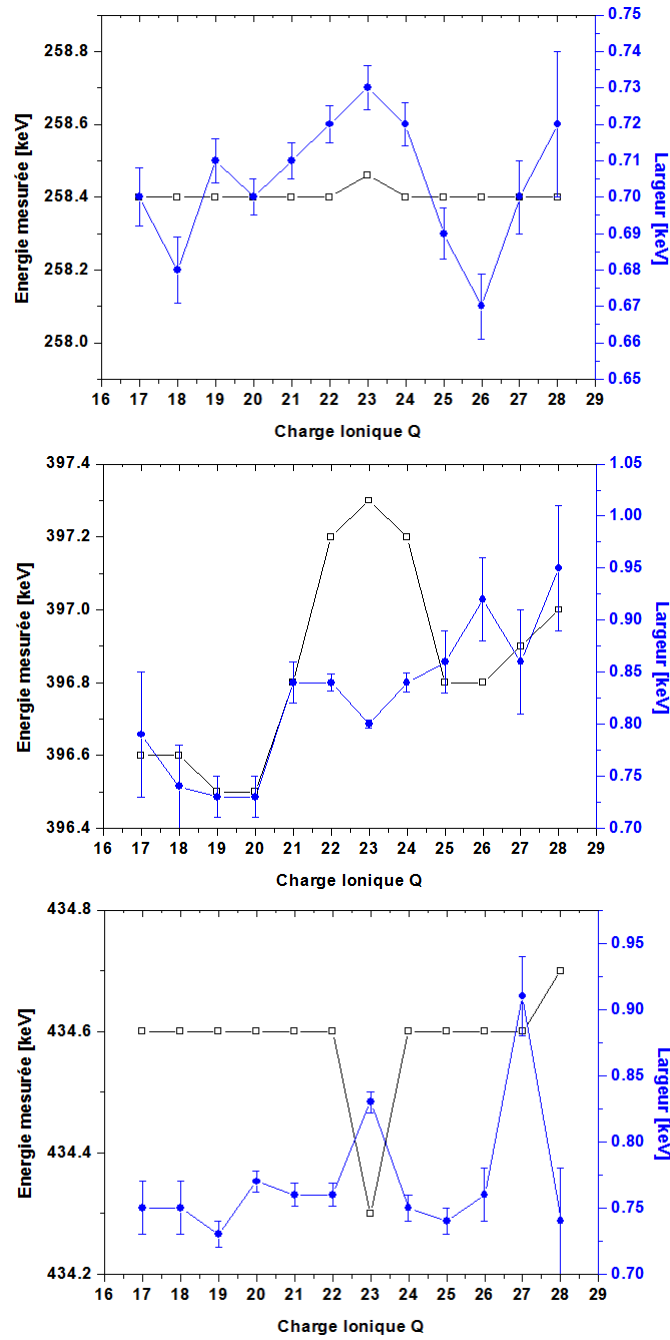


FIGURE 5.22 – Caractéristiques (énergie mesurée (axe gauche) et largeur de la raie (axe droit)) pour les raies à 258.4 keV (haut), 397 keV (milieu) et 434.6 keV (bas) du ^{138}Xe en fonction de la charge ionique

La raie à 397 keV du ^{138}Xe est clairement contaminée d'après son activité, cette contamination se retrouve également dans ses caractéristiques : l'énergie mesurée passe de 396.5 à 397.3 keV comme indiqué figure 5.22. L'identification des raies mise en place lors que cette analyse et qui tient compte de la sélection du spectromètre indique que le ^{144}La est un contaminant possible. Ce dernier possède une raie à 397.4 keV qui est en accord avec

l'augmentation de l'énergie mesurée pour les charges 22 à 24.

C/ Lorsque la demi-vie du contaminant est beaucoup plus élevée que celle du noyau d'intérêt ($T_{1/2}(\text{contamination}) \gg T_{1/2}(\text{noyau d'intérêt})$) et que la demi-vie du contaminant est inférieure à la durée de mesure hors faisceau ($T_{1/2}(\text{contamination}) \leq T_{mes}(bdf)$) alors la mesure du bruit peut nous renseigner sur la présence d'un contaminant. En effet si la demi-vie d'un noyau est très faible devant la durée de la mesure hors faisceau $T_{1/2} \ll T_{mes}(bdf)$ alors l'activité intégrée du noyau sera très faible ($N_{bdf} \sim 0$) ce qui n'est plus le cas lorsque la demi-vie est plus élevée ($N_{bdf} \neq 0$). En effet

$$\text{Activité} \propto 1/(T_{1/2}) * [1 - \exp(-0.693 * T_{mes}(bdf)/T_{1/2})]$$

donc la présence dans une mesure de bruit de fond d'un taux de comptage non négligeable pour un noyau d'intérêt de vie courte doit nous alerter sur la présence d'un contaminant à durée de vie plus longue.

La raie à 397 keV va servir d'exemple à la méthode permettant de déterminer l'importance de la contamination et de corriger l'activité du noyau d'intérêt lorsque ce dernier ne possède qu'une raie exploitable. Elle nécessite cependant l'identification du contaminant et que ce dernier possède plusieurs raies. Prenons par exemple la raie à 397 keV et son contaminant le ^{144}La . La figure 5.23 illustre les activités trouvées pour deux charges : q=22 où la raie est contaminée et q=20 où la raie n'est pas a priori contaminée. Les raies du contaminant (en excluant celle à 397 keV) nous donnent son activité. On a par définition si le ^{144}La est le seul contaminant :

$$N_{mesuré} = N(^{138}\text{Xe}) + N(^{144}\text{La})$$

Or

$$a = \frac{N}{I * eff}$$

Donc

$$N_{mesure} = a(^{138}\text{Xe}) * I(^{138}\text{Xe}) * eff + a(^{144}\text{La}) * I(^{144}\text{La}) * eff$$

Donc

$$a(^{138}\text{Xe}) = \frac{N_{mesure} - [a(^{144}\text{La}) * I(^{144}\text{La}) * eff]}{I(^{138}\text{Xe}) * eff};$$

Dans notre cas : $N_{mesure} = 2415$ coups, $a(^{144}\text{La}) = 0.144 \pm 0.015$ (moyenne des 3 autres raies), $I(^{144}\text{La}) = 94.3$, $I(^{138}\text{Xe}) = 6.3$, $eff = 139.9$ on obtient donc $a(^{138}\text{Xe}) = 0.58 \pm 0.22$

Cette valeur est cohérente avec l'activité moyenne des autres raies $\bar{a}(^{138}\text{Xe})(\text{autres raies}) = 0.70$. Toutefois l'incertitude est très grande (38%) car la contamination est très importante. En fait le nombre de coups issus de la décroissance du ^{138}Xe ne représente que 25% de l'aire de la raie ($N(^{138}\text{Xe}) = 0.25$). Le risque de très forte contamination est en seconde approximation donné par :

$$N = Y(A, q, E) * (I_{\gamma} * eff) * \lambda * T_{mes}^2$$

puisque $T_{1/2}(\text{noyau d'intérêt}) \ll T_{mes}$ afin d'obtenir une statistique suffisante au niveau du nombre de coups. On

obtient donc

$$\frac{N(\text{contaminant})}{N(\text{noyau interet})} = \frac{I(\text{contaminant})}{I(\text{noyau interet})} * \frac{Y(\text{contaminant})}{Y(\text{noyau interet})} * \frac{T_{1/2}(\text{noyau interet})}{T_{1/2}(\text{contaminant})}$$

Les contaminations sont donc très importantes lorsque $T_{1/2}(\text{contaminant}) \ll T_{1/2}(\text{noyau d'interet})$ et/ou $I(\text{noyau d'interet}) \ll I(\text{contaminant})$.

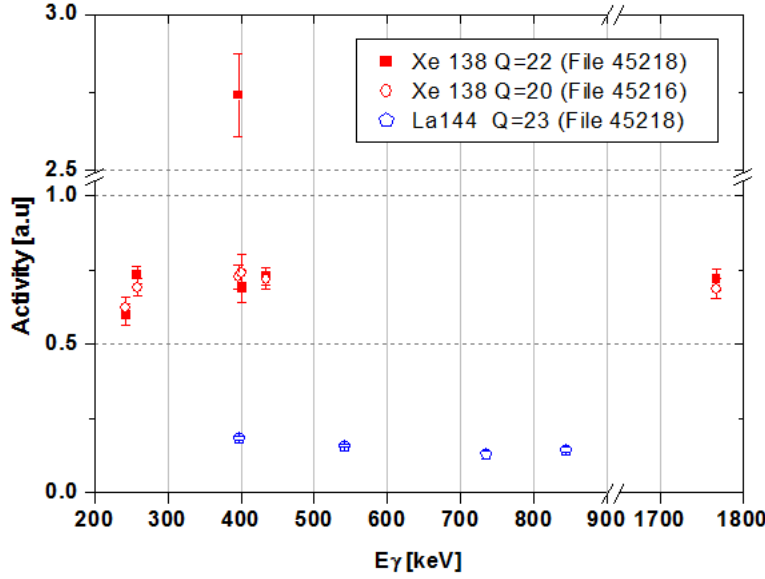


FIGURE 5.23 – Activité du ^{138}Xe et du ^{144}La en fonction de la raie gamma utilisée pour réaliser le calcul

5.6 Raies utilisées dans l'analyse

Les raies gamma retenues pour l'analyse sont présentées tableau 5.4. La majorité des distributions en charge sont gaussiennes, voire présentent deux gaussiennes, cependant certaines distributions en charge présentent, même après traitement, quelques irrégularités. Les deux irrégularités majeures sont la contamination légère d'une charge et un rendement après correction des équations d'évolution trop faible ou irrégulier qui ne permet pas l'obtention d'une forme de distribution en charge correcte comme pour le ^{138}Cs . L'ensemble des distributions est disponible en annexe B.

Noyau	E_γ	I_γ	σ_{I_γ}	I_γ	σ_{I_γ}	Commentaire
	(keV)	(JEFF)	(JEFF)	(NNDC)	(NNDC)	
^{134}Sb	1279.01	1.1		1.1		I_γ beaucoup trop faible
^{134m}Sb	1279.01			100	5	
^{134}Te	210.5			22.7	1.3	Très fréquente contamination
	278.0			21.2	1.1	Contamination par le Ba141 pour q=19
^{134m}I	272	79.1	3.0	79		
^{134}I	847	95.4	1.9	96	3	Problème du nombre de coups entre charges paires et impaires (déjà observé sur l' ^{233}U)
^{136}Te	631					
^{136m}I	369			17.5	0.9	
^{136}I	1321	24.8	1.8	24.8	1.2	
^{137}I	1218	13.1	0.9	12.8		
^{137}Xe	455	31.2	0.5	31		
^{138}I	589	54	6.3	56	5	Présence d'une très grande contribution de nano seconde isomère
^{138}Xe	258	31.5	1.3	31.5	1.3	
^{138m}Cs	192	15.4	1.7	15.4	1.7	Dispersion des points pour l'ajustement
^{138}Cs	1436					Commune avec l'isomère ; pas de spectre en charge acceptable
^{139}Xe	219	56.0	6.0	56		
^{139}Cs	1283	7.1	1.5	7.1	1.4	
^{139}Ba	166	23.76	0.25			
^{140}I	376			98.0		Seuls les 2/3 du spectre en charge ressortent du bruit de fond
^{140}Xe	805	20	2	20		
^{140}Cs	602	52.5	16	53	3	Présence d'une très grande contribution de nano seconde isomère
^{141}Xe	909			24		
^{141}Cs	561	4	0.3	4.7	0.4	
^{141}Ba	190	46	3.3	46	3	Seuls les 2/3 du spectre en charge ont été mesurés
^{142}Cs	359	27.2	2.7	27	3	
^{142}Ba	255	20.5	0.8	20.7	0.8	
^{142}La	895	8.3	0.2	8.3	0.2	Le spectre n'a pas pu être ajusté, la somme des bins a été considérée.

TABLE 5.4 – Énergie et intensité des raies gamma utilisées dans l'analyse des rendements isotopiques. Si le spectre en énergie présente des « irrégularités », ces dernières sont spécifiées dans la dernière colonne.

5.7 Traitement des incertitudes

Le traitement des incertitudes est effectué à l'aide d'un calcul Monte-Carlo.

Les incertitudes sont de trois origines : l'efficacité, les données de décroissance (I_γ), la statistique. La courbe

Pour deux noyaux Z_i avec une raie à l'énergie E_i avec une intensité I_i et une aire N_i

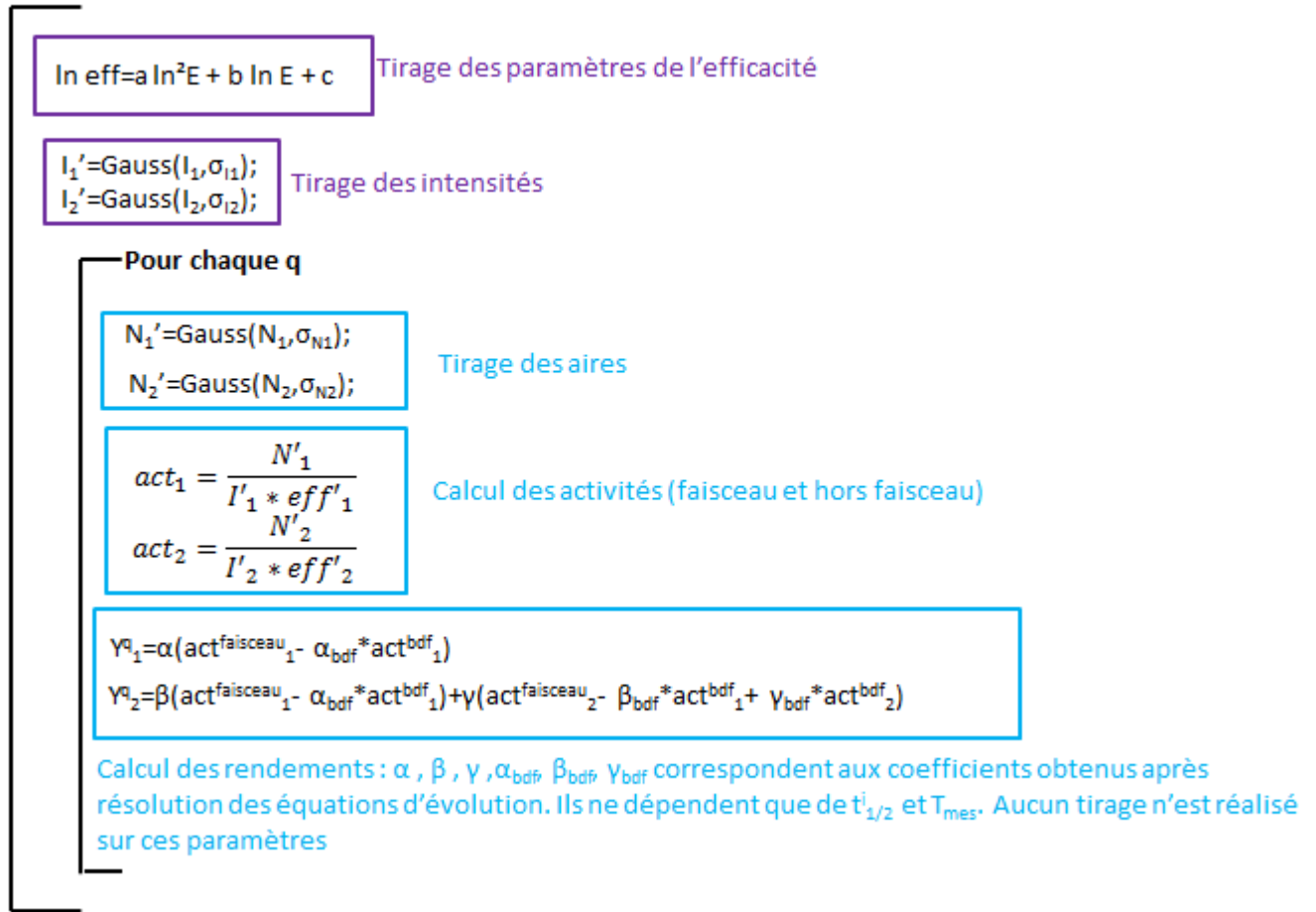


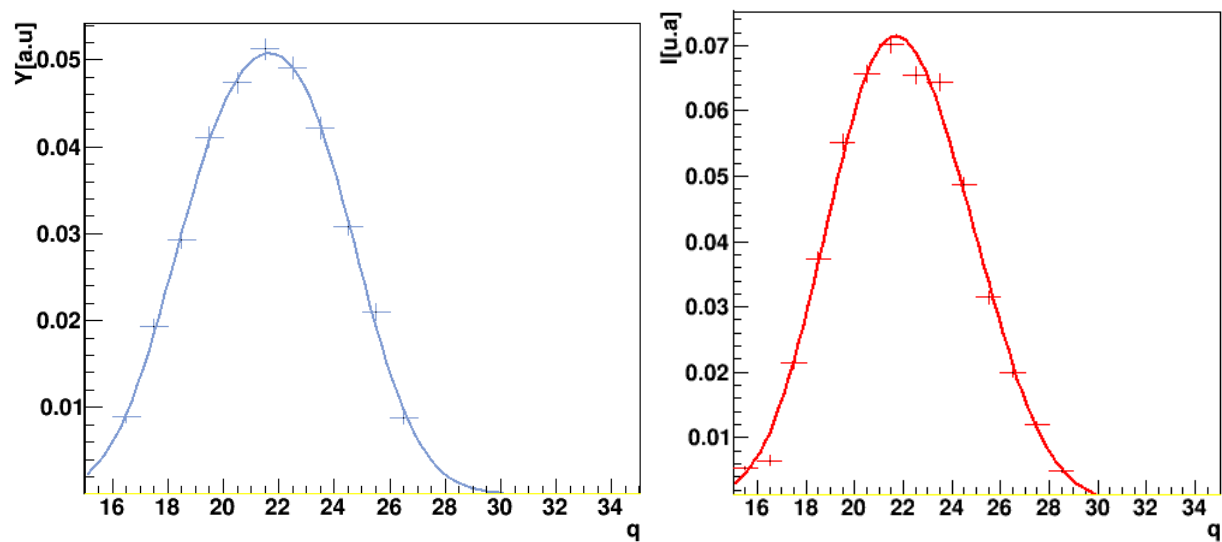
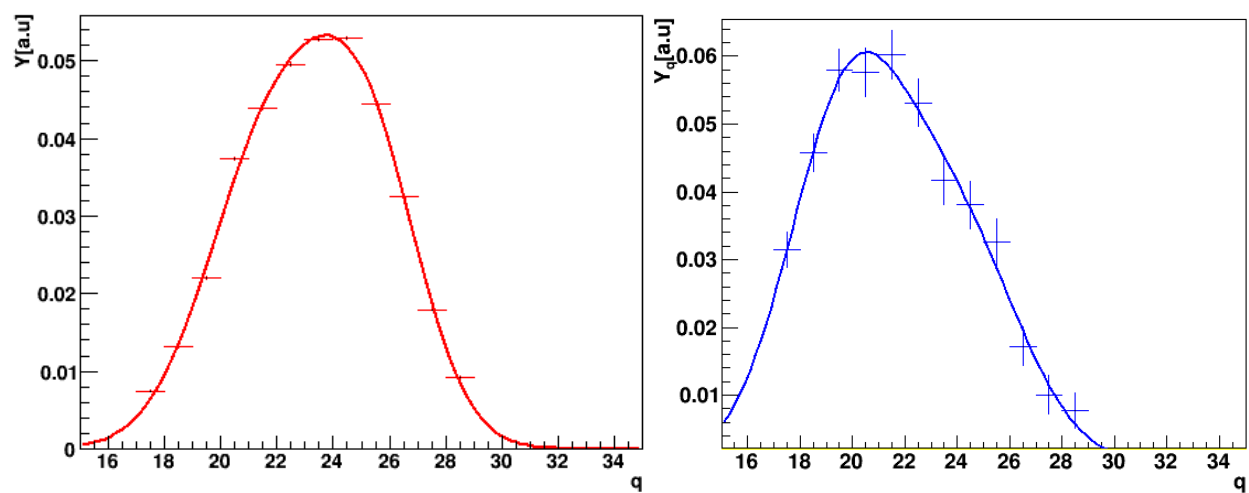
FIGURE 5.24 – Schéma de calcul de l'incertitude des rendements isotopiques

d'efficacité et les données de décroissance sont indépendantes de la charge ionique. Elles sont donc traitées séparément. Les rendements des noyaux d'une même masse étant interdépendants, l'analyse est réalisée pour toutes les charges nucléaires de la masse en même temps.

Comme schématisé figure 5.24, un premier tirage est réalisé sur les paramètres de la courbe d'efficacité et les intensités des raies. Puis un second tirage sur les aires des raies est réalisé pour chaque charge ionique. Le rendement moyen $Y^q(A, Z)$ et l'écart type pour chaque charge sont extraits. La figure 5.25 (resp. 5.26) représente ces distributions pour les charges de la masse 137 (resp. 139).

L'aire de la distribution en charge et l'incertitude associée sont obtenues en intégrant $Y(A, Z) = \int Y^q(A, Z)$.

La somme des $Y^q(A, Z)$ se répartit en général selon une gaussienne. On observe que l'incertitude associée à l'aire de la distribution est principalement due aux données de décroissance comme illustré figure 5.27 et 5.28.

FIGURE 5.25 – Distribution en charge de l' ^{137}I (gauche) et du ^{137}Xe (droite)FIGURE 5.26 – Distribution en charge du ^{139}Xe (gauche) et du ^{139}Cs (droite)

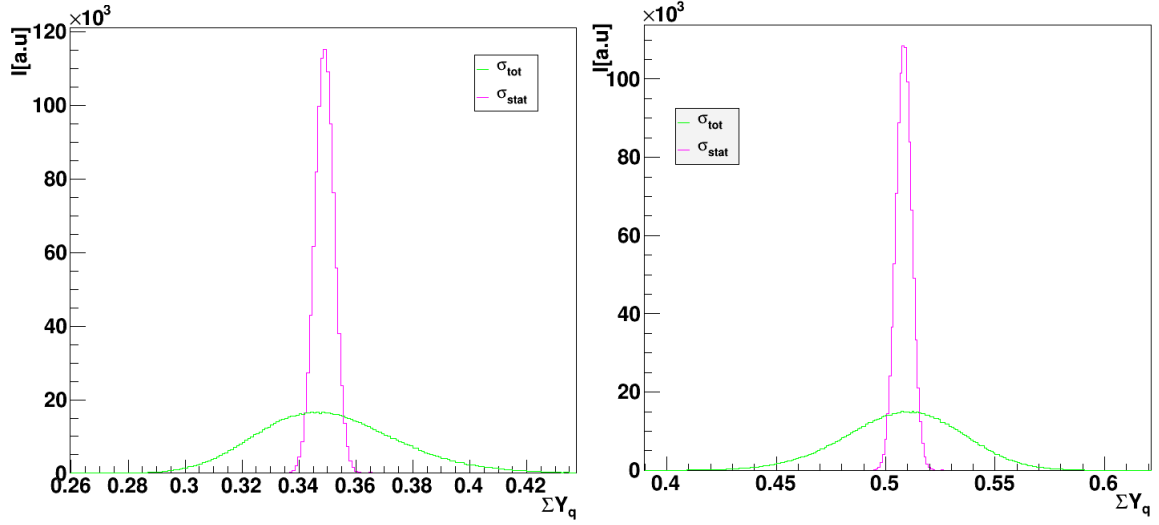


FIGURE 5.27 – Distribution de $Y(A, Z) = \sum_{q \text{ mesuré}} Y^q(A, Z)$ en unité arbitraire pour ^{137}I (gauche) et le ^{137}Xe (droite). Les courbes en rose correspondent à l'erreur statistique i.e. ($\sigma_I = 0; \sigma_{eff} = 0$)

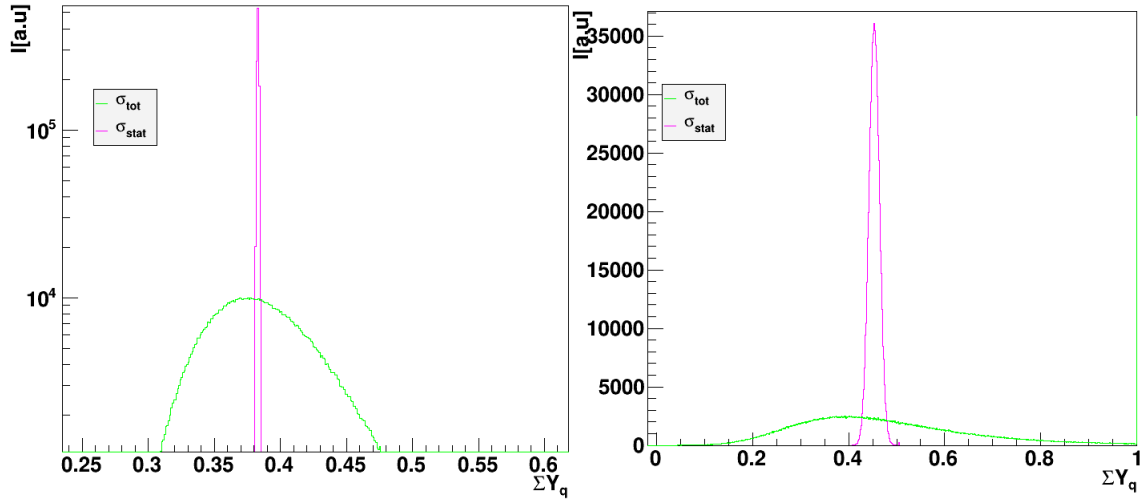


FIGURE 5.28 – Distribution de $Y(A, Z) = \sum_{q \text{ mesuré}} Y^q(A, Z)$ en unité arbitraire pour ^{139}Xe (gauche) et le ^{139}Cs (droite). Les courbes en rose correspondent à l'erreur statistique i.e. ($\sigma_I = 0; \sigma_{eff} = 0$)

Chapitre 6

Résultats et Discussion

Après avoir détaillé l'analyse des rendements isobariques et isotopiques intéressons nous à présent aux résultats obtenus suite à ces deux expériences.

6.1 Énergie cinétique

Comme indiqué partie 4.3, l'énergie cinétique des différentes masses n'a pu être obtenue qu'en relatif par rapport à celle de la masse 105. U. Guttler[GUT91] (^{241}Am : $80\text{ }\mu\text{g.cm}^{-2}$; Ni : $0.25\text{ }\mu\text{m}$) a réalisé des mesures comparables sur le spectromètre Lohengrin ; toutefois il disposait de cibles ultra fines ce qui lui a permis d'obtenir les énergies cinétiques en absolu. Nos données ont donc été comparées avec ces dernières en prenant $KE(105) = KE_{Guttler}(105)$.

Comme détaillé dans la partie 4.3, l'incertitude sur notre mesure relève de deux origines : la première de 0.6 MeV provient de la méthode de détermination de l'énergie la plus probable, la seconde également de 0.6 MeV provient de la corrélation entre la charge et l'énergie. Comme illustré figure 6.1, les données obtenues lors de cette expérience sont compatibles avec celles obtenues par Güttler. On peut également voir l'influence de la corrélation charge ionique-énergie. En effet les deux expériences ont mesuré la distribution en énergie à $q=19$ pour la masse 95. Cette charge étant inférieure à la charge moyenne on mesure une énergie cinétique plus faible que celle des masses voisines. L'écart à la systématique du pic léger observé sur la masse 95 est donc artificiel. On observe également une légère dispersion des mesures lorsque la masse a été mesurée plusieurs fois. Cette dispersion si elle est normale pour $A=98$ et $A=146$ semble un peu trop élevée pour $A=136$ où les mesures s'étalent sur 5 MeV. Les données expérimentales ont été également comparées avec les énergies cinétiques obtenues avec le code GEF. Ce dernier reproduit correctement les données comme il le fait pour les autres noyaux (cf §2.2.3). Les problèmes au niveau de la partie symétrique ont également été observés sur l' ^{235}U mais n'apparaissent pas sur le ^{239}Pu ni sur le ^{233}U .

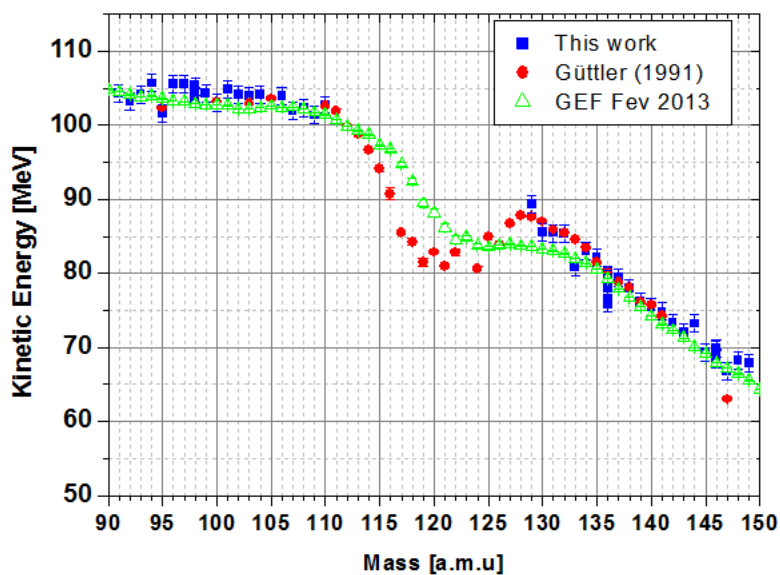


FIGURE 6.1 – Energie cinétique la plus probable en fonction de la masse du fragment. Nos données ont été normalisées pour que $KE(105) = KE_{Guttler}(105)$

6.2 Rendements en masse

Lors de l'expérience de mesure des rendements en masse, 41 rendements ont pu être extraits. Ces derniers sont présentés figure 6.2.

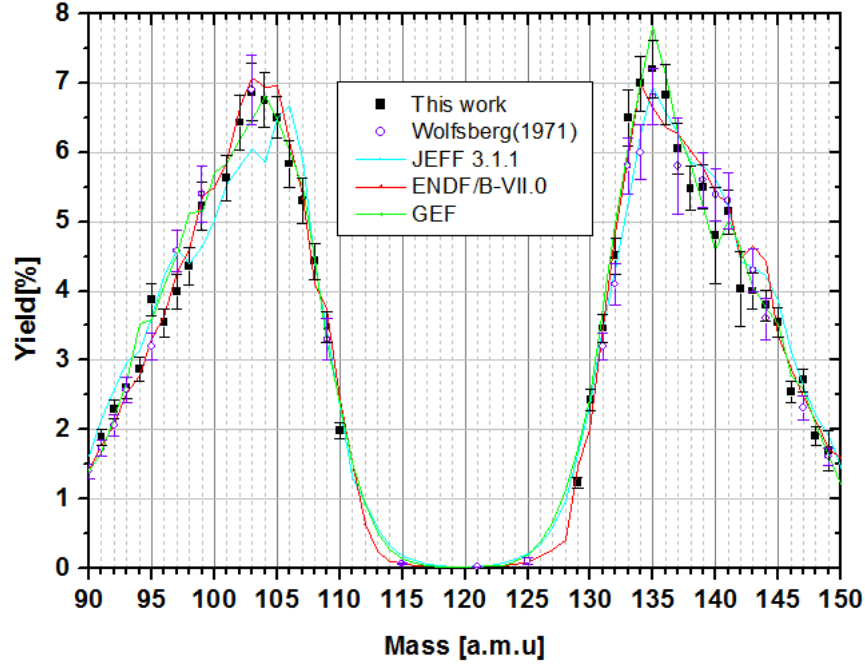


FIGURE 6.2 – Rendements en masse de $^{241}\text{Am}(2n,f)$ mesurés lors de cette thèse (carrés noirs)

La première remarque qui s'impose est que les rendements obtenus sont répartis selon la forme attendue. Nos rendements semblent être cohérents entre eux contrairement aux mesures réalisées précédemment à Lohengrin. Le paragraphe suivant présente leur comparaison avec les données précédemment mesurées à Lohengrin (U. Güttler et I. Tsekanovich) et avec celles de Wolfsberg (radiochimie) utilisées pour les bases de données évaluées.

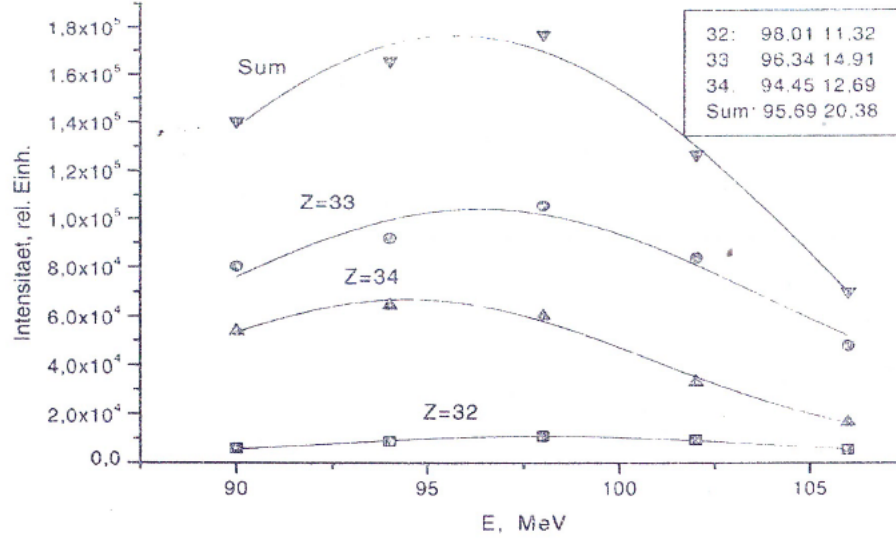
6.2.1 Comparaison aux données expérimentales

Comme mentionné dans la partie 4.4, il est nécessaire de mesurer la distribution en charge dans son ensemble au risque de ne pas considérer la proportion de fragments produits sous forme de nanosecondes isomères, proportion pouvant dépasser les 50 %. L'analyse de U. Güttler n'ayant pas pris en compte la présence des isomères nanosecondes on observe que certains rendements sont très sous-estimés (cf figure 1.26). La présence des isomères nanosecondes étant plus importante sur les lourds, les écarts les plus importants sont souvent observés sur les lourds. Le rendement de la masse 140, qui présente une très forte proportion d'isomère (cf figure 4.38), illustre ce propos.

Si on s'intéresse maintenant aux mesures réalisées par I. Tsekanovich, de même que U. Güttler il n'a pas pris en compte la présence de isomères nanosecondes. Cependant cette approximation n'a que peu d'impact puisqu'il s'est principalement intéressé à la partie $A=68-84$ où il n'y a pas d'isomère nanoseconde connu. En étudiant plus en détail la distribution en énergie cinétique des fragments, on se rend compte que le nombre de points en énergie mesurés est très faible compte tenu de la forme des distributions. Un exemple de distribution mesurée par [TSE99] et l'ajustement réalisé sur les données est présenté figure 6.3.

Sur les légers	I. Tsekhanovich	U. Guttler	Notre mesure Distribution complète	Notre mesure $E > E(I_{max})$
Largeur (FWHM) [MeV]	18-20	11.5-13.5	21-28	17-21

TABLE 6.1 – Largeur de la distribution en énergie sur le pic léger pour différentes expériences à Lohengrin

FIGURE 6.3 – Distributions en énergie cinétique mesurées par I. Tsekhanovich pour la masse $A=83$ et la charge ionique $q=20$

La mesure s'est essentiellement concentrée sur la partie haute énergie de la distribution qui est proche d'une gaussienne.

De plus, les distributions obtenues sont très larges (cf Table 6.1) par rapport à celles mesurées avec une cible ultra fine par U. Güttler. La forme des distributions qu'il a mesurées semble plus proche de la nôtre que de celle mesurée par U. Güttler et utilisée par I. Tsekhanovich pour ajuster les données. En effet, dans notre expérience il faut distinguer la vraie largeur à mi-hauteur de celle obtenue si on ne se concentre que sur la partie en énergie supérieure à $E(I_{max})$.

Si on compare les données obtenues lors de cette expérience et celles obtenues par radiochimie par Wolfsberg on constate qu'elles sont parfaitement compatibles sur l'ensemble. Toutefois $A=95$ semble très sur-estimé (20%), pas seulement par rapport à la mesure de Wolfsberg mais également par rapport aux masses environnantes. On observe également une légère tendance à la sous-estimation autour de $A=140$ comme illustré figure 6.4.

Cette partie en masse a été remesurée lors de la campagne de mesure des rendements isotopiques : $A=134$ et $A=136$ à 142 .

La masse servant à la normalisation ayant été différente, la normalisation entre les deux expériences a été réalisée sur la somme des rendements mesurés ($\sum Y_{mes}(A)$).

Les deux expériences présentent des résultats tout à fait compatibles avec les rendements mesurés par Wolfsberg comme indiqué figure 6.5

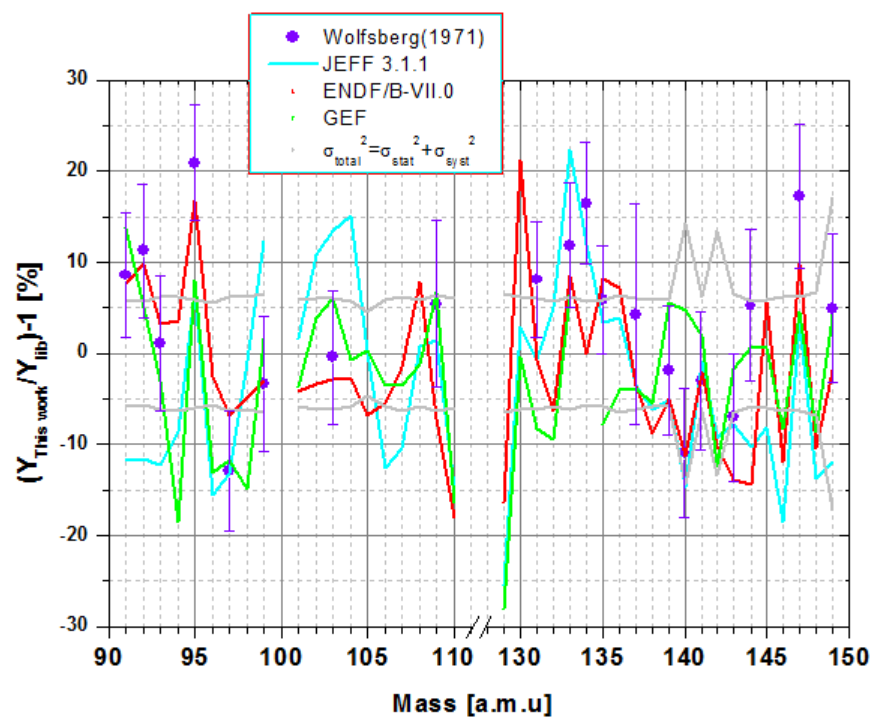


FIGURE 6.4 – Différence relative entre les rendements mesurés lors de cette thèse et ceux obtenus par [WOL71]. Les lignes correspondent aux données évaluées

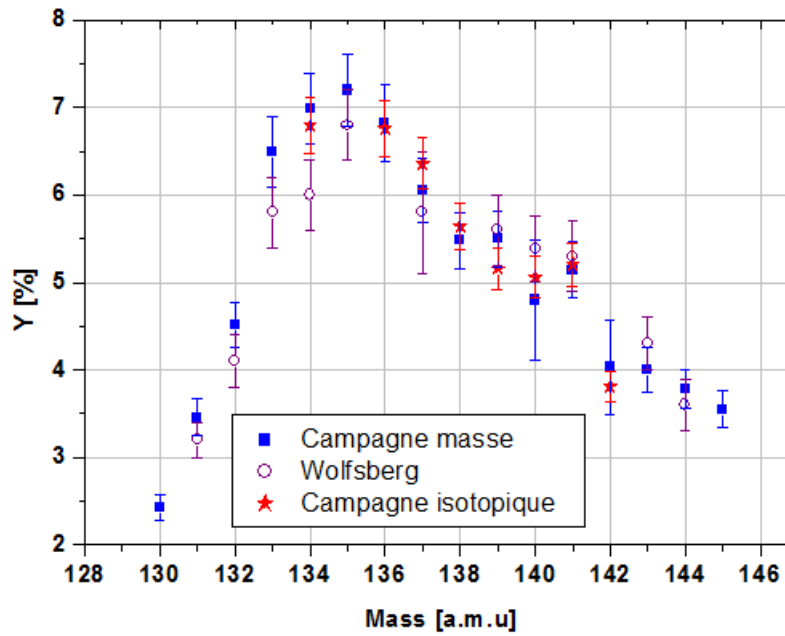


FIGURE 6.5 – Rendements en masse sur le pic lourd pour 3 expériences différentes : les deux expériences menées durant cette thèse et celle réalisée par Wolsberg

6.2.2 Comparaison aux bases évaluées et à GEF

Si on compare les résultats obtenus aux bases de données, on observe que les bases de données reproduisent bien le pic lourd par contre seule la base ENDF reproduit le pic léger. En effet la base de données JEFF 3.1.1 semble présenter un certain décalage sur le pic léger comme indiqué figure 6.6.

Les différences versions de GEF reproduisent très bien les données comme indiqué figure 6.7. En effet le résultat prédit est dans les barres d'erreurs expérimentales. Quelle que soit la version utilisée on peut cependant noter qu'il y a une surestimation des rendements entre $A = 94$ et $A = 98$.

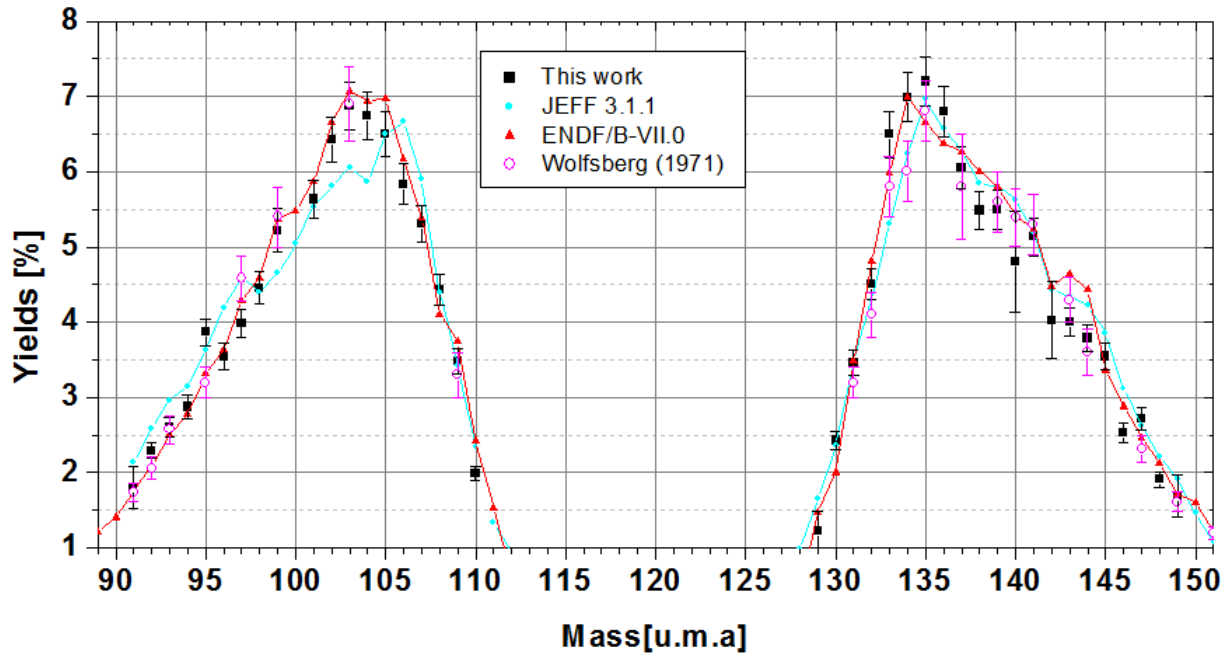


FIGURE 6.6 – Distribution en masse des rendements de fission. Les points noirs correspondent à notre mesure, les cercles violets aux données de Wolfsberg. Les lignes correspondent aux bases de données (JEFF 3.1.1 et ENDF-B/VII-0)

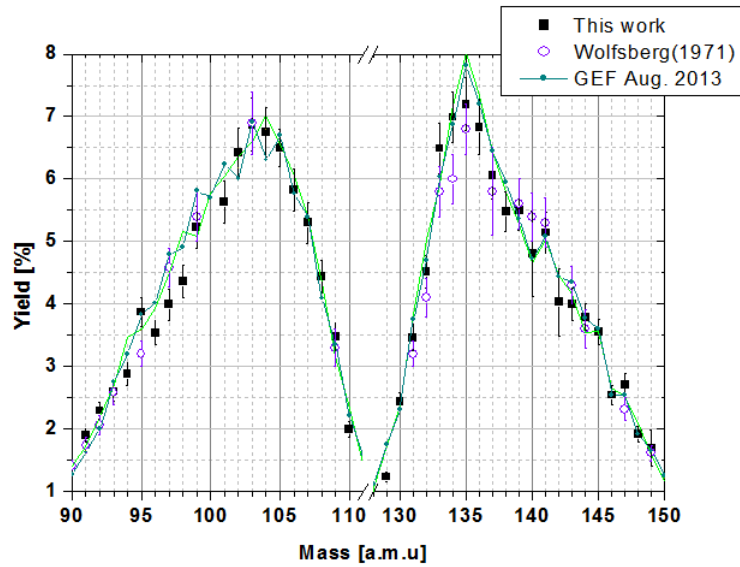


FIGURE 6.7 – Rendements en masses expérimentaux (carrés noirs et points violets) de l' $^{241}\text{Am}(2n, f)$. Le trait vert correspond à la prédiction du code GEF

6.2.3 Une systématique propre à l'instrument sur le pic.

Cette thèse constitue la 6ème mesure des rendements en masse où les distributions complètes en énergie et en charge sont réalisées. Il est donc intéressant de regarder si des biais propres à l'instrument apparaissent.

L'étude réalisée porte sur les mesures présentées dans [BAI09, MAR13] ainsi que sur celles présentée dans cette thèse. La figure 6.8 représente l'écart moyen entre les rendements mesurés à Lohengrin et ceux des principales bases de données. JEFF 3.1.1 semble présenter une légère déformation du pic lourd. En effet on observe une sous-estimation de la zone $A < 135$ et une surestimation de la zone $A = 135-144$. Cette déformation est moins marquée avec ENDF/B-VII. Cependant, comme pour JEFF 3.1.1, le rapport Y_{base}/Y_{loh} est très nettement supérieur à 1 dans la zone 138-144 (excepté la masse $A=141$).

Les conclusions données ici semblent ne pouvoir être imputées à aucune expérience en particulier comme l'illustre la figure 6.9 représentant l'écart entre les données expérimentales et les rendements JEFF 3.1.1 pour les six expériences.

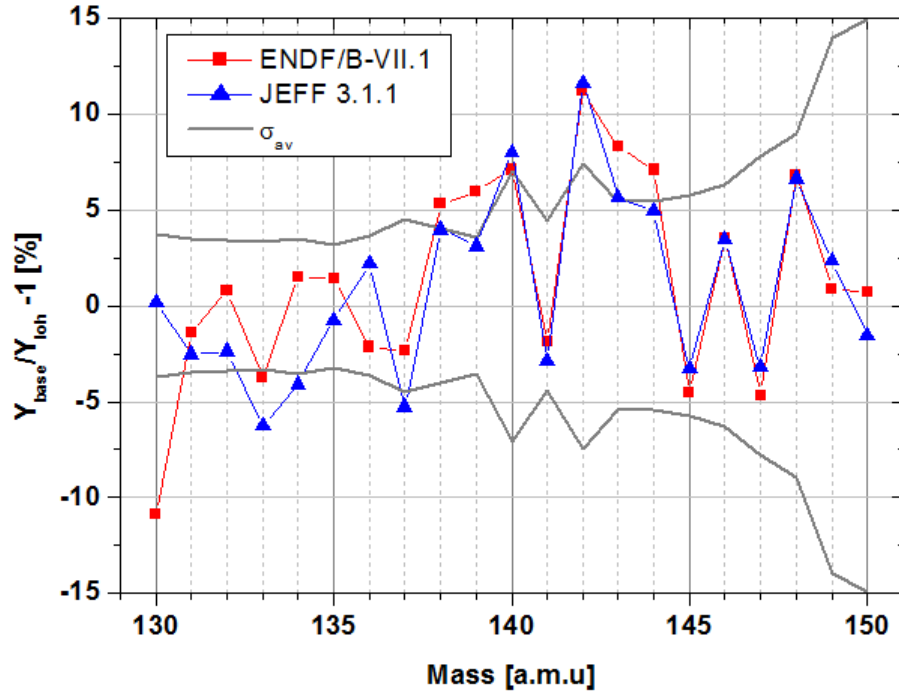


FIGURE 6.8 – Ecart moyen entre les rendements mesurés à Lohengrin et ceux des principales bases de données. L'incertitude moyenne des mesures est également indiquée

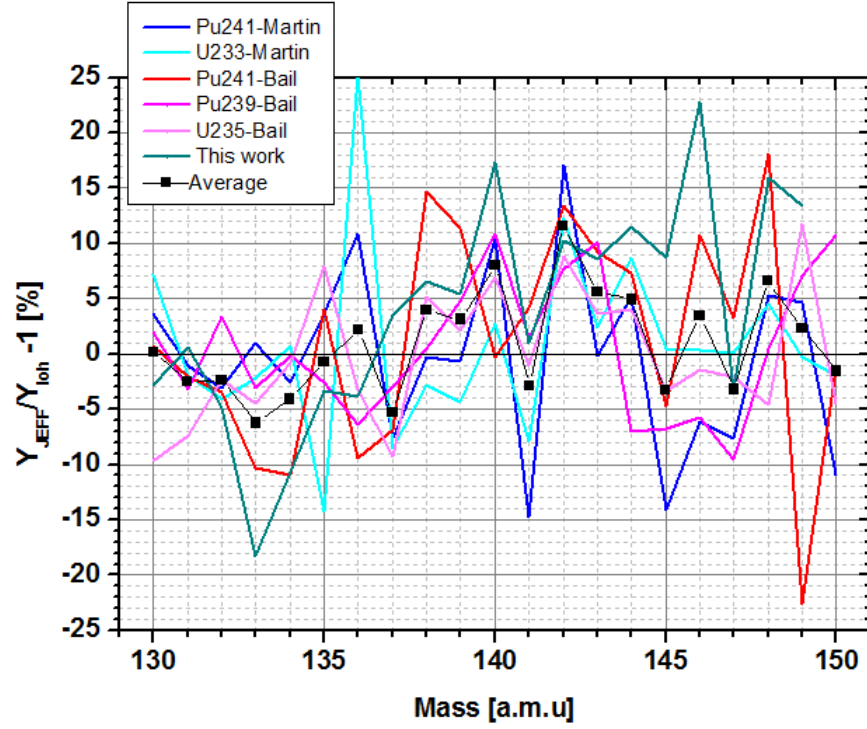


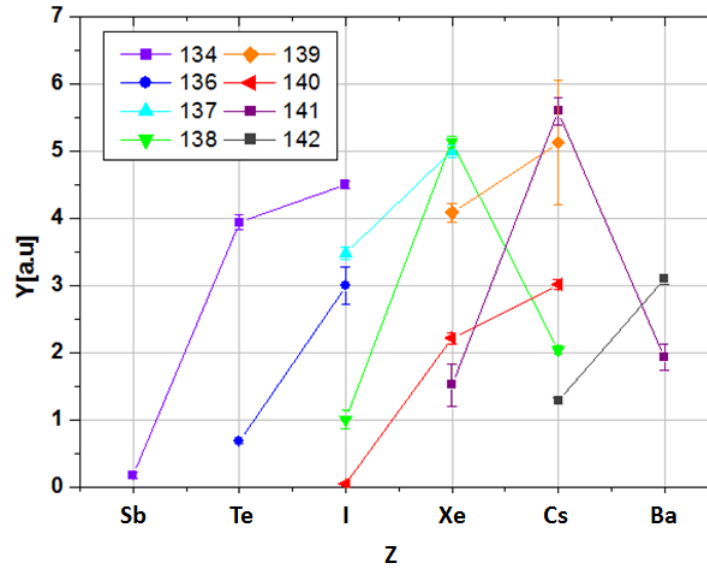
FIGURE 6.9 – Ecart moyen entre les rendements mesurés à Lohengrin et ceux donnés par JEFF 3.1.1.

6.3 Rendements isotopiques

L'expérience menée durant cette thèse a permis d'extraire 21 rendements isotopiques répartis sur 8 masses (134, 136 à 142) et 2 rapports isomériques (^{134}I et ^{138}Cs). Les écarts entre les bases de données et les résultats trouvés dans cette expérience correspondent à ceux généralement observés sur les autres expériences à Lohengrin. Certains noyaux présentent cependant une déviation très importante et incohérente avec la forme attendue pour $Y(Z|A)$ et $Y(A|Z)$.

6.3.1 $Y(Z|A)$

La probabilité de produire un fragment de charge Z pour une masse donnée A ($Y(Z|A)$) est directement extraite de l'aire de la distribution en charge ionique dans l'hypothèse d'une distribution en énergie identique pour les fragments d'une même masse. Comme on peut le constater figure 6.10, la distribution en charge atomique Z obtenue pour la majorité des masses est insuffisante pour extraire une charge moyenne et une largeur en charge. On peut cependant extraire ces caractéristiques pour les masses 134, 138 et 141. Ces dernières ont été comparées aux valeurs des bases de données en se restreignant aux charges mesurées lors de cette expérience ($\bar{Z}_{mes} = \frac{\sum Y_{mes} * Z_{mes}}{\sum Y_{mes}}$). Afin d'étudier l'impact des charges non mesurées, les charges moyennes obtenues ont également été comparées à celles obtenues avec l'ensemble des charges de la masse disposant d'un rendement non nul ($\bar{Z} = \frac{\sum Y * Z}{\sum Y}$). Afin d'obtenir la charge moyenne de la masse 138, le rendement du $^{138gs}\text{Cs}$ a été calculé grâce au rapport isomérique $\frac{^{138m}\text{Cs}}{^{138m}\text{Cs} + ^{138gs}\text{Cs}}$ (supposé égal à celui de l' ^{241}Am [Nai00]) et au rendement de l'isomère ($Y(^{138m}\text{Cs})$) mesuré lors de cette expérience.

FIGURE 6.10 – Rendements en charges pour différentes masses des fragments de fission de l' ^{242}Am

Comme indiqué figure 6.11, les charges moyennes obtenues sont en accord avec les charges moyennes prédites par les bases de données.

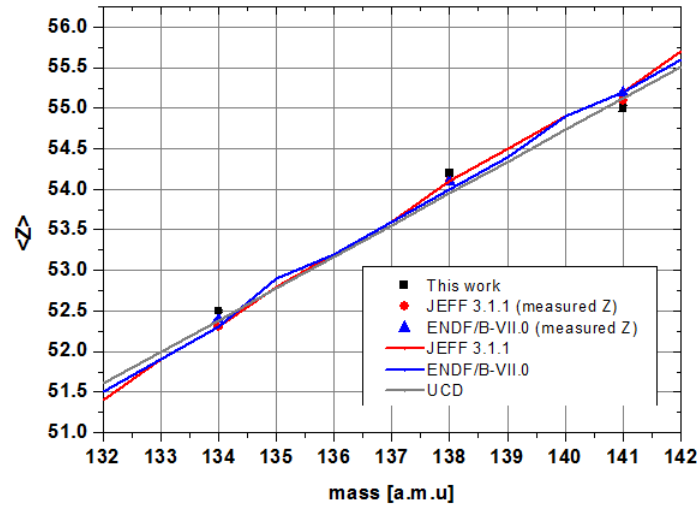
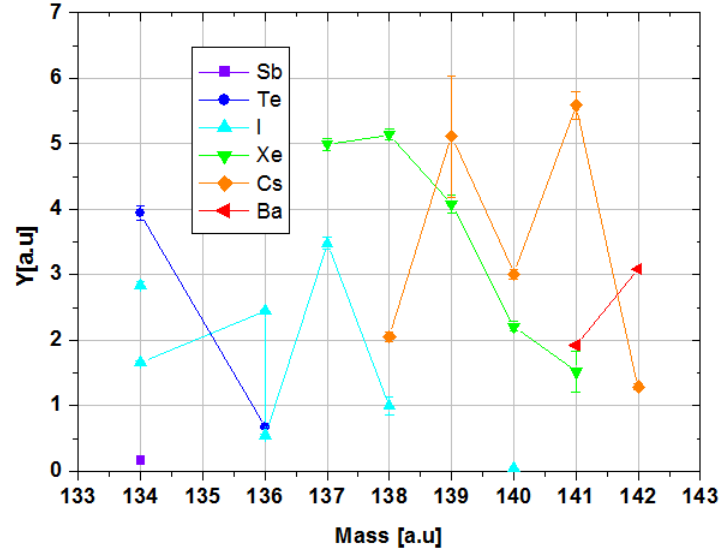


FIGURE 6.11 – Charge moyenne en fonction de la masse du fragment. Les points indiquent les moyennes extraites pour les charges mesurées lors de cette expérience et les lignes correspondent à l'ensemble de la distribution

6.3.2 $Y(A|Z)$

La distribution en masse pour une charge donnée $Y(A|Z)$ nous permet de détecter certaines incohérences comme le ^{140}Cs détaillé 6.3.5.2. . La chaîne comportant le plus grand nombre de masses mesurées est celle du Xe, elle ne peut être complétée car le ^{136}Xe est un noyau stable. Les autres chaînes sont trop incomplètes pour pouvoir en tirer des conclusions.

FIGURE 6.12 – Rendements en charge pour différentes masses des fragments de fission de l' ^{242}Am

6.3.3 Normalisation

Les rendements isotopiques obtenus sont des rendements relatifs. Afin de les comparer aux bases de données une normalisation est nécessaire. Plusieurs normalisations sont possibles, la normalisation peut être réalisée sur la somme de tous les rendements mesurés ou sur la somme des rendements de certaines masses particulières. Les coefficients ($\frac{\sum Y_{mes}}{\sum Y(\text{normalisation choisie})}$) qu'elles induisent sont donnés tableau 6.2. Ces coefficients sont très différents d'une normalisation à l'autre. Compte tenu de certains rendements que l'on peut considérer comme sous-estimés le coefficient lié à la normalisation sur la somme est plus élevé que pour les autres normalisations. La somme des rendements des charges mesurées de la masse 139 correspond à 93.6% (resp. 91%) selon JEFF (resp. ENDF) du rendement de la masse. Cette masse est donc utilisée habituellement pour la normalisation. La normalisation obtenue (ligne 9) dans notre cas est inférieure de 10% à celle des éléments de la masse 139 (lignes 7 et 8). Compte tenu des différents coefficients obtenus, le coefficient retenu est de 0.6.

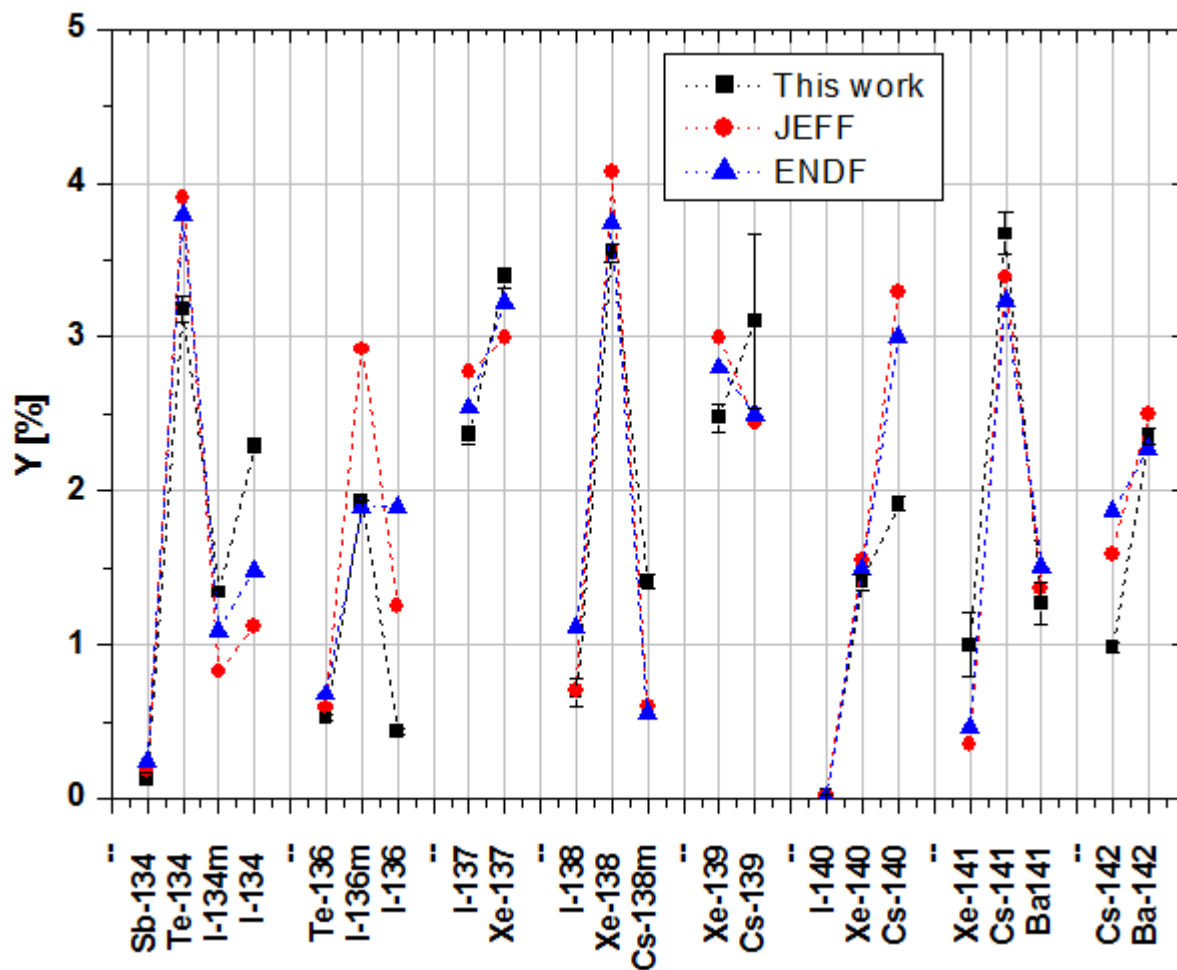
6.3.4 Comparaison aux bases de données

La comparaison des rendements de fission aux données évaluées est présentée figure 6.13. Comme on peut le constater, les bases de données reproduisent raisonnablement les rendements mesurés. Certains problèmes déjà repérés en comparant les résultats expérimentaux (i.e ^{136}Te , ^{136}I , ^{140}Cs et ^{142}Cs) sont présentés en détail §6.3.5.

On peut également signaler le rendement du ^{138m}Cs et celui de l' ^{134}I . Ces deux noyaux possédant des états isomères, ils seront détaillés dans la partie suivante. On constate également qu'aucune masse ne présente pour tous ses noyaux une sur- ou sous- estimation générale qui impliquerait un problème au niveau de $p(E)$.

Type de normalisation	Coefficient
Somme des rendements mesurés (JEFF 3.1.1)	0.63 ± 0.01
Somme des rendements mesurés (ENDF/B-V.II.0)	0.63 ± 0.01
Somme des rendements mesurés (JEFF 3.1.1) sauf $^{140}\text{Cs}, ^{136}\text{Te}, ^{136}\text{I}$	0.59 ± 0.01
Somme des rendements mesurés (ENDF/B-V.II.0) sauf $^{140}\text{Cs}, ^{136}\text{Te}, ^{136}\text{I}$	0.60 ± 0.01
$\sum Y_{mes}(Z, A = 141)(\text{JEFF 3.1.1})$	0.52 ± 0.05
$\sum Y_{mes}(Z, A = 141)(\text{ENDF/B-V.II.0})$	0.53 ± 0.05
$\sum Y_{mes}(Z, A = 139)(\text{JEFF 3.1.1})$	0.58 ± 0.07
$\sum Y_{mes}(Z, A = 139)(\text{ENDF/B-V.II.0})$	0.63 ± 0.01
$\sum Y_{mes}(Z, A = 139) = 0.92 * Y(A = 139)$ avec $Y(A=139)$ obtenu lors de la campagne en masse	0.54 ± 0.07
$^{137}\text{I} + ^{137}\text{Xe}$ (JEFF 3.1.1)	0.60 ± 0.03
$^{137}\text{I} + ^{137}\text{Xe}$ (ENDF/B-V.II.0)	0.60 ± 0.03

TABLE 6.2 – Coefficient de normalisation pour différentes normalisations

FIGURE 6.13 – Rendements isotopiques de ^{242}Am mesurés en noirs et extraits des bases de données (rouge et bleu)

6.3.5 Noyaux aux rendements incohérents.

6.3.5.1 ^{136}Te et $^{136\text{gs}}\text{I}$

Les très grands écarts observés pour le ^{136}Te et l' $^{136\text{gs}}\text{I}$ peuvent être imputés à des données de décroissance défailantes comme indiqué §5.1.1. Ce paragraphe a pour but de déterminer les intensités des raies du ^{136}Te .

Une étude a été menée afin de comparer les rendements de fission obtenus pour le ^{136}Te et l' $^{136\text{gs}}\text{I}$ pour différentes intensités de la raie à 631 keV. Le rapport isomérique $^{136\text{m}}\text{I}/^{136\text{gs}}\text{I}$ peut nous permettre d'approximer la valeur attendue du rendement de l' $^{136\text{gs}}\text{I}$. Le rapport donné par JEFF et la valeur expérimentale mesurée par Naik [Nai00] pour l' ^{241}Am nous permettent de déduire de la mesure de $Y(^{136\text{m}}\text{I})$, deux valeurs de $^{136\text{gs}}\text{I}$ représentées figure 6.14 :

$$Y^g = Y^m * \left[\frac{Y^g}{Y^m} \right]_{\text{Naik}(\text{Am241}), \text{JEFF}}$$

Comme on peut le voir ces deux valeurs sont assez différentes. Le rapport $^{136}\text{Te}/^{136\text{gs}}\text{I}$ donné par les bases de données nous permet également de déduire une valeur pour l'intensité de la raie à 631 keV comme illustré figure 6.15. Le rapport isomérique de l' ^{136}I mesuré par Naik ainsi que les rapports $^{136}\text{Te}/^{136\text{gs}}\text{I}$ donnés par les bases semblent converger vers une valeur de $I_\gamma = 20\%$. Les valeurs d'intensité deviennent d'après figure la 5.18 celles indiquées tableau 6.3

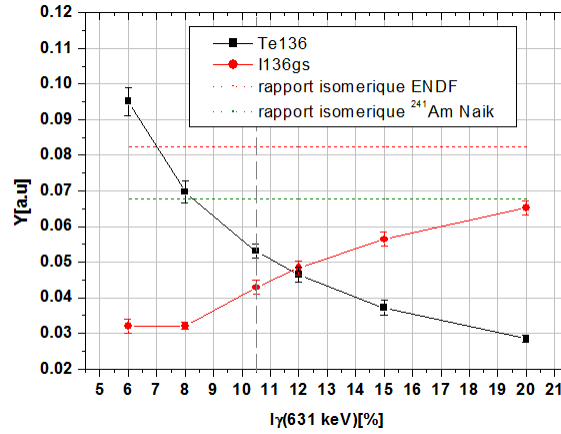


FIGURE 6.14 – Rendement du ^{136}Te et de l' $^{136\text{gs}}\text{I}$ obtenus pour différentes intensités de la raie à 631 keV. Les lignes horizontales indiquent le rendement attendu pour l' $^{136\text{gs}}\text{I}$ si $Y(^{136\text{gs}}\text{I}) = Y(^{136\text{m}}\text{I}) * \left[\frac{Y^g}{Y^m} \right]_{\text{Naik}(\text{Am241}), \text{JEFF}}$. La ligne verticale indique l'intensité donnée actuellement par les bases de données

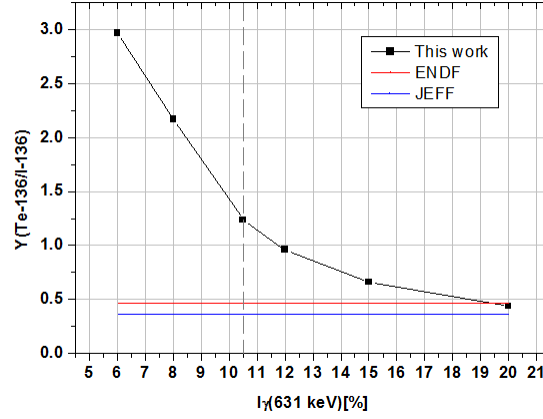


FIGURE 6.15 – Rapports $^{136}\text{Te}/^{136\text{gs}}\text{I}$ obtenus pour différentes intensités de la raie à 631 keV. Les lignes correspondent au rapport $^{136}\text{Te}/^{136\text{gs}}\text{I}$ pour les bases de données. La ligne verticale indique l'intensité donnée actuellement par les bases de données.

$E_\gamma [\text{keV}]$	$I_\gamma [\%]$	$I_\gamma [\%](\text{initial})$
333	49.6	18.8
578	58.4	18.4
631	20	10.5
2077	30.3	22.4

TABLE 6.3 – Intensités des raies gamma du ^{136}Te obtenues d'après la figure 5.18

6.3.5.2 ^{140}Cs

Le rendement du ^{140}Cs est beaucoup plus faible qu'attendu compte tenu du rendement du ^{139}Cs et du ^{141}Cs . Cette observation était déjà présente dans la thèse de F. Martin [MAR13].

Le ^{140}Cs possède deux raies exploitables (602 keV et 908 keV). Les deux raies donnent des rendements tout à fait en accord. Les intensités relatives de ces deux raies semblent donc correctes (cf tableau 6.4).

$E_\gamma [\text{keV}]$	$I_\gamma [\%]$	$Y [\text{a.u.}]$
602	53 ± 3	31.5 ± 0.8
908	8.6 ± 0.4	31.6 ± 1.0

TABLE 6.4 – Intensités des raies gamma du ^{140}Cs et rendement associés

Le travail réalisé à Lohengrin par A. Bail ne montre pas d'incohérence pour le rendement du ^{140}Cs . Toutefois les activités mesurées pour les deux raies présentent un rapport de 1.2. Cette différence peut émaner de la courbe d'efficacité déduite des intensités du $^{96\text{m}}\text{Y}$ (voir figure 5.14). En effet les intensités utilisées par A. Bail correspondent à celles de JEFF 3.1.1. (cf tableau 5.3) et semblent partiellement erronées.

Il serait donc souhaitable de remesurer de manière absolue les raies du ^{140}Cs , les intensités relatives semblant correctes.

6.3.5.3 ^{142}Cs

Le rendement du ^{142}Cs semble également trop faible comme il l'était dans le cadre de la thèse de F. Martin où il était inférieur à celui des bases de données d'un facteur 1.4. Le ^{142}Cs possède une seule autre raie exploitable pour une partie des charges. Le rapport entre les nombre de coups attendus entre la raie à 359 keV et 967 keV est de 8.1 alors que celui mesuré est de 4.5, ce qui pourrait de nouveau être lié à un problème de base de données.

L'augmentation d'un facteur 1.4 du rendement du ^{142}Cs de l' ^{242}Am donne un rendement isotopique inférieur à celui des bases de données, ce qui peut être en accord avec un rendement en masse mesuré dans l'expérience précédente inférieur à celui des bases de données.

6.3.6 Rapports isomériques

Lors de cette mesure, trois noyaux possédaient des états isomériques : ^{134}I , ^{136}I , ^{138}Cs . Le rendement de fission de l' ^{136}I est détérioré par un problème au niveau des bases de données, il n'a donc pas pu être étudié. Le rapport isomérique de l' ^{134}I a été mesuré pour d'autres noyaux fissionnants (cf figure 6.16). Ce rapport évolue peu d'un noyau fissionnant à l'autre, cependant les incertitudes associées sont importantes. On remarque que le rapport isomérique mesuré lors de cette expérience est plus faible que ceux mesurés précédemment mais compatible dans les barres d'erreur. Dans le cas d'un rapport isomérique de 0.42, ce qui semble être la moyenne, le rendement du fondamental de l' ^{134}I serait réduit de 20%. Le rendement de l' ^{134}I resterait donc très supérieur à celui des bases de données (cf figure 6.13).

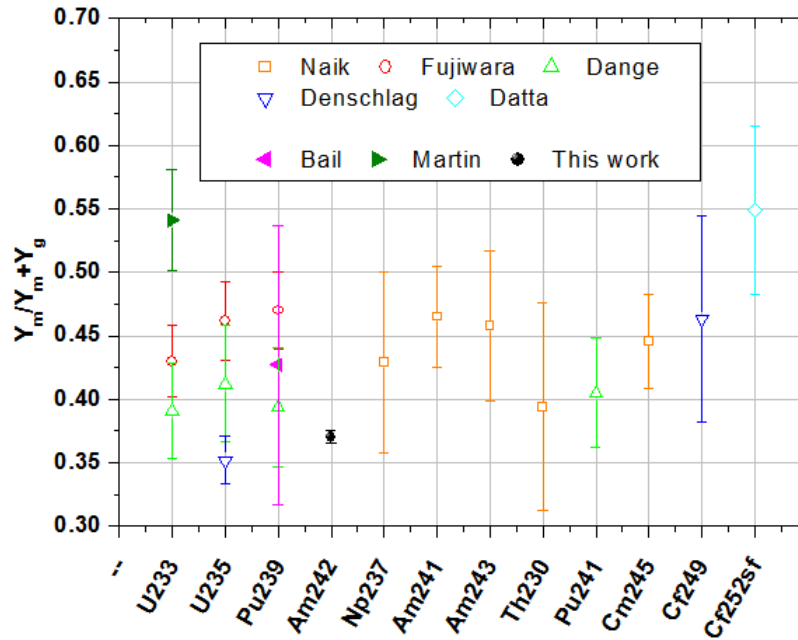


FIGURE 6.16 – Rapport isomérique du ^{134}I en fonction du noyau cible lors d'une fission induite par neutron [BAI09, MAR13, NAI95, NAI05, Nai00]. Les symboles ouverts correspondent à des mesures radiochimiques et les symboles pleins à des mesures réalisées à Lohengrin

Le rendement du ^{138}Cs dans son état fondamental n'a pu être extrait avec succès compte tenu de la distribution en charge obtenue (cf figure 6.17) cependant un ordre de grandeur a été obtenu. Le rapport isomérique obtenu avec

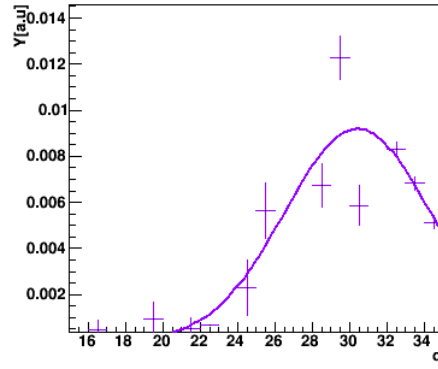


FIGURE 6.17 – Distribution en charge ionique du ^{138}Cs . La courbe violette correspond à l'ajustement réalisé pour extraire le rendement du ^{138}Cs

cette valeur semble en accord avec les rapports isomériques du ^{138}Cs mesurés précédemment comme indiqué figure 6.18.

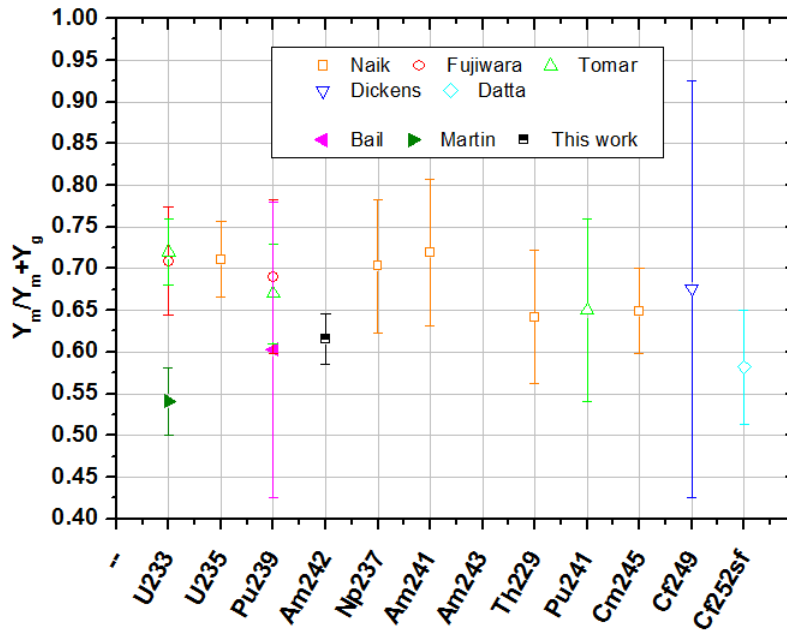


FIGURE 6.18 – Rapport isomérique du ^{138}Cs en fonction du noyau cible lors d'une fission induite par neutron [BAI09, MAR13, NAI95, NAI05, Nai00]. Les symboles ouverts correspondent à des mesures radiochimiques et les symboles pleins à des mesures réalisées à Lohengrin. Seule l'erreur statistique de notre mesure est représentée

Conclusion

Ainsi la mesure réalisée dans le cadre de cette thèse a permis d'étendre de manière très significative la connaissance des rendements de fission en masse, portant de 90% à 173% les rendements connus. Les deux pics sont actuellement mesurés, ce qui a permis de conclure que la base ENDF devait être privilégiée lors des simulations réacteurs. Deplus, on retient que la précision sur les données est importante (5,5%). Il a également été observé un

léger biais systématique autour de la région $A = 140$ entre les mesures réalisées à Lohengrin et les bases de données évaluées.

La mesure des rendements par spectrométrie gamma a permis d'extraire 21 rendements isotopiques sur le pic lourd. A cause de problèmes techniques, le pic léger n'a cependant pas pu être mesuré. Les bases de données évaluées sont en accord avec les rendements mesurés. Toutefois, des problèmes de données de décroissance nous conduisent à douter sérieusement des valeurs de rendements obtenus pour le ^{136}Te , ^{136}I et ^{140}Cs . A cause des durées de vie des isotopiques du pic léger, de manière générale, seules deux charges peuvent être extraites. Ainsi l'étude de la distribution en charge nucléaire et de l'effet pair impair sont très limitées. Ces dernières sont en général très bien décrites par des mesures telles que SOFIA cependant l' ^{242}Am ne peut être produit dans le cadre de cette expérience puisque le faisceau est composé d' ^{238}U .

Chapitre 7

Moment angulaire du noyau composé et rendements de fission

S'il a été démontré que le moment angulaire avait une influence sur les sections efficaces, il n'a pas encore pu être clairement démontré que ce dernier avait une influence sur les rendements de fission. Afin de déterminer expérimentalement l'influence du spin sur la voie de sortie du processus de fission, il faut peupler différemment en spin le même noyau composé. Deux méthodes se présentent donc à priori à l'expérimentateur :

- le noyau possède un état métastable isomérique de spin
- deux réactions différentes permettent de créer le même noyau composé avec des distributions en spin différentes comme lors des réactions en cinématique inverse ou lors des réactions de substitution.

La première manière semble particulièrement bien adaptée à l' ^{242}Am car les deux états de spin possèdent des grandes durées de vie facilement peuplables lors de la capture d'un neutron par l' ^{241}Am .

7.1 Etat de l'art

7.1.1 Rendements en masse

La première méthode a notamment été utilisée lors de la mesure des rendements en masse de l' ^{235m}U ($1/2+$) par Fontenla [FON80]. Les rendements obtenus sont comparés à ceux de l' ^{235}U ($7/2-$). L'énergie séparant les deux états est très faible (0.1 keV). Cependant l'énergie d'excitation du noyau composé est de 4 MeV environ dans le cas de l'isomère (obtenu par réaction (d,p)) et d'environ 6 MeV dans le cas du fondamental. Les différences observées entre les rendements en masse est faible et peut traduire la différence en énergie d'excitation comme illustré figure 7.1.

La seconde méthode a déjà été utilisée lors d'expériences en cinématique inverse cependant le spectre en énergie d'excitation du noyau composé en cinématique inverse est différent de celui en thermique, les effets du spin risquent donc de ne pouvoir être distingués de ceux de l'énergie d'excitation. On observe en effet figure 7.2 que les rendements au niveau des pics sont très similaires mais le rapport pic sur vallée est inférieur dans le cas de la réaction en cinématique inverse car l'énergie d'excitation du noyau composé est plus importante de 1-2 MeV que dans le cas d'une fission thermique.

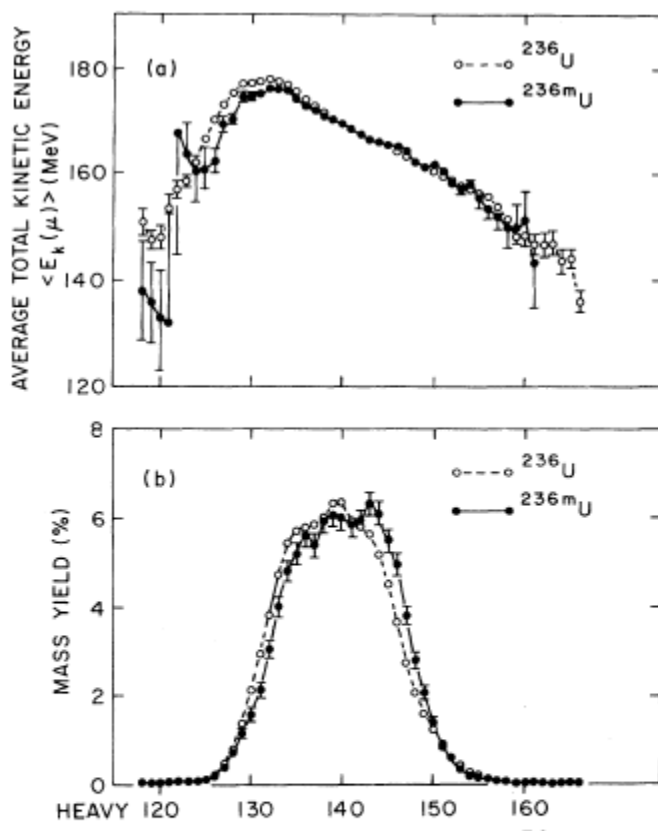


FIGURE 7.1 – Distribution en énergie et en masse provisoire pour les fissions $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ et $^{235m}\text{U}(d, pf)$ [FON80]

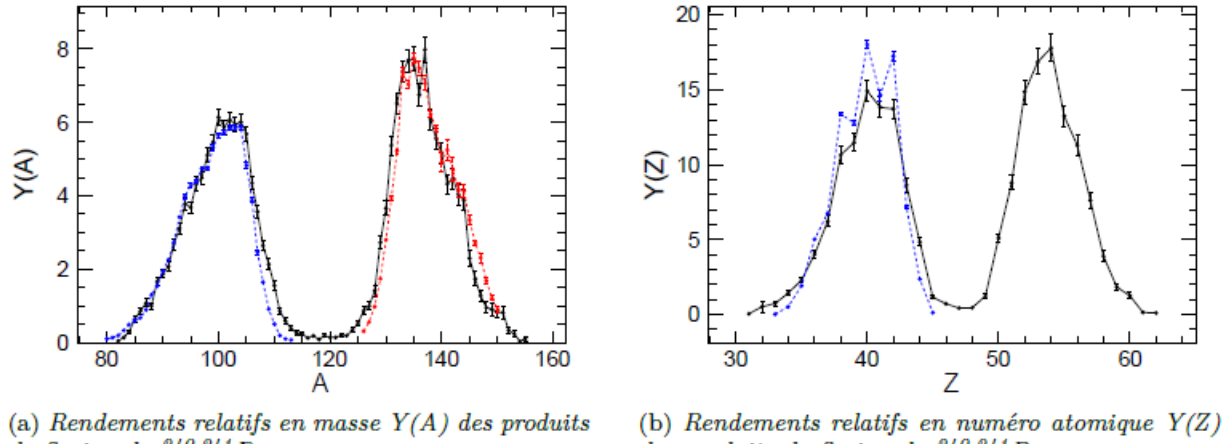


FIGURE 7.2 – Rendements en masse (gauche) et en charge (droite). Les points en noirs correspondent à la mesure en cinématique inverse et les mesures en couleur correspondent aux mesures réalisées à Lohengrin [DEL12]

Afin de s'affranchir d'effets importants dus à l'énergie d'excitation, la zone des résonnances a été étudiée par [HAM89]. Lorsque que l'on mesure les rendements à l'énergie d'une résonnance, on peut associer un spin à la réaction. L'énergie des résonnances ainsi que la différence d'énergie entre les résonnances étant faibles, l'effet de l'énergie d'excitation est négligeable et devrait laisser apparaitre un effet du spin s'il existe. Hambsch et al. [HAM89] ont mesuré les rendements en masse pour les résonnances à 8.77 eV ($J=3$), à 12.4 eV ($J=4$) et entre les deux résonnances. Il ne semble pas y avoir d'effet du spin sur les rendements en masse comme illustré figure 7.3.

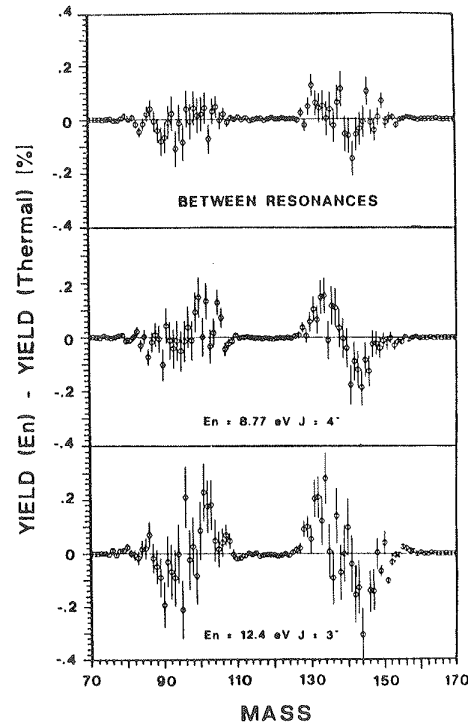


FIGURE 7.3 – Difference entre le rendement en masse mesuré en thermique et celui mesuré à différentes énergies neutrons pour l' $^{235}\text{U}(n, f)$ [HAM89]

L'effet du spin sur les rendements en masse semble donc faible. Il n'existe aucun modèle capable de conserver le moment angulaire lors du processus de fission et la mesure directe de ce dernier est impossible. On s'attend cependant, si influence du spin sur les rendements il y a, à ce qu'elle apparaisse de manière privilégiée sur les rapports isomériques. Cela traduirait une distribution différente du moment angulaire des fragments.

7.1.2 Rendements isomériques

De même que les rendements isotopiques, les rapports isomériques n'ont pas pu être étudiés pour le même noyau composé peuplé différemment en spin. Les tendances générales de ces derniers ont cependant été étudiées pour différents noyaux composés. Cela nous permet donc d'observer l'influence de la masse, la parité et le spin du noyau composé. Plusieurs modèles ont été développés afin d'établir un lien entre les rapports isomériques et le moment angulaire des fragments ([WAG91] p 478). Cependant les moments extraits sont très « modèle-dépendants » et ne

permettent de conclure que sur les tendances et non sur les valeurs absolues. Le modèle développé dans GEF et celui développé par Madland sont détaillés (§2.1.7).

Afin de pouvoir comparer les différentes expériences entre elles et puisque nous ne mesurons que des rapports isomériques, les études présentées ci-dessous ne concernent que les rendements isomériques et non les moments des fragments. Les figures extraites des publications présentent cependant le moment angulaire. De manière simplifiée on peut associer un rapport $\frac{Y_h}{Y_h+Y_l}$ (où Y_h (resp. Y_l) est le rendement du noyau de haut (resp. bas) spin) qui augmente à un moment angulaire du fragment qui augmente. Naik [NAI07] a étudié 10 rapports isomériques pour plus de 15 noyaux composés dont trois à charge impaire. L'ensemble des mesures ont été réalisées pour le pic lourd. Ces mesures constituent la grande majorité des mesures disponibles. Deux exemples sont présentés figure 2.36 et 2.37. On peut observer que les rapports isomériques ne varient pas hors de leur barre d'erreur avec le noyau composé. Aucune tendance ne semble se dégager : la parité du noyau composé n'influence pas les rapports isomériques. De même le spin du noyau père ne semble pas influencer les rapports isomériques comme illustré figure 7.4.

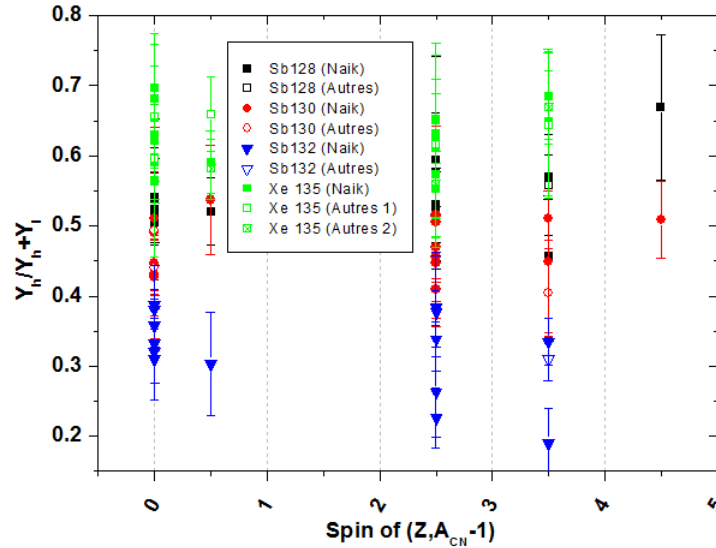


FIGURE 7.4 – Rapport isomérique des Sb et du ^{135}Xe en fonction du spin du noyau cible

Toutefois les barres d'erreur sont très importantes ($>10\%$) et peuvent cacher des effets faibles. Naik a d'ailleurs conclu de manière peut être un peu hative à une augmentation du moment donc du rapport $\frac{Y_h}{Y_h+Y_l}$ avec la fissilité. D'autres études plus restreintes menées par Imanishi [IMA76] sur les mêmes fragments après fission thermique d' ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu ont conclu que les rapports isomériques ne dépendaient pas du noyau fissionnant. Ford [FOR84] s'est quant à lui concentré sur les noyaux de ^{133}Xe et ^{135}Xe pour les fissions thermiques de ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu et ^{242m}Am et les fissions induites par des neutrons de 14 MeV sur des cibles de ^{238}U , ^{235}U et ^{239}Pu . Bien qu'on ne puisse pas clairement conclure à une évolution du rapport isomérique avec le spin, Ford constate une légère augmentation du rapport isomérique pour le ^{133}Xe et une légère diminution pour le ^{135}Xe avec le spin du noyau composé.

On peut également se demander en regardant la figure 2.39 extraite de la même publication si l'énergie d'excitation du noyau n'influence pas le rapport isomérique. Pour rappel moins de 50 keV séparent les deux isomères d' ^{242}Am . D'autres expériences menées notamment par Sarantites [SAR65] et Datta [DAT83] semblent confirmer

cette légère tendance pour les fragments loin de la fermeture de couche. Une étude plus précise menée à plus haute énergie d'excitation [TOM07] a été menée en utilisant la fission induite par alpha sur de l' ^{238}U ($E_\alpha=18$ à 30 MeV). Les rapports isomériques du $^{128,130,132}\text{Sb}$ révèlent une augmentation du rapport Y_h/Y_l avec le spin du noyau fissionnant et de l'énergie d'excitation comme représenté figure 7.5.

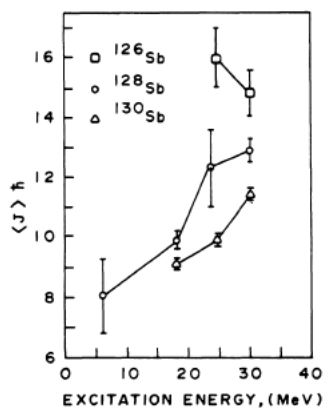


FIGURE 7.5 – Moment angulaire moyen en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé [TOM07]

Cette observation d'une augmentation du rapport isomérique, donc du moment angulaire, avec l'énergie d'excitation a également été faite par Naik. Le domaine en énergie couvert se situe surtout à haute énergie ($E = 25\text{--}44$ MeV) [NAI99]. Cependant le noyau qui fissionne à ces énergies ($E^* > 6 \text{ MeV}$) n'est pas toujours le noyau $A+1$ (fission multi chance). Ainsi l'auteur, en utilisant la formule de Huizenga [VAN73] pour déterminer quel noyau fissionne, a pu obtenir et comparer ces rendements isomériques non plus en fonction de l'énergie d'excitation mais en fonction du moment du « noyau » qui fissionne vraiment. On peut voir clairement à la figure 7.6 une augmentation des rapports isomériques (moment angulaire sur la figure) avec le moment du noyau fissionnant. Pour conclure, on peut dire que la dépendance du moment angulaire avec le moment du noyau composé n'a été observée que pour des fissions à très hautes énergies d'excitation via la modélisation de la fission multi chance.

L'augmentation du rapport isomérique avec l'énergie d'excitation a également été observée à des énergies élevées ne donnant que peu de conclusions sur l'extrapolation à basse énergie. Ces constatations ont été intégrées dans le code GEF. D'autres constatations relatives aux fragments et non au noyau fissionnant, comme une « mesure » d'un J_{RMS} plus grand pour les fragments à Z -impairs [NAI07] confirmée par la théorie [TOM07], ont également été intégrées dans GEF.

7.2 Expériences à Lohengrin avec l' ^{242}Am

Comme mentionné précédemment (§1.3.2), cette expérience avait également pour but de déterminer s'il existe une différence entre les rendements de fission résultant de la fission du fondamental de l' ^{242}Am et celle de son état isomère. La mesure d'un certain nombre de rendements de fission en fonction du rapport du taux de fission de l' ^{242m}Am sur celui de l' $^{242gs}\text{Am}$ va nous permettre de répondre à cette question.

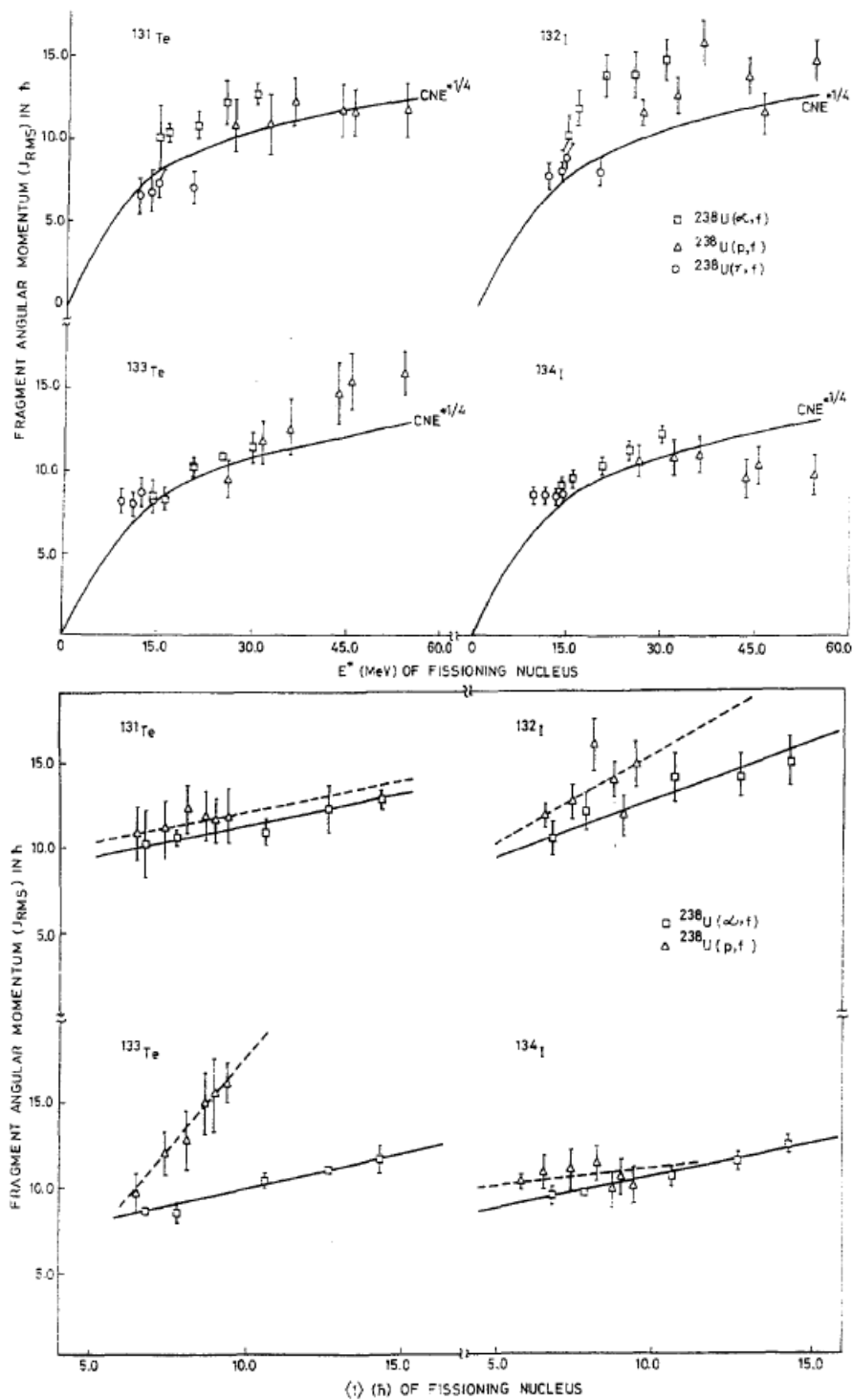


FIGURE 7.6 – Moment angulaire en fonction de l'énergie d'excitation (haut) et du moment du noyau fissionnant (bas) [NAI99]

7.2.1 Rendements en masse

Notons Y_A le rendement mesuré de la masse A, ce rendement peut s'écrire :

$$Y_A = \alpha(t) * Y_A^m + \beta(t) * Y_A^g \quad (7.1)$$

où $\alpha(t)$ correspond au taux de fission relatif de l'état isomère et $\beta(t)$ à celui du fondamental. Y_A^m et Y_A^g correspondent respectivement au rendement de fission issu de l' ^{242m}Am et à celui de l' ^{242g}Am

avec

$$\alpha(t) + \beta(t) = 1 \quad (7.2)$$

Comme indiqué précédemment seule la quantité $Y_A/Y_{A'}$ est mesurable. On peut réécrire

$$Y_A^g = (1 + X_A) * Y_A^m$$

avec un paramètre $X_A \geq -1$

$$Y_{A'}^g = (1 + X_{A'}) * Y_{A'}^m$$

avec un paramètre $X_{A'} \geq -1$

On obtient ainsi :

$$\frac{Y_A(t)}{Y_{A'}(t)} = \frac{(1 + \beta(t) * X_A)}{(1 + \beta(t) * X_{A'})} * \frac{Y_A^m}{Y_{A'}^m}$$

Afin de résoudre cette équation supposons que pour la masse A', les deux rendements (isomérique et fondamental) sont égaux i.e $X_{A'} = 0$. Nous avons ainsi :

$$\frac{Y_A(t)}{Y_{A'}(t)} = (1 + \beta(t) * X_A) * \frac{Y_A^m}{Y_{A'}^m}$$

Les rapports mesurés durant cette expérience (98/105,136/105,146/105) ne semblent pas avoir été influencés par le rapport des taux de fissions : $\frac{\beta(t)}{\alpha(t)} = \frac{\beta(t)}{1-\beta(t)}$ (cf figure 7.7) on a donc $X_A = 0$.

Cette figure montre également deux jeux de points qui s'écartent de la systématique. Le premier noté A correspond à une augmentation très brutale des propriétés de la cible en début d'expérience comme indiqué figure 4.25. Le second jeu de données noté B correspond à un problème de vide déjà mentionné §4.1.3.6.

Compte tenu de la faible fluctuation et de l'incertitude de 6.5% sur les rapports $\frac{Y_A(t)}{Y_{A'}(t)}$ deux limites sur la quantité X_A ont été déduites dans l'hypothèse où $X_{A'} = 0$.

Lorsqu' on connaît le rapport $\frac{Y_A^m}{Y_{A'}^m}$ comme dans [WOL71] avec une précision de 7,4% alors

$$\frac{Y_A(t)/Y_{A'}(t)}{Y_A^m/Y_{A'}^m} = 1 \pm 0.10$$

conduit à $X_A = 0 \pm 0.20$ avec $\beta(t) = 0.5$. Cette valeur de $\beta(t)$ a été obtenue en résolvant les équations d'évolution pour le moment auquel a été faite cette mesure.

Toutefois, dans la majorité des cas nous ne disposons pas du rapport $\frac{Y_A^m}{Y_{A'}^m}$ et dans ce cas, seul le rapport

$$\frac{Y_A(t_2)/Y_{A'}(t_2)}{Y_A(t_1)/Y_{A'}(t_1)}$$

peut être étudié. Compte tenu des incertitudes sur $Y_A(t)$ on obtient $X_A = 0 \pm 0.51$.

On peut ainsi conclure que les rendements en masse issus de la fission des deux états de l' ^{242}Am sont identiques à 51% et cette incertitude diminue à 20% si on connaît le rapport $\frac{Y_A^m}{Y_{A'}^m}$

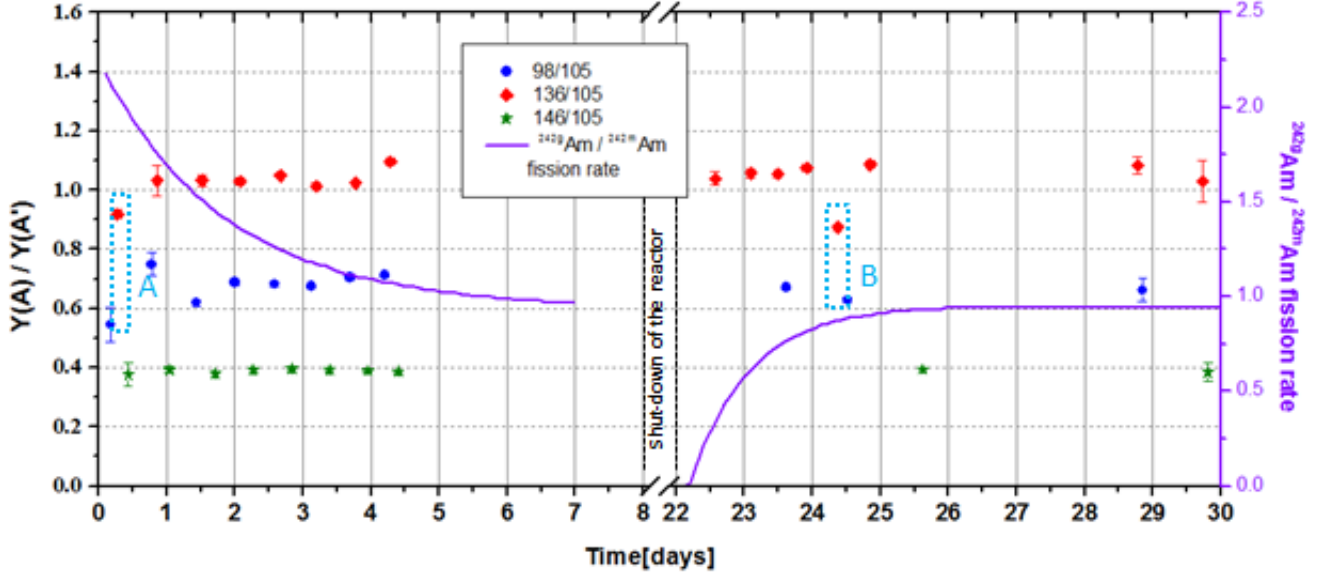


FIGURE 7.7 – Rapport des rendements en masse en fonction du temps (axe à gauche) et évolution correspondante du rapport des taux de fission de l' ^{242m}Am et de l' $^{242gs}\text{Am}$ (axe à droite)

Afin de réduire cette limite et d'étendre la conclusion précédente à un plus grand nombre de masses, la mesure de 15 réglages $Y(A_0, q_0, E_0)$ à 17 temps, donc pour des rapports des taux de fission de l' ^{242m}Am et de l' $^{242gs}\text{Am}$ différents, a été effectuée.

L'hypothèse forte qu'un point $Y(A, q, E)$ peut être relié de manière directe et unique à $Y(A)$ implique une distribution en énergie et en charge qui n'évolue pas avec le temps.

Afin de réduire l'influence de la distribution en énergie et en charge le rapport $Y(A, q, E)/Y(A', q', E')$ a été étudiée pour des triplets (A, q, E) et (A', q', E') proches entre eux et proches du sommet de la distribution.

Comme illustré figure 7.8, les rapports des rendements sur le pic léger ne semblent pas être influencés par le rapport des taux de fission de l' ^{242m}Am et de l' $^{242gs}\text{Am}$ contrairement aux rapports des rendements sur le pic lourd. Toutefois la dépendance des rapports des masses lourdes avec le rapport des taux de fission n'est pas cohérente puisque les deux points pris durant la première partie de l'expérience et correspondant à un rapport des taux de fission de 0.96 ne sont pas en accord avec les mesures réalisées durant la seconde partie de l'expérience.

Comme indiqué précédemment une bijection unique entre $Y(A_0, q_0, E_0)$ et $Y(A)$ n'est pas compatible avec une évolution de la distribution en énergie. Or la distribution en énergie a beaucoup évolué durant la prise de ces points. Les distributions en énergie entre masses voisines étant presque identiques sur le pic léger et très différentes sur le

pic lourd, l'influence de cette variation de la distribution de l'énergie est attendue en priorité sur le pic lourd. Les données expérimentales présentées figure 7.9 confirment cette intuition.

De plus, par conservation de la masse, un effet du moment angulaire du noyau composé sur le pic lourd entraine irrémédiablement un effet sur le pic léger. La dépendance du rapport des masses du pic lourd entre elles est plus cohérente avec un changement de l'énergie moyenne qu'avec une variation du rapport des taux de fission. On peut donc conclure à un effet très faible du spin du noyau composé sur les rendements en masse.

Toutefois la sensibilité de la méthode est assez faible comme illustré figure 7.10 : une variation de 20% du rendement entraine une augmentation de seulement 6% du rapport entre les rendements.

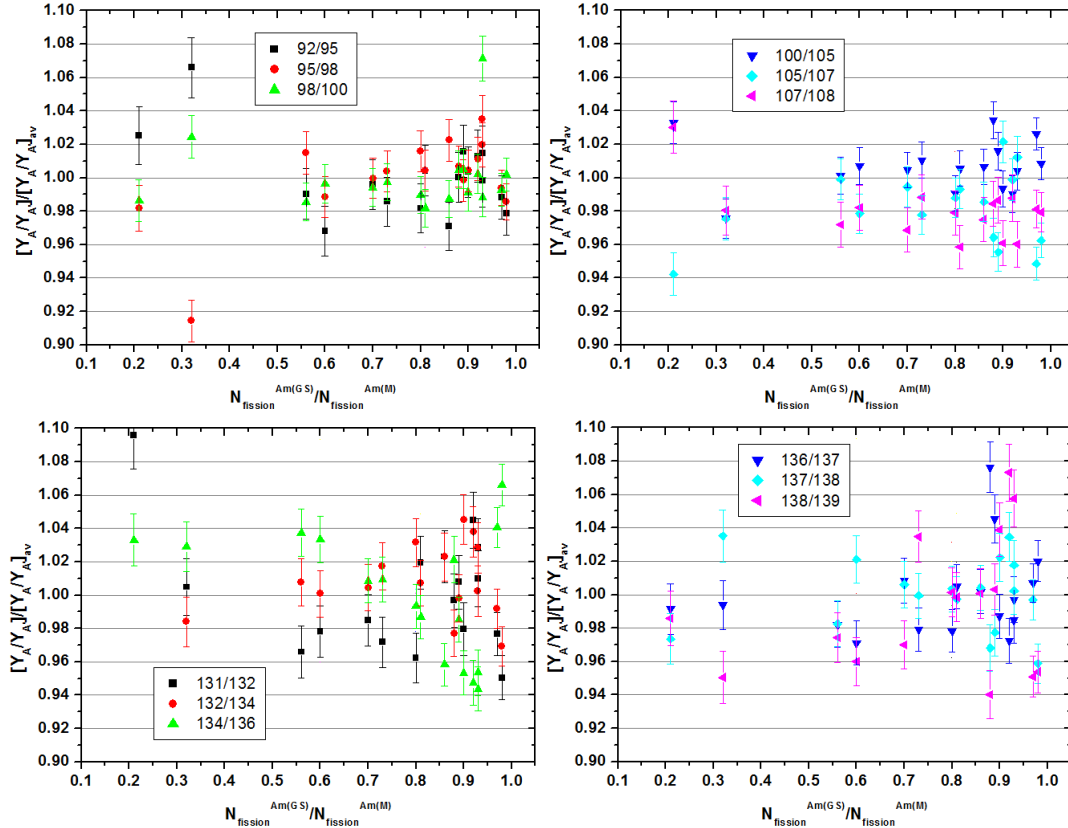


FIGURE 7.8 – Rendements de fission $Y(A,q,E)/Y(A',q',E')$ normalisés par leur valeur moyenne en fonction du rapport des taux de fission de l' ^{242m}Am et de l' $^{242gs}Am$ pour les fragments légers (haut) et pour les fragments lourds (bas)

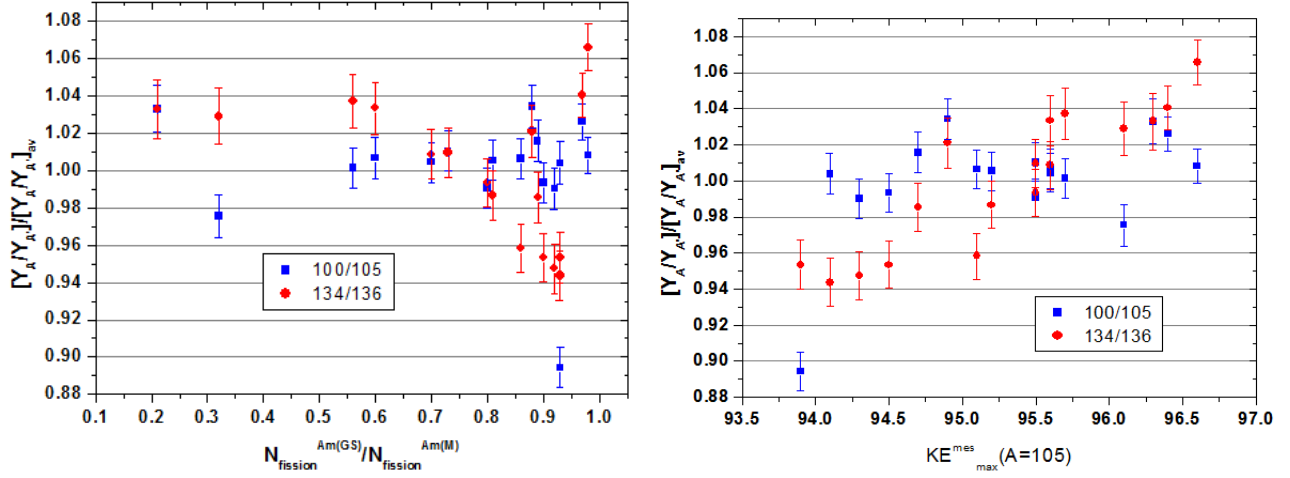


FIGURE 7.9 – Rendement de fission $Y(A,q,E)$ en fonction du rapport des taux de fission de l' ^{242m}Am et de l' $^{242gs}\text{Am}$ (gauche) et en fonction de l'énergie la plus probable de la masse 105 (droite)

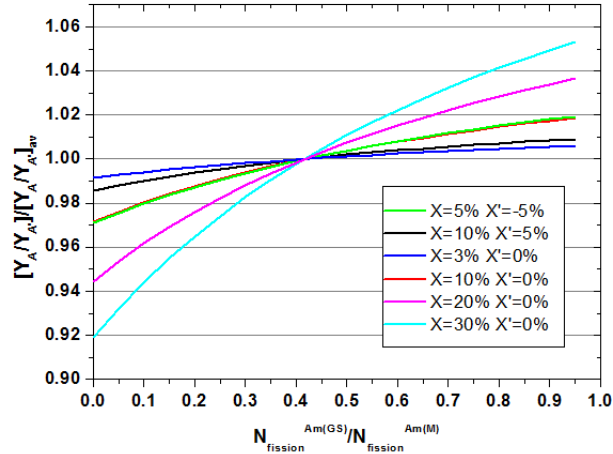


FIGURE 7.10 – Rapports de rendement de fission $Y(A)/Y(A')$ pour différentes valeurs de X et X' en fonction du rapport des taux de fission de l' ^{242m}Am et de l' $^{242gs}\text{Am}$

7.2.2 Rapports isomériques

Comme indiqué précédemment, une influence du spin du noyau composé, si elle existe, est attendue prioritairement sur les rapports isomériques. Ayant validé précédemment que le code GEF prédisait bien les rapports isomériques pour la majorité des noyaux connus (cf §2.1.7), je l'ai utilisé pour estimer dans quelle mesure les rapports isomériques produits lors de la fission de l'isomère de l' ^{242}Am (de spin 5-) différaient de ceux produits lors de la fission de l'état fondamental (de spin 1-). Plus exactement j'ai calculé avec le code GEF, pour tous les noyaux possédant un état isomérique, l'écart, selon l'état du noyau composé, de leur rendement dans leur état fondamental, i.e.

$$[Y_{GS}(A, Z)]_{242\text{Am}} - [Y_{GS}(A, Z)]_{242m\text{Am}}$$

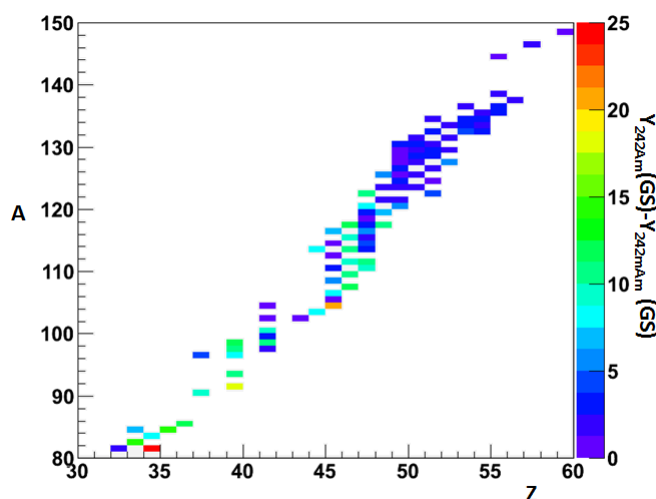


FIGURE 7.11 – Ecart calculé par le code GEF entre les rendements des fragments dans leur état fondamental issus de ^{242}Am et ceux issus de ^{242m}Am

La figure 7.11 présente cet écart en pourcentage. On observe un écart très faible pour les noyaux du pic lourd et des écarts de l'ordre de 10% pour ceux du pic léger. Ce comportement peut s'expliquer par la dépendance du moment angulaire J_{RMS} (et donc du rapport isomérique), avec la masse du fragment et le spin du noyau composé :

$$J_{RMS} = \sqrt{J_{RMS}(\text{sans spin noyau composé})^2 + 1/3 * Spin_{NC}^2}$$

avec $J_{RMS}(\text{sans spin noyau composé}) \propto A^{5/3}$ pour des raisons géométriques. La contribution du spin du noyau composé sera donc proportionnellement plus faible pour les fragments lourds.

Nous allons maintenant regarder dans quelles conditions - pour quel fragment - cet effet pourrait être mesuré avec le spectromètre Lohengrin.

- le produit $Y * I_\gamma$ doit être assez élevé et la durée de vie du fragment doit être assez courte pour garantir une statistique suffisante
- les données de décroissance doivent être connues pour les deux états de spin

Ces deux critères conduisent à réduire drastiquement le nombre de rapports isomériques mesurables. De plus les effets attendus sont faibles, aussi, afin de pouvoir extraire des conclusions les plus solides possibles, il a été choisi d'ignorer les noyaux dont soit le père soit le fils possèdent des états isomères métastables.

Après avoir pris en compte ces critères, les noyaux mesurables sont en nombre très limité : le ^{100}Nb et l' ^{136}I .

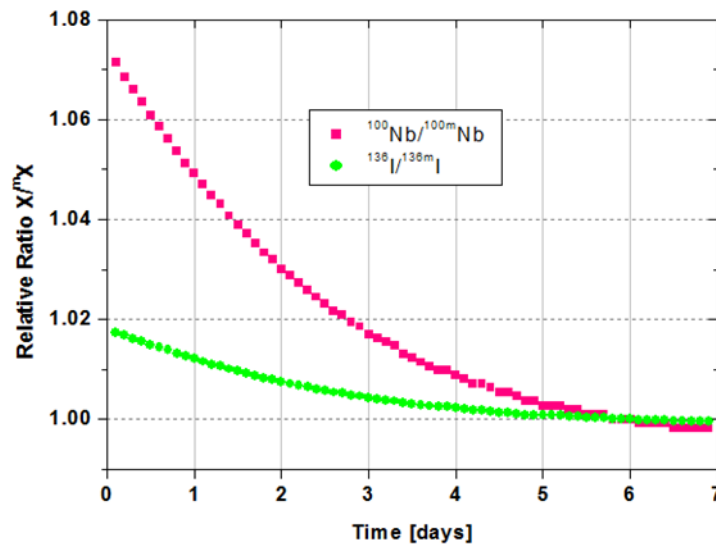
Selon GEF (cf figure 7.12), les différences attendues sur le rapport isomérique sont quasiment nulles pour l' ^{136}I et au maximum de 7% pour l' ^{100}Nb . Les incertitudes expérimentales devront donc être assez faibles, ce qui impose des temps de mesures assez longs. La mesure complète d'une masse par spectrométrie gamma (distribution en charge ionique complète) dure en moyenne 10 heures, or c'est seulement les trois premiers jours que la composition de la cible varie suffisamment, ce qui nous limitera à deux, voire trois mesures de chaque masse avec des taux de fission différents. En effet, la mesure est basé sur un rapport de taux de fission qui évolue.

Une solution alternative consiste à mesurer l'évolution dans le temps du rapport isomérique à une seule charge ionique.

E_γ (keV)	I_γ (M)	I_γ (GS)	activité(M)	activité(GS)
600	69	0.55	$0.098 \pm 2.5\%$	
1280	22	X	$0.104 \pm 10.8\%$	
528	9.9	9.1		$1.204 \pm 0.6\%$
536	95	46		$1.206 \pm 1.6\%$

TABLE 7.1 – Intensités des raies gamma associées aux deux états de spin du ^{100}Nb et activités associées

De plus l'incertitude sur le rendement masse est beaucoup plus élevée que celle sur un point Y(A,q,E). En effet elle doit tenir compte de la correction du nombre de fissions, de l'ajustement des distributions et de la correction due à la décroissance du père Z-1.



cet état. Dès lors, les trois raies gamma mesurées dans les détecteurs Ge correspondent essentiellement à l'activité de l'isomère microseconde.

Les raies retenues pour l'analyse de l' ^{136}I sont donc des raies de plus faible intensité, la raie à 370 keV pour l'état isomère et celle à 1321 keV pour le fondamental. La mesure effectuée durant 30 minutes donne des incertitudes de respectivement 1.5% et 3.2%. Il faudra pour réduire les incertitudes considérer des mesures de 60 voire 90 minutes.

Ainsi des mesures de 60 voir 90 minutes du réglage 100/20 et 136/23, l'énergie étant à déterminer lors de l'expérience, nous permettraient d'observer un éventuel effet du spin du noyau composé sur les rapports isomériques.

Conclusion

On peut donc conclure que les mesures réalisées précédemment, bien que ne mesurant pas directement les rendements deux états de spins du même noyau, nous conduisent à attendre un faible effet du spin sur les rendements de fission. Dans le cadre de cette thèse, il a été observé que les rendements en masse ne semblaient pas dépendre du spin du noyau composé. Cependant la sensibilité de la méthode est assez faible. Le code GEF, qui s'appuie pour sa prédiction du moment angulaire sur des observations de Naik, prédit une différence aux niveaux des rapports isomères de 10% pour le 100nb et aucun d'écart pour l' ^{136}i . Une procédure de mesure a été mise en place pour observer cette effet. Sa faisabilité a été démontrée.

Conclusion

Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse avait trois objectifs :

- Mesurer les rendements de fission de l' $^{241}\text{Am}(2n_{th}, f)$
- Déterminer une éventuelle différence entre les rendements issus de la fission de $^{242\text{gs}}\text{Am}$ et ceux issus de la fission de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$
- Améliorer et valider une partie du code semi-empirique GEF afin de disposer d'un code aux prédictions suffisamment précises pour être utilisé dans le cadre d'une comparaison aux données expérimentales

Comme indiqué chapitre 2, la validation du code GEF a été réalisée sur de nombreux points permettant d'améliorer et de tester certains modèles utilisés dans le code comme la description du moment angulaire mais également d'étendre le domaine en énergie d'excitation où le code peut être utilisé avec confiance. Ce code ayant atteint une grande précision sur ces prédictions, il a été retenu pour servir d'outil d'évaluation pour les futures versions de la bibliothèque JEFF. La validation de grandeurs globales nécessaires à l'industrie nucléaire comme la puissance résiduelle et les neutrons retardés a été concluante.

La mesure des rendements de fission de l' $^{241}\text{Am}(2n_{th}, f)$ grâce à Lohengrin a permis d'extraire avec une incertitude moyenne de 6.5% les rendements en masse de 41 masses couvrant tous les rendements supérieurs à 1% soit 173%/200% des rendements. Ces mesures améliorent de manière très significative le nombre de rendements connus et permettent de valider l'évaluation des rendements en masse de l' ^{242}Am faite par ENDF/B-VII.0 et d'émettre des doutes sur l'évaluation du pic léger par JEFF 3.1.1. La forme très asymétrique des énergies cinétiques associées a rendu très compliqué l'ajustement de ces dernières et n'a pas permis d'extraire la valeur absolue de l'énergie cinétique moyenne ni la largeur associée. La statistique n'ayant pas joué de rôle limitant, il semble primordial de s'orienter vers des cibles beaucoup plus fines.

Bien qu'ayant rencontré un grand nombre de problèmes techniques, la mesure par spectrométrie gamma a permis d'extraire une vingtaine de rendements isotopiques sur le pic lourd. Une seconde expérience permettant de mesurer le pic léger aura lieu en octobre 2014. L'extraction des rendements isotopiques est cependant très dépendante des données de décroissance. Certaines de ces dernières se sont révélées incohérentes, d'autres incomplètes, limitant ainsi la possibilité d'extraire de manière satisfaisante le rendement de certains noyaux voire chaînes. Un grand effort d'évaluation de ces données doit être mené en amont afin de ne pas aboutir à une nécessaire réanalyse de tous les rendements issus des thèses menées par spectrométrie gamma à Lohengrin.

Une des expériences menées lors de cette thèse a permis de mettre en évidence une faible influence du spin du noyau composé sur les rendements en masse. Une technique permettant de mesurer une (très) faible influence du spin du noyau composé sur les rapports isomériques déduite des études de Naik a été étudiée. Sa faisabilité a été démontrée et l'expérience devrait avoir lieu en octobre 2014.

Annexe A : Mesure du taux de fission au moyen des particules alpha

La décroissance de l' ^{242}Am entraîne la création du ^{242}Cm très grand émetteur de particules alpha. Ainsi il a été proposé de mesurer la quantité d'alpha émise afin d'accéder directement à la quantité de matière présente dans la cible. La mesure des particules α nécessite la modification du gain de la chambre d'ionisation. Le taux de comptage (5-6kHz) n'a pas pu être supporté par la chambre d'ionisation. Un exemple de résultat donné obtenu avec cette dernière lors d'une mesure à haut taux de comptage est présenté figure 7.13. On observe trois zones à fort taux de comptage : une tache principale centrée sur le canal ($E1^{tache}, Etot^{tache}$) (sur la figure 7.13 (380 canaux , 50 canaux)), une zone au dessus de cette tache qui correspond à une perte totale identique ($Etot = Etot^{tache}$) mais une perte dans la première partie différente ($E1 > E1^{tache}$) et une zone à droite de la chambre qui correspond à $E1 \propto E1^{tache}$ et $Etot \propto Etot^{tache}$, cette partie pourrait correspondre à du pile-up. La répartition du nombre de coups dans et hors de la tache pour trois taux de comptage différents et pour le même réglage en énergie est présentée figure 7.14. Comme on peut le constater la proportion de coups présents dans la tache augmente avec le taux de comptage mais sans réelle systématique. Les spectres obtenus en considérant seulement la tache ou en considérant le nombre de coups total ne sont pas homothétiques. Il a donc été choisi de ne pas considérer ces données.

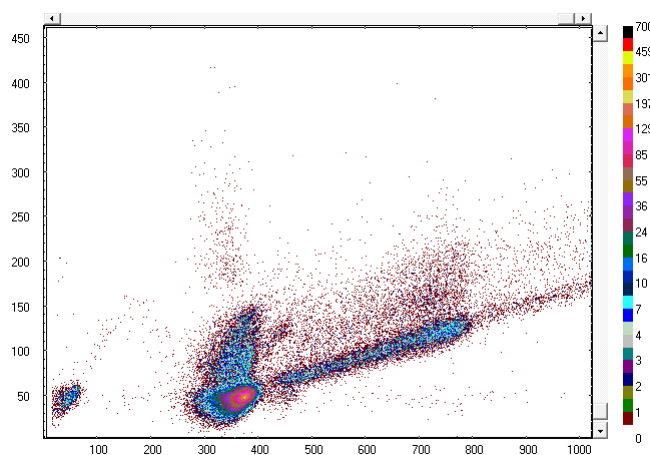
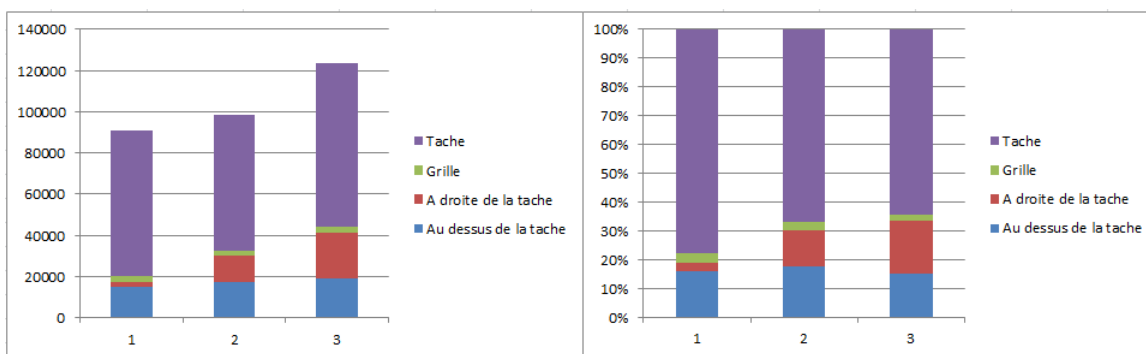
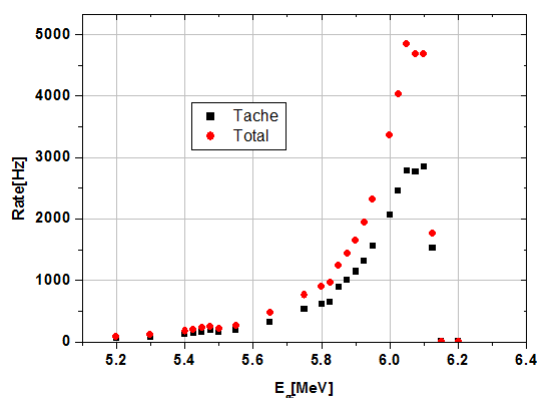
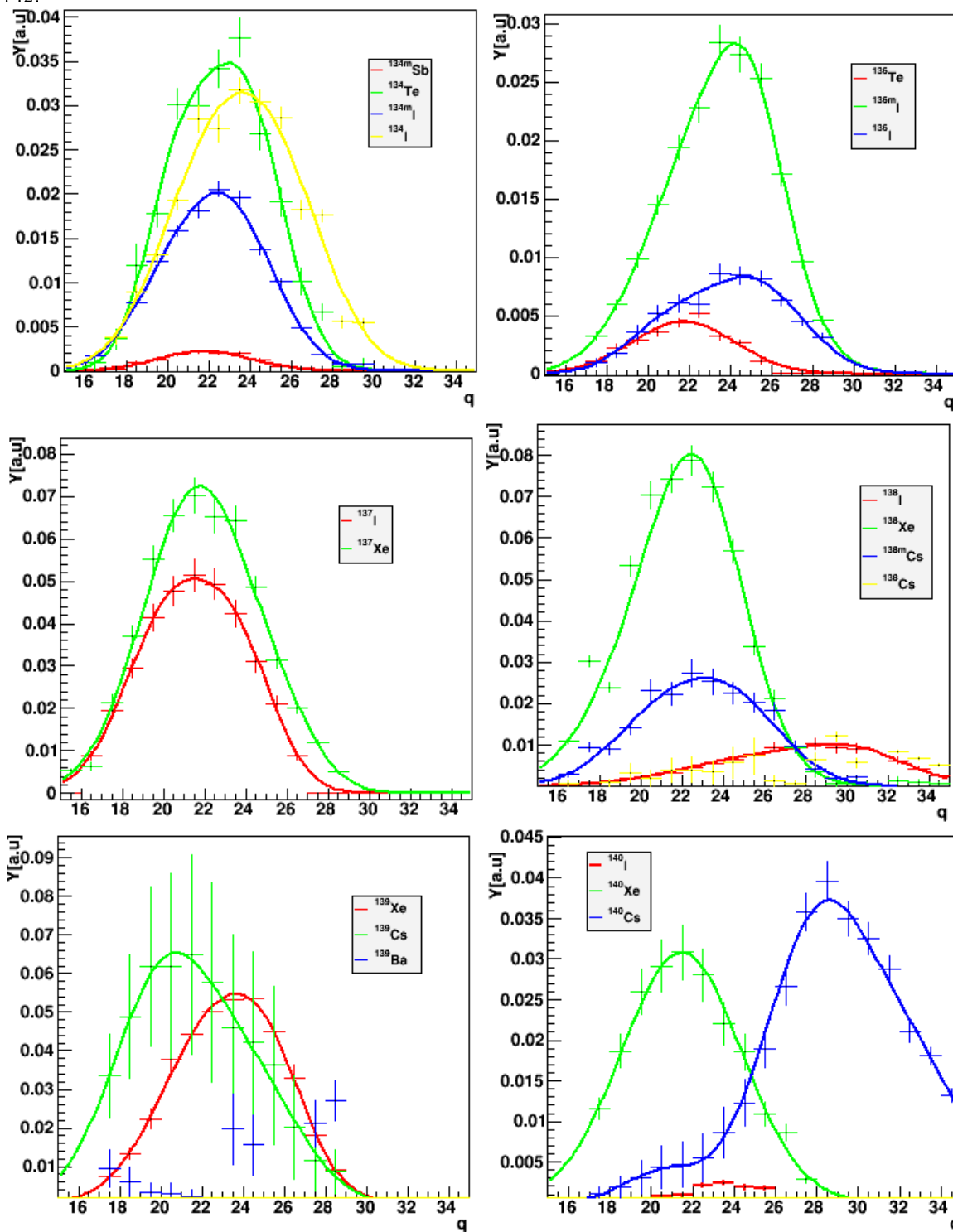
FIGURE 7.13 – Copie d'écran d'une mesure alpha pour $A=4/q=2/E=6.0$ MeV

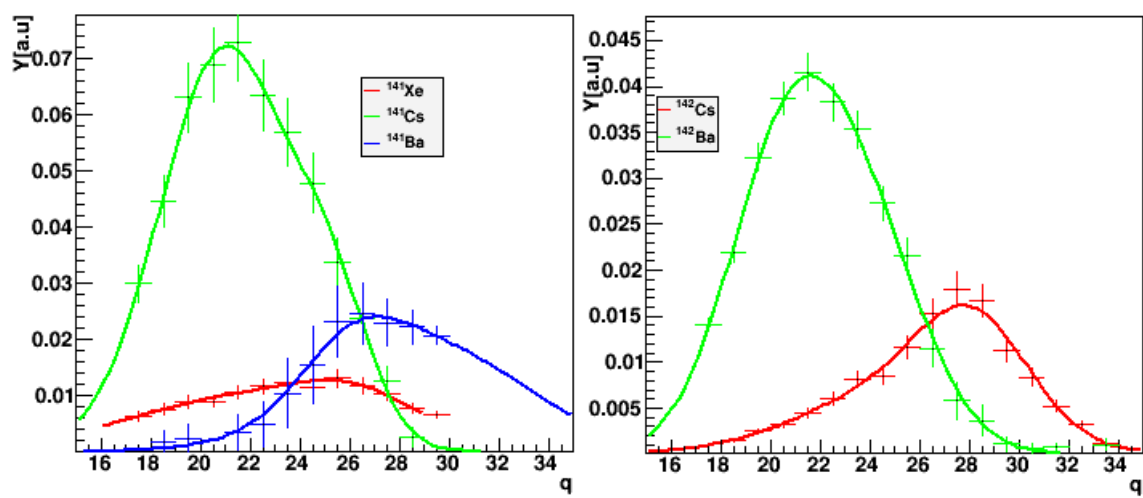
FIGURE 7.14 – Répartition du nombre de coups détectés pour le réglage 4/2/6.0 à 3 temps différents en absolu(gauche) et relatif(droite)

FIGURE 7.15 – Spectre en énergie obtenu pour les α en considérant seulement la tache ou en considérant le nombre de coups total

Annexe B : Distribution en charges ioniques des fragments de fission

Cette annexe regroupe les distributions en charge ionique mesurées pour les charges nucléaires des masses 134 et 136-142.





Annexe C : Rendements en masse

Cette annexe présente les rendements en masse obtenus.

A	Y	σ_Y
91	1.89	0.11
92	2.29	0.13
93	2.6	0.16
94	2.87	0.18
95	3.87	0.23
96	3.54	0.20
97	3.99	0.25
98	4.36	0.27
99	5.22	0.34
101	5.63	0.33
102	6.43	0.39
103	6.87	0.42
104	6.75	0.39
105	6.5	0.3
106	5.83	0.34
107	5.3	0.33
108	4.43	0.26
109	3.48	0.22
110	1.99	0.12
129	1.23	0.08
130	2.43	0.15
131	3.46	0.21
132	4.51	0.26
133	6.49	0.4
134	6.99	0.4
135	7.2	0.42
136	6.83	0.44
137	6.05	0.37
138	5.48	0.32
139	5.5	0.32
140	4.8	0.69
141	5.14	0.32
142	4.03	0.54
143	4.00	0.26
144	3.79	0.22
145	3.55	0.21
146	2.54	0.16
147	2.71	0.17
148	1.91	0.13
149	1.69	0.29

Annexe D : Rendements isotopiques

Cette annexe présente les rendements isotopiques obtenus.

Noyau	Rendement
^{134m}Sb	$0,131 \pm 0,040$
^{134}Te	$3,181 \pm 0,089$
^{134m}I	$1,341 \pm 0,018$
^{134}I	$2,293 \pm 0,040$
^{136}Te	$0,531 \pm 0,020$
^{136m}I	$1,934 \pm 0,010$
^{136}I	$0,432 \pm 0,020$
^{137}I	$2,358 \pm 0,061$
^{137}Xe	$3,386 \pm 0,065$
^{138}I	$0,690 \pm 0,092$
^{138}Xe	$3,541 \pm 0,056$
^{138}Cs	$1,411 \pm 0,050$
^{139}Xe	$2,475 \pm 0,089$
^{139}Cs	$3,103 \pm 0,564$
^{140}I	$0,0258 \pm 0,002$
^{140}Xe	$1,406 \pm 0,049$
^{140}Cs	$1,918 \pm 0,049$
^{141}Xe	$0,998 \pm 0,208$
^{141}Cs	$3,671 \pm 0,134$
^{141}Ba	$1,266 \pm 0,134$
^{142}Cs	$0,982 \pm 0,031$
^{142}Ba	$2,350 \pm 0,054$

Bibliographie

- [ALE77] D.R Alexander & M.S Krick, Nucl. Sci. & Eng. 62 (1977) 627
- [AMO11] Ch. Amouroux, Rapport de stage de fin d'étude (Phelma) 2011
- [APA65] V. F. Apalin et al., Nucl. Phys. 71 (1965) 546.
- [ASA60] F. Asaro, Phys. Rev. 120 (1960) 934
- [ASG84] M. Asghar and R. W. Hasse, J. Phys. Colloques 45 (1984) C6-455.
- [BAB97] H. Baba et al., J. Nucl. Sci. Techn. 34 (1997) 871.
- [BAC74a] B.B Back et al., Phys. Rev. C 9 (1974) 1924
- [BAC74b] B.B Back et al., Phys. Rev. C 10 (1974) 1948
- [BAI09] A. Bail, PhD Thesis Bordeaux 2009
- [BAU82] Y. Baudinet-Robinet, Phys. Rev. A 26 (1982) 62
- [BED12] D.H Beddingfield et al., Nucl. Inst. A 455(3), (2000) 670–682
- [BEL89] A.D Belyaev et al., Nucl. Instru. Meth. B 43 (1989) 5-8
- [BEN12] J-Ch. Benoit, PhD Thesis Université Paris Sud 2012
- [BER11] J-F. Berger et al., Ecole joliot-curie de physique nucléaire, Maubuisson, 2006.
- [BET30] H. Bethe, "Annalen der Physik", 397 (1930) 325 - 400
- [BOC89] J-P. Bocquet, R. Brissot Nucl. Phys. A 502 (1989) 213
- [BOC90] J-P. Bocquet et al., Zeitschrift für Physik A., 335, p. 41–48, 1990. 59, 72
- [BOH39] N. Bohr et al., Phys. Rev. 56 (1939) 426.
- [BOH41] N. Bohr, Phys. Rev. 59 (1941) 270
- [BOH73] E.M. Bohn et al., Nucl. Instru. Meth. 109 (1973) 605 ;
- [BOU98] B. Bouzid et al., J. Phys. G : Nucl. Part. Phys. 24 (1998) 1029
- [BRO90] U. Brosa, S. Grossmann, A. Müller, Phys. Rep. 197(4)(1990) 167 .
- [BUD88] C. Budtz-Jorgensen, H.-H. Knitter, Nucl. Phys. A 490 (1988) 307.
- [CAA11] M. Caamano, J Phys G : Nucl. Part. Phys. 38 (2011) 0.35101
- [CAP09] R. Capote et al., Nuclear Data Sheets - Volume 110, Issue 12, December 2009, Pages 3107-3214
- [CHA78] T. C. Chapman et al., Phys. Rev. C 17 (1978) 1089.
- [CHA11] M. B. Chadwick et al., Nucl. Data Sheets 112 (2011) 2887.

- [CHE14] Private communication A. Chebboubi
- [DAH82] M. Dahlinger, D. Vermeulen, K.-H. Schmidt, Nucl. Phys. A 376 (1982) 94.
- [DAT82] T. Datta et al., Phys. Rev. C 25 (1982) 235
- [DAT83] T. Datta et al., Phys. Rev. C 28 (1983) 1206
- [DEL12] O. Delaune Thèse Bordeaux 2012
- [DEM97] L. Dematté et al., Nucl. Phys. A617 (1997) 331-346
- [DOR10] D. Doré, Conseil scientifique et Technique du SPhN CEA (2010)
- [EGI08] T. von Egidy, D. Bucurescu, Phys. Rev. C 78 (2008) 05130
- [FAU04] H. R. Faust and Z. Bao, Nucl. Phys. A 50, 55 (2004).
- [FIT00] Andreas Fitzler. Tv User-Manual. Institute for Nuclear Physics, University of Cologne, 2000. 76, 135
- [FLY72] K.F Flynn Phys. Rev. C 5 (1972) 1725
- [FON80] C.A Fontenla et al., Phys. Rev. Let. 44 (1980) 1200
- [FOR65] G. P. Ford et al., Phys. Rev. 37 (1965) 826.
- [FOR84] G. P. Ford et al., Phys. Rev. C 30 (1984) 195
- [FOR07] R. A. Forrest, FISPACT2007 : User manual, March 2007.
- [FRE89] J. Frehaut : Proceedings of Cons. Meeting on Physics of Neutron Emission in Fission. Mito 1988. IAEA Wien 1989, INDC (NDS)-220, 99
- [GIA05] M-L. Giacri-Mauborgne, PhD thesis, Caen University 2005 (in French)
- [GIL65] A. Gilbert and A.G.W. Cameron, Can. J. Phys. , 43,(1965) 1446-1496
- [GIN83] E. Gindler et al., Phys. Rev. C 27 (1983) 2058.
- [GOU05] H. Goutte et al., Phys. Rev. C 71 (2005) 024316
- [GLE80] L. E. Glendenin et al., Phys. Rev. C 22 (1980) 152.
- [GLE81] L. E. Glendenin et al., Phys. Rev. C 24 (1981) 2600.
- [GLE82] L. E. Glendenin et al., Phys. Rev. C 24(1982)2600
- [GUT91] U. Güttler, Ph.D. Thesis, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1991 (en allemand)
- [HAM89] F-J. Hambsch et al., Nucl. Phys. A 491 (1989) 56
- [HAM97] F-J. Hambsch, S. Oberstedt, Nucl. Phys. A 617 (1997) 347.
- [HAM00] F-J. Hambsch et al., Nucl. Phys. A 679 (2000) 3
- [HAS88] Geometrical Relationships of Macroscopic Nuclear Physics, R. W. Hasse, W. D. Myers, Springer, Berlin, 1988.
- [HEI04] S. Heinrich thèse de doctorat Paris XI 2004
- [HIL07] S. Hilaire, M. Girod, Eur. Phys. J A33 (2007) 237
- [HOL71] W. Holubarsch et al., Nucl. Phys. A 171 (1971) 631.
- [IAE00] IAEA Tecdoc 1168, IAEA, Vienna, 2000.
- [ILL12] Private communication ILL

- [IMA76] N. Imanishi et al., Nucl. Phys.A 263(1976) 141
- [ITK85] M. Itkis et al., Z. Phys. A 320 (1985) 433
- [IST79] K. K. Istekov et al., Sov. J. Nucl. Phys 29(5) (1979) 595
- [JUR13] B. Jurado, K-H. Schmidt, EPJ Web of conference 06005 (2013)
- [KAD08] . G. Kadmsky, Phys. Atom. Nuclei 71 (2008) 1193
- [KAR01] A. V. Karpov, P. N. Nadtochy, D. V. Vanin, G. D. Adeev, Phys. Rev. C 63 (2001) 054610.
- [KAR02] A. V. Karpov, G. D. Adeev, Eur. Phys. J. A 14 (2002) 169.
- [KAR08] A. V. Karpov et al., J. Phys. G : Nucl. Part. Phys. 35 (2008) 035104
- [KEE57] G. R. Keepin et al., Phys. Rev. 107 (1957) 1044
- [KEL09] NEA, The JEFF3.1/3.1.1 Radioactive Decay Data and Fission Yields Sublibraries, JEFF Report 20.
- [KNO99] G.F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, John Wiley & Sons Inc, 1999.
- [KRA88] K. Krane, « Nuclear Fission » in Introductory Nuclear Physics, 478-527. 2nd ed. John Wiley & Sons 1988
- [KUP80] V. M. Kupriyanov et al., Sov. J. Nuclear Phys 32(2) (1980) 184
- [LAU10] J. Laurec et al., Nucl. Data Sheets 111 (2010) 2965.
- [LEM14] J-F. Lemaitre, Private Communication
- [LET11] A. Letourneau Habilitation à diriger les recherches (2011)
- [MAC11] M. Mac Innes et al., Nucl. Data Sheets 112 (2011) 3135 and references therein.
- [MAD77] D. G. Madland, T. R. England, Nucl. Sci. Eng. 64 (1977) 859.
- [MAL85] V. V. Malinovskij, V. G. Vorob'eva, B. D. Kuz'minov, Report INDC(CCP)-239, IAEA, Vienna, 1985.
- [MAR13] F. Martin, PHD Thesis, Université Grenoble 2013
- [MAT12] L. Mathieu et al., Journ. of Instrum. 7 (2012) 08029
- [MAT13] Th. Materna, Private Communication
- [MEA63] J. W. Meadows et al., Nucl. Data & Meas. Series, ANL/NDM-64(1963)
- [MIL90] R. W. Mills, NEA NDC-300U (1990)
- [MIL95] R. W. Mills, PhD thesis, university of Birmingham, 1995.
- [MOR00] M. Morhac et al., Nuclear Instruments and Methods in Research Physics A 443(2000), 108-125
- [MOS71] U. Mosel, H. W. Schmitt, Nucl. Phys. A 165 (1971) 73.
- [MUE10] Th. A. Mueller, PhD Thesis, Université Paris XI - Paris Sud, 2010.
- [MYE81] W. D. Myers, G. Manzouranis, J. Randrup, Phys. Lett. B 98 (1981) 1.
- [MYE99] W. D. Myers and W.J. Swiatecki, Phys. Rev. C 60 (1999) 014606
- [MYE04] [http ://ie.lbl.gov/txt/ms.txt](http://ie.lbl.gov/txt/ms.txt)
- [NAG68] S. Nagy et al., Phys. Rev. C 17 (1968) 163.
- [NAI95] H. Naik et al., Nucl. Phys. A (1995) 273-290
- [NAI99] H. Naik et al., Nucl. Phys. A 648 (1999) 45-63

- [Nai00] H. Naik et al., Eur. Phys. J A 7, (2000) 377
- [NAI05] H. Naik et al., Phys. Rev. C 71 (2005) 014304
- [NAI07] H. Naik et al., Eur. Phys. J. A 31 (2007) 195
- [NAQ86] A. Naqvi, F. Käppeler, F. Dickmann, R. Müller, Phys. Rev. C 34 (1986) 21
- [NIC02] A. L. Nichols, AIEA Report (2002)
- [NIF82] H. Nifenecker et al., 1982 Z. Phys. A 308 39
- [NIK68] V. S. Nikolaev et I. S. Dimitriev , Phys. Let., 28A(4) (1968) 277
- [NIX65] J. R. Nix, W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. 71 (1965) 1
- [OYA97] K. Oyamatsu et al., Uncertainties in fission product decay heat calculations, The first Internet Symposium on Nuclear Data : Paper 12, JAERI Conference 1997
- [PET04] M. Petit et al., Nucl. Phys. A 735 (2004) 345
- [QUE69] P. Quentin, Journal de physique, tome 30 vol. 7 (1969) 498
- [RUD02] G. Rudstam et al., NEA WPEC 6 “delayed neutron data for the major actinides” and reference within
- [RUS97] A. Ya. Rusanov, M. G. Itkis, V. N. Oklovich, Phys. At. Nucl. 60 (1997) 683
- [RUD92] G. Rudstam, Proc. Specialists’ Meeting on Fission Product Nuclear Data, Tokai, Japan, May 25-27, 1992, NEA/NSC/DOC(92)9
- [RUS99] A. Ya. Rusanov, V. V. Pashkevich, M. G. Itkis, Phys. At. Nucl. 62 (1999) 547
- [SAR65] D. Saranties et al., Phys.Rev. 138 (1965) 353
- [SCH92] P. Schillebeeckx et al., Nucl. Phys. A545 (1992) 623-645
- [SCH10a] K-H. Schmidt and B. Jurado, 2010 arXiv :1007.0741v1[nucl-th]
- [SCH10b] K-H. Schmidt and B. Jurado, Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 212501
- [SCH11] K-H Schmidt et al., Ecole joliot-curie de physique nucléaire, La Colle Sur Loup, 2011
- [SCH12] K.-H. Schmidt, B. Jurado, Phys. Rev. C 86 (2012) 044322
- [SCH14] K-H Schmidt et al., "JEFF Report 24, General description of fission observables, GEF" NUCLEAR ENERGY AGENCY
- [SHI82] K. Shima et al., NIM 200 (1982) 605-608
- [SHI86] K. Shima et al Atomic data and Nuclear Data tables 34 (1986) 357
- [SID89] J-L. Sida, PhD Thesis, Université Paris Sud 1989
- [SUR71] W. Surin et al., Yader. Fiz. 14 (1971) 935
- [THI82] H.Thierens et al., Phys. Rev. C 25 (1982) 1547
- [TOB89] A. Tobias, CEGB Report RD/B/6210/R89, May 1989
- [TOM88] B. S. Tomar et al., Phys. Rev. C 38 (1988) 1787
- [TOM07] B. S. Tomar et al., Pramana 68 (2007) 111
- [TRA72] B. L. Tracy et al., Phys. Rev. C 5 (1972) 222
- [TSE99] I. Tsekhanovich et al., Nucl. Phys. A 658, 217 (1999)

- [TSU00] C. Tsuchiya et al., Nucl. Science Techn. 37 (2000) 941
- [VAN73] R. Vandenbosch & J.R. Huizenga, Academic Press in New York (1973)
- [VAR05] N. Varapai et al., in Proc. of the Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission Product Spectroscopy, Cadarache (France), May 11-14, 2005. Eds. G. Fioni et al., AIP Conf. Proc., vol. 447, p. 369
- [VIO66] V.E. Viola, Jr., Nuclear Data Tables A1, 391 (1966)
- [WAG84] C. Wagemans et al., Phys. Rev. C 30 (1984) 218
- [WAG91] C. Wagemans, The Nuclear Fission Process, 1991, CRC Press, Boca Raton, USA
- [WOL71] K. Wolfsberg et al., Phys. Rev., C 3 : 1333-7 (March 1971)
- [WEI35] C. F. v. Weizsäcker Zeitschrift für Physik 1935, Volume 96, Issue 7-8, pp 431-458
- [WIL76] B. D. Wilkins et al., Phys. Rev. C 14 (1976) 5
- [ZIE08] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and M. D. Ziegler "The Stopping and Range of Ions in Solids" (2008)